



Ministério da  
**Ciência, Tecnologia  
e Inovação**



sid.inpe.br/mtc-m19/2013/01.03.12.13.51-TDI

## IMPACTOS DOS AEROSSÓIS NA DINÂMICA DE NUVENS

Micael Amore Cecchini

Dissertação de Mestrado do Curso de Pós-Graduação em Meteorologia, orientada pelo Dr. Luiz Augusto Toledo Machado, aprovada em 7 de fevereiro de 2013.

URL do documento original:

<<http://urlib.net/8JMKD3MGP7W/3DARRLS>>

INPE  
São José dos Campos  
2013

**PUBLICADO POR:**

Instituto Nacional de Pesquisas Espaciais - INPE

Gabinete do Diretor (GB)

Serviço de Informação e Documentação (SID)

Caixa Postal 515 - CEP 12.245-970

São José dos Campos - SP - Brasil

Tel.:(012) 3208-6923/6921

Fax: (012) 3208-6919

E-mail: pubtc@sid.inpe.br

**CONSELHO DE EDITORAÇÃO E PRESERVAÇÃO DA PRODUÇÃO INTELLECTUAL DO INPE (RE/DIR-204):****Presidente:**

Marciana Leite Ribeiro - Serviço de Informação e Documentação (SID)

**Membros:**

Dr. Antonio Fernando Bertachini de Almeida Prado - Coordenação Engenharia e Tecnologia Espacial (ETE)

Dr<sup>a</sup> Inez Staciarini Batista - Coordenação Ciências Espaciais e Atmosféricas (CEA)

Dr. Gerald Jean Francis Banon - Coordenação Observação da Terra (OBT)

Dr. Germano de Souza Kienbaum - Centro de Tecnologias Especiais (CTE)

Dr. Manoel Alonso Gan - Centro de Previsão de Tempo e Estudos Climáticos (CPT)

Dr<sup>a</sup> Maria do Carmo de Andrade Nono - Conselho de Pós-Graduação

Dr. Plínio Carlos Alvalá - Centro de Ciência do Sistema Terrestre (CST)

**BIBLIOTECA DIGITAL:**

Dr. Gerald Jean Francis Banon - Coordenação de Observação da Terra (OBT)

**REVISÃO E NORMALIZAÇÃO DOCUMENTÁRIA:**

Marciana Leite Ribeiro - Serviço de Informação e Documentação (SID)

Yolanda Ribeiro da Silva Souza - Serviço de Informação e Documentação (SID)

**EDITORAÇÃO ELETRÔNICA:**

Maria Tereza Smith de Brito - Serviço de Informação e Documentação (SID)

Luciana Manacero - Serviço de Informação e Documentação (SID)



Ministério da  
**Ciência, Tecnologia  
e Inovação**



sid.inpe.br/mtc-m19/2013/01.03.12.13.51-TDI

## IMPACTOS DOS AEROSSÓIS NA DINÂMICA DE NUVENS

Micael Amore Cecchini

Dissertação de Mestrado do Curso de Pós-Graduação em Meteorologia, orientada pelo Dr. Luiz Augusto Toledo Machado, aprovada em 7 de fevereiro de 2013.

URL do documento original:

<<http://urlib.net/8JMKD3MGP7W/3DARRLS>>

INPE  
São José dos Campos  
2013

Dados Internacionais de Catalogação na Publicação (CIP)

---

Cecchini, Micael Amore.  
C322i Impactos dos aerossóis na dinâmica de nuvens / Micael Amore  
Cecchini. – São José dos Campos : INPE, 2013.  
xxiv + 147 p. ; (sid.inpe.br/mtc-m19/2013/01.03.12.13.51-TDI)

Dissertação (Mestrado em Meteorologia) – Instituto Nacional  
de Pesquisas Espaciais, São José dos Campos, 2013.  
Orientador : Dr. Luiz Augusto Toledo Machado.

1. aerossóis. 2. nuvens. 3. microfísica de nuvens. 4. núcleos de  
condensação de nuvens. 5. mecanismos de precipitação. . I.Título.

CDU 551.576.3

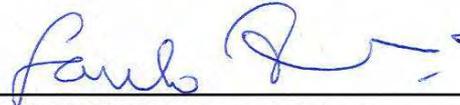
---

Copyright © 2013 do MCT/INPE. Nenhuma parte desta publicação pode ser reproduzida, armazenada em um sistema de recuperação, ou transmitida sob qualquer forma ou por qualquer meio, eletrônico, mecânico, fotográfico, reprográfico, de microfilmagem ou outros, sem a permissão escrita do INPE, com exceção de qualquer material fornecido especificamente com o propósito de ser entrado e executado num sistema computacional, para o uso exclusivo do leitor da obra.

Copyright © 2013 by MCT/INPE. No part of this publication may be reproduced, stored in a retrieval system, or transmitted in any form or by any means, electronic, mechanical, photocopying, recording, microfilming, or otherwise, without written permission from INPE, with the exception of any material supplied specifically for the purpose of being entered and executed on a computer system, for exclusive use of the reader of the work.

Aprovado (a) pela Banca Examinadora  
em cumprimento ao requisito exigido para  
obtenção do Título de **Mestre** em  
**Meteorologia**

Dr. Saulo Ribeiro de Freitas



Presidente / INPE / Cachoeira Paulista - SP

Dr. Luiz Augusto Toledo Machado



Orientador(a) / INPE / Cachoeira Paulista - SP

Dr. Marcos Daisuke Oyama



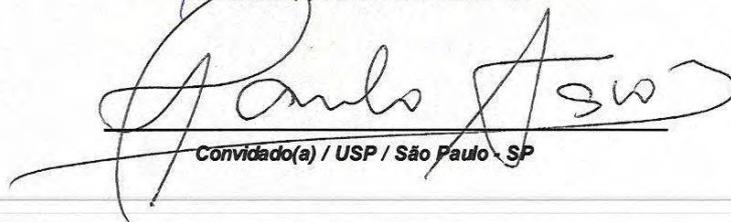
Membro da Banca / IAE/DCTA / SJCampos - SP

Dra. Maria Assunção Faus da Silva Dias



Convidado(a) / USP / São Paulo - SP

Dr. Paulo Eduardo Artaxo Netto



Convidado(a) / USP / São Paulo - SP

Este trabalho foi aprovado por:

maioria simples

unanimidade

Aluno (a): **Micael Amore Cecchini**

São José dos Campos, 07 de Fevereiro de 2013



*“A tarefa não é tanto ver aquilo que ninguém viu, mas pensar o que ninguém ainda pensou sobre aquilo que todo mundo vê”.*

*Arthur Schopenhauer*



## **AGRADECIMENTOS**

Em primeiro lugar agradeço a meus pais Marco e Zita por terem me trazido a este mundo, me possibilitando a sua exploração. Agradeço também a meus irmãos Mário e David e as respectivas Marúcia e Larissa pela sempre presente camaradagem.

Agradeço à Luciana Justi, com quem me casei durante o percurso deste trabalho, sempre mostrando suporte às minhas atividades e a quem nutro amor profundo.

A meus tios Marco (Canto) e Ana Maria (Pitiu) por me receberem de portas abertas quando necessitei.

A meus avós Marco e Egle por todo apoio que cederam de bom grado.

A meu orientador Prof. Dr. Luiz Augusto pelo essencial direcionamento deste trabalho.

À equipe do projeto CHUVA por disponibilizarem abertamente os dados coletados no experimento. Em especial à Izabelly pela disponibilidade e boa vontade em ajudar.

Aos meus colegas alunos de mestrado e doutorado em Meteorologia do INPE pelas risadas e pelo companheirismo nas atividades relacionadas à academia.

Ao Prof. Dr. Paulo Artaxo e aos pesquisadores do LFA pela boa vontade de disponibilizar instrumentos contadores de particulados essenciais para o desenvolvimento deste trabalho.

À Maria de Fátima e todos os pesquisadores do laboratório LAPAt pelas análises do material particulado.

Às atenciosas secretárias Simone e Luana sempre dispostas a atender meus pedidos.

À CAPES pelo auxílio financeiro.

## RESUMO

Este trabalho teve como objetivo estudar as relações entre variações nas concentrações de aerossóis ambiente e seus efeitos sobre as características físicas da precipitação sobre o Vale do Paraíba. Para isto, foram utilizados diversos instrumentos em campo, no interior do Instituto de Estudos Avançados (IEAv) em São José dos Campos, durante o período de 22/11/2011 a 10/01/2012 que mediram a concentração de CCN (*Cloud Condensation Nuclei* – núcleos de condensação de nuvens), de particulado total, a distribuição de tamanho das gotas de chuva (DSD) e as propriedades atmosféricas padrão como temperatura, pressão e ventos. A medida da contagem dos aerossóis foi complementada com análises de material particulado coletados em filtros PM<sub>2,5</sub>. As medidas de DSD foram parametrizadas pelo Método dos Momentos, com resultados satisfatórios onde a taxa de precipitação parametrizada obteve coeficiente de correlação linear  $R^2$  de 0,9996 com a medida. Os parâmetros obtidos ( $N_0$ ,  $m$  e  $\Lambda$ ) foram estudados via análise de *clusters*, evidenciando as variações das DSD parametrizadas ao associá-las a 7 grupos com características semelhantes. Estes *clusters* foram utilizados também para caracterizar os eventos de precipitação. A partir de informações sobre as amplitudes térmica e de concentrações de CCN e as intensidades, durações e acumulados das chuvas, foram definidos cinco padrões diários com características semelhantes, sendo três deles referentes a dias com presença de chuva, nomeadamente Convecção Local, Convecção Organizada e Chuva Estratiforme. Foram selecionados os primeiros eventos a ocorrer em cada um desses dias com o intuito de comparar eventos associados ao mesmo padrão mas sujeitos a diferentes concentrações de CCN. Para o caso de eventos de Chuva Estratiforme, notou-se que o efeito predominante foi aumento nas concentrações totais de gotas (CTG) de 37% nos eventos sujeitos a maiores concentrações de CCN em comparação com os mais limpos. O aumento em CTG levou a aumento em 11% na taxa de precipitação (RI). Nos eventos associados ao padrão Convecção Local, aumentos nas concentrações de CCN levaram a maior diâmetro médio ponderado pela massa ( $D_m$ ). Observou-se que nestes casos deve ser levada em consideração informações sobre a intensidade convectiva dos eventos, pois esta influencia os parâmetros RI,  $D_m$  e CTG. Ao analisar eventos individuais sujeitos a valores semelhantes de Energia Potencial Disponível para Convecção (CAPE), notou-se favorecimento, embora estatisticamente não significativo mas fisicamente importante, na taxa de precipitação com aumentos na carga de CCN, com variações de até 229%. Este aumento, no entanto, se apresentou de duas maneiras distintas, uma onde houve diminuições de CTG e aumentos de  $D_m$  e outra da maneira

inversa. Observou-se que os efeitos dos aerossóis sobre CTG e  $D_m$  geralmente possuem impactos opostos em RI e a intensificação ou enfraquecimento nas taxas de precipitação dos sistemas depende do balanço entre estes fatores. A análise dos eventos associados ao padrão Convecção Organizada foi inconclusiva, mas foram observados indícios de que os efeitos dos aerossóis nesses casos podem ser irrisórios ao menos na metodologia aqui adotada.

## AEROSOLS IMPACTS ON CLOUD DYNAMICS

### ABSTRACT

This work aims to study the impacts of variations of ambient aerosols concentrations on the physical properties of precipitation over Vale do Paraíba. Numerous instruments were deployed in Instituto de Estudos Avançados (IEAv) at São José dos Campos during November 22, 2011 through January 10, 2012 to measure CCN concentrations (Cloud Condensation Nuclei), total particle concentrations, rains droplets size distributions (DSD) and standard atmospheric properties such as temperature, pressure and wind intensities and directions. The measured DSD were parameterized through the Momentum Method, achieving satisfactory results where the measured and parameterized rains intensity (RI) were linearly correlated with  $R^2 = 0.9996$ . A cluster analysis were applied to the parameter obtained ( $N_0$ ,  $m$  and  $\Lambda$ ), associating them to 7 categories representing different kinds of DSD. Those results were useful to characterize individual precipitation events. Through information such as CCN and temperature amplitudes and rain intensities, duration and total water accumulated, five daily patterns were defined, three of which related to precipitation events here referenced as Local Convection, Organized Convection and Stratiform Rain. The first's events of those days were selected to compare similar cases subjects to different concentrations of CCN. On the Stratiform Rain case, increase of 37% on total rain droplet concentrations (CTG) were observed comparing the most polluted cases against the cleaners. An increase of 11% on RI was observed, following the increase on CTG. On the Local Convection cases, increases on CCN concentration lead to greater mean mass weighed diameter ( $D_m$ ). It was noted that on those events information about convective intensities were required to best characterize the impacts of aerosols loading on precipitation systems. Analyzing individual events with similar Convective Available Potential Energy (CAPE), it was noted increases on RI, although statistically not significant but physically important, following increases on CCN loading, reaching relative values of 229%. However, two mechanisms were observed that lead to that increase. One where increases on CCN lead to increases on CTG but decreases on  $D_m$  and the other was the opposite. The aerosols impacts on those parameters where observed to be generally opposite and increases or decreases on RI through CCN presence depend on the balance between those two effects. The Organized Convection cases analysis was inconclusive, but evidence was found that the CCN loading effects can be insignificant on those systems.



## LISTA DE FIGURAS

|  | <u>Pág.</u> |
|--|-------------|
| Figura 2.1 - Classificação dos aerossóis pelos diâmetros e pelos principais processos envolvidos. ....   | 6           |
| Figura 2.2 - Distribuições de tamanho dos aerossóis urbanos a diferentes distâncias de uma estrada movimentada. ....   | 8           |
| Figura 2.3 - Distribuições típicas de concentração numérica, área de superfície e volume dos aerossóis urbanos. ....   | 9           |
| Figura 2.4 - Razão de supersaturação em função do raio da gotícula .....   | 14          |
| Figura 2.5 - Tamanhos típicos relativos entre CCN, gotículas de nuvens e gotas de chuva .....  | 17          |
| Figura 2.6 - Eficiência de colisão para diferentes relações entre o raio da gota coletora ( $r_1$ ) e o da coletada ( $r_2$ ). ....                              | 20          |
| Figura 2.7 - Eficiência de coalescência em função da relação entre os raios da gota coletora ( $r_1$ ) e da coletada ( $r_2$ ). ....                             | 20          |
| Figura 2.8: Concentrações máximas de IN observadas em função da temperatura do topo das nuvens .....   | 25          |
| Figura 2.9: Formas típicas de cristais de gelo formadas pela deposição de vapor, em função da temperatura ambiente e da supersaturação com relação ao gelo ..... | 27          |
| Figura 2.10: Termo GiSi em função da temperatura .....   | 28          |
| Figura 2.11: Formas típicas de cristais gerados pelo processo de acreção .....   | 30          |
| Figura 2.12: Estruturas formadas pelo processo de agregação entre a) agulhas, b) colunas, c) dendritos e d) gotas congeladas .....                               | 32          |

|  |    |
|--|----|
| Figura 3.1 - Imagem sobre a região de estudos, com a marcação da localização dos instrumentos durante as medidas. ....   | 38 |
| Figura 3.2 - Interior do instrumento CCNC.....   | 40 |
| Figura 3.3 - Contêiner do projeto CHUVA, abrigando os instrumentos CPC, CCNC e computadores para coleta de dados. ....   | 41 |
| Figura 3.4 - Página inicial do software do sistema contador de CCN. ....   | 43 |
| Figura 3.5 – Instrumento CPC. ....   | 44 |
| Figura 3.6 - Ilustração da montagem do disdrômetro RD-80. ....   | 46 |
| Figura 4.1 - Série temporal das concentrações de CCN e PT. ....  | 49 |
| Figura 4.2 - Distribuições normalizadas de CCN para os casos mais poluídos e mais limpos. ....   | 50 |
| Figura 4.3 - Ciclo diurno médio das concentrações de CCN para as supersaturações utilizadas no CCNC.....   | 51 |
| Figura 4.4 - Ciclos diurnos médios de CCN para $SS = 1\%$ , PT, fração de ativação e chuva para os dias de semana (azul) e finais de semana (vermelho), junto com o ciclo médio (verde)..... | 54 |
| Figura 4.5 - Médias diárias de PT, CCN, concentração mássica total dos aerossóis e concentração de BC (Black Carbon – carbono elementar). ....   | 57 |
| Figura 4.6 - Arredores da estação montada no IEAv.....   | 64 |
| Figura 4.7 – Rosa dos ventos .....   | 65 |
| Figura 4.8 - Relações entre as concentrações numéricas das partículas e a circulação de ventos .....   | 67 |
| Figura 4.9 - Relações entre circulação dos ventos e as concentrações fracionárias de massa de S, Compostos Orgânicos, BC, K, Fe e Zn. ....   | 69 |
| Figura 4.10 - Árvore de decisões da classificação objetiva .....   | 71 |

|  |     |
|--|-----|
| Figura 4.11 - Exemplo das propriedades de um dia com o padrão Céu Claro.....   | 74  |
| Figura 4.12 - Exemplo de dia com o padrão Convecção Local. ....  | 75  |
| Figura 4.13 - Exemplo de dia com classificação Estratiforme .....  | 76  |
| Figura 4.14 - Exemplo de dia com a classificação Convecção Organizada.....   | 79  |
| Figura 4.15 - Exemplo de dia com o padrão Céu Aberto Limpo.....  | 81  |
| Figura 4.16 - DSD em função da taxa de precipitação e ciclo diurno médio das DSD ...   | 82  |
| Figura 4.17 - Correlação entre as intensidades obtidas pela parametrização e as<br>medidas (em azul), junto com a reta 1 x 1 para comparação.....  | 84  |
| Figura 4.18 - Distribuições de frequências de RI e dos parâmetros do ajuste gamma..  | 85  |
| Figura 4.19 - DSD obtida através da equação 3.2.2.1 com a mediana dos parâmetros do<br>ajuste gamma. ....  | 86  |
| Figura 4.20 - Parâmetros $N_0$ , $m$ e $\Lambda$ dispostos em espaço tridimensional.....   | 87  |
| Figura 4.21 – Visualização 3D da separação em <i>clusters</i> . ....   | 89  |
| Figura 4.22 – DSD obtidas a partir dos parâmetros dos centroides .....   | 93  |
| Figura 4.23 - Frequência relativa de ocorrência dos <i>clusters</i> e rosa dos ventos para as<br>classificações diárias Convecção Local, Convecção Organizada e Chuva<br>Estratiforme..... | 94  |
| Figura 4.24 – Correlações entre os pares $m$ e $N_0$ e $m$ e $\Lambda$ . ....  | 97  |
| Figura 4.25 – Relações entre RI calculada a partir de um parâmetro estimado por<br>relações estatísticas e os outros dois pelo Método dos Momentos<br>aplicados às DSD medidas .....       | 99  |
| Figura 4.26 – DSD associadas às maiores e menores concentrações medidas de CCN103  |     |
| Figura 4.27 – DSD representativas dos eventos de Convecção Local para os casos Mais<br>Poluídos, Mais Limpos e Intermediários. ....  | 110 |

|   |     |
|---|-----|
| Figura 4.28 – Frequências de ocorrência dos <i>clusters</i> nos eventos com padrão<br>Convecção Local sujeitos a diferentes cargas de CCN .....           | 111 |
| Figura 4.29 – DSD representativas dos eventos de Chuva Estratiforme para os casos<br>Mais Limpos e Intermediários.....                                    | 113 |
| Figura 4.30 – Frequências de ocorrência dos <i>clusters</i> nos eventos com padrão Chuva<br>Estratiforme sujeitos a diferentes cargas de CCN.....         | 116 |
| Figura 4.31 – DSD representativas dos eventos de Convecção Organizada para os casos<br>Mais Poluídos, Mais Limpos e Intermediários. ....                  | 117 |
| Figura 4.32 – DSD do evento mais poluído e do mais limpo dentre os com padrão<br>Chuva Estratiforme.....  | 120 |
| Figura 4.33 – DSD representativas dos eventos com padrão Chuva Estratiforme que<br>ocorreram durante a madrugada.....                                     | 122 |
| Figura 4.34 – Frequências relativas de ocorrência dos <i>clusters</i> nos eventos com padrão<br>Chuva Estratiforme que ocorreram no início da tarde. .... | 124 |
| Figura 4.35 – Comparação entre as DSD dos eventos dos dias 06/01/2012 (mais<br>poluído) e 20/12/2011 (mais limpo) .....                                   | 126 |
| Figura 4.36 – Comparação entre as DSD dos eventos dos dias 08/01/2012 (mais<br>poluído) e 08/12/2011 (mais limpo) .....                                   | 127 |
| Figura 4.37 – Comparação entre as DSD dos eventos dos dias 07/01/2012 (mais<br>poluído) e 28/11/2011 (mais limpo) .....                                   | 127 |
| Figura 4.38 – DSD representativas dos eventos mostrados na Tabela 4.14.....   | 133 |

## LISTA DE TABELAS

|  | <b><u>Pág.</u></b> |
|--|--------------------|
| Tabela 2.1 - Estimativas de emissões globais de aerossóis por diferentes fontes em Tg/ano .....  | 5                  |
| Tabela 2.2 - Valores de C para diferentes formas. ....   | 27                 |
| Tabela 2.3 - Valores para o ajuste da velocidade terminal de diferentes tipos de cristais de gelo .....  | 31                 |
| Tabela 2.4 - Efeitos dos aerossóis nas nuvens .....  | 33                 |
| Tabela 4.1 - Índices de correlação linear entre as concentrações numéricas de CCN e PT e as concentrações mássicas total e de BC. ....   | 58                 |
| Tabela 4.2 - Massa percentual dos compostos elementares, considerando a massa total coletada nos filtros, inclusive dos compostos orgânicos e considerando apenas a massa dos compostos inorgânicos detectados pela análise de raios-X ..... | 60                 |
| Tabela 4.3 - Resultados das análises de XRF para quatro dias distintos. ....   | 62                 |
| Tabela 4.4 - Medianas dos parâmetros obtidos pela parametrização gamma.....  | 86                 |
| Tabela 4.5 - Resultados finais da análise de <i>clusters</i> .....   | 90                 |
| Tabela 4.6 – Características gerais dos eventos selecionados para as análises.....   | 106                |
| Tabela 4.7: Valores de <i>t</i> relativos às diferenças entre as DSD dos eventos de Convecção Local, em função da carga de CCN.....  | 109                |
| Tabela 4.8 – Diferenças percentuais nos parâmetros dos eventos com padrão Chuva Estratiforme Intermediários e Mais Limpos. ....  | 115                |
| Tabela 4.9 – Características do evento mais poluído e do mais limpo dentre os dias com padrão Chuva Estratiforme. ....   | 118                |
| Tabela 4.10 – Eventos com o padrão Chuva Estratiforme que ocorreram de madrugada .....   | 121                |

|  |     |
|--|-----|
| Tabela 4.11 – Características dos eventos selecionados que ocorreram em dias com padrão Convecção Local.....   | 125 |
| Tabela 4.12 – Resultados das razões entre as variações percentuais de CCN e das características dos eventos .....  | 129 |
| Tabela 4.13 – Eventos com padrão Convecção Organizada semelhantes, associados a sistemas que causaram três pancadas de chuva seguidas nos dias em que atuaram sobre a região de medidas. ....                  | 131 |
| Tabela 4.14 – Eventos com padrão Convecção Organizada semelhantes em função da característica de estarem associados a forte pancada rápida de chuva logo seguida de precipitação mais fraca e persistente..... | 132 |

## LISTA DE SIGLAS E ABREVIATURAS

|      |   |
|------|---|
| INPE | Instituto Nacional de Pesquisas Espaciais   |
| CCN  | Núcleos de Condensação de Nuvens  |
| PT   | Particulado Total   |
| IN   | Núcleos de Gelo   |
| CTG  | Concentração Total de Gotas   |
| DSD  | Distribuição de Tamanho de Gotas de Chuvas  |
| CCNC | CCN Counter (Contador de CCN)   |
| CPC  | Condensation Particle Counter (Contador de Partículas de Condensação)                         |
| IPCC | Intergovernmental Panel for Climate Change (Painel Intergovernamental de Mudanças Climáticas) |
| TDA  | Topo da Atmosfera   |
| GCCN | Giant CCN (CCN Gigantes)  |
| DMT  | Droplet Measurements Technology   |
| IEAv | Instituto de Estudos Avançados  |
| CTA  | Centro Técnico de Aeronáutica   |
| IAE  | Instituto de Aeronáutica e Espaço   |



## LISTA DE SÍMBOLOS

|                |  |
|----------------|--|
| $e_s$          | Pressão de vapor de saturação  |
| $L_v$          | Calor latente de vaporização   |
| $R_v$          | Constante dos gases para o vapor d'água                                |
| $e'_g$         | Pressão de vapor sobre a superfície de uma gotícula de água com soluto |
| $D_{wet}$      | Diâmetro do aerossol durante o processo de crescimento por condensação |
| $D$            | Diâmetro seco do aerossol  |
| $\kappa$       | Fator <i>kappa</i> de higroscopicidade das partículas de aerossóis     |
| $\sigma_{sol}$ | Tensão superficial sobre a gota com soluto                             |
| $M_w$          | Massa molar da água  |
| $R$            | Constante universal dos gases  |
| $\rho_w$       | Densidade da água  |
| $D_v$          | Coefficiente de difusão do vapor d'água no ar                          |
| $S$            | Fração de supersaturação   |
| $v_t$          | Velocidade terminal de gotas de água líquida                           |
| $w_l$          | Quantidade de água líquida no interior de nuvens                       |
| $E_c$          | Eficiência de coleta   |
| $N$            | Concentração de IN   |
| $S_i$          | Fração de supersaturação sobre o gelo                                  |
| $\rho_{va}$    | Densidade do vapor d'água ambiente                                     |
| $\rho_{vc}$    | Densidade do vapor d'água sobre a superfície de um cristal de gelo     |
| $v_{Ti}$       | Velocidade terminal de cristais de gelo                                |
| $D_i$          | Diâmetro efetivo de cristais de gelo após seu derretimento             |
| $\bar{E}$      | Eficiência média de coleta   |
| $M_l$          | Massa de água líquida  |
| $D_m$          | Diâmetro médio de gotas de chuva ponderado pela massa                  |



## SUMÁRIO

|          | <b><u>Pág.</u></b>   |
|----------|--|
| 1        | INTRODUÇÃO ..... 1   |
| 1.1.     | OBJETIVOS ..... 3  |
| 2        | FUNDAMENTAÇÃO TEÓRICA E REVISÃO BIBLIOGRÁFICA..... 5           |
| 2.1.     | Aerossóis ..... 5  |
| 2.1.1.   | Fontes ..... 5   |
| 2.1.2.   | Características físicas ..... 6                                |
| 2.1.3.   | Aerossóis urbanos, marítimos, florestais e de desertos ..... 7 |
| 2.1.4.   | Efeitos diretos no clima ..... 10                              |
| 2.2.     | Formação de nuvens ..... 11                                    |
| 2.3.     | Crescimento e desenvolvimento de nuvens ..... 16               |
| 2.3.1.   | Processos quentes..... 18                                      |
| 2.3.2.   | Processos frios..... 22  |
| 2.3.2.1. | Nucleação do gelo ..... 23                                     |
| 2.3.2.2. | Crescimento de cristais de gelo ..... 26                       |
| 2.4.     | Impactos dos aerossóis nas nuvens ..... 32                     |
| 3        | METODOLOGIA..... 37  |
| 3.1.     | Instrumentos ..... 38  |
| 3.1.1.   | Contador de CCN ..... 38                                       |
| 3.1.2.   | Contador de particulado total..... 43                          |
| 3.1.3.   | Disdrômetro ..... 45   |
| 3.2.     | Metodologia das análises..... 46                               |

|          |   |     |
|----------|---|-----|
| 3.2.1.   | Aerossóis .....   | 46  |
| 3.2.2.   | Eventos de Precipitação .....                                     | 47  |
| 4        | RESULTADOS .....  | 49  |
| 4.1.     | Variabilidade nas concentrações de aerossóis .....                | 49  |
| 4.1.1.   | Ciclo diurno .....  | 51  |
| 4.2.     | Caracterização dos aerossóis e regime de circulação local .....   | 56  |
| 4.2.1.   | Classificações diárias .....                                      | 70  |
| 4.3.     | Caracterização dos eventos de precipitação .....                  | 82  |
| 4.3.1.   | Análise de clusters.....  | 87  |
| 4.3.2.   | Relação entre os parâmetros $m$ , $N_0$ e $\Lambda$ .....         | 96  |
| 4.4.     | Impacto dos CCN nas propriedades dos eventos de precipitação..... | 101 |
| 4.4.1.   | Estudo de casos individuais.....                                  | 117 |
| 4.4.1.1. | Eventos com padrão Chuva Estratiforme .....                       | 118 |
| 4.4.2.   | Eventos com padrão Convecção Local .....                          | 124 |
| 4.4.3.   | Eventos com padrão Convecção Organizada .....                     | 130 |
| 5        | CONCLUSÕES .....  | 135 |
|          | REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS.....                                   | 143 |

## 1 INTRODUÇÃO

O estudo dos aerossóis atmosféricos e de seus impactos no clima terrestre tem se tornado cada vez mais importante, uma vez que tal componente climática ainda é pouco conhecida e está associada a grandes incertezas (IPCC, 2007). Os aerossóis são definidos como materiais em suspensão no ar, sendo eles sólidos ou líquidos. Grande parte dos aerossóis são constituídos de poeira de solo suspensa pela ação dos ventos e pelo sal marinho emitido a partir dos oceanos. Além destas, também são fontes de aerossóis a queima de biomassa, de biocombustíveis e de combustíveis fósseis. As florestas emitem aerossóis para a atmosfera em forma de fungos, esporos, fragmentos de folhas e bactérias (ARTAXO et al. 2006). Os vulcões são responsáveis por emitir uma grande quantidade de aerossóis na atmosfera ao entrarem em erupção. Aerossóis também podem ser formados secundariamente a partir da conversão de gases em partículas.

Os efeitos dos aerossóis no clima terrestre são separados em duas categorias: os efeitos diretos e os indiretos. Os aerossóis afetam diretamente o clima ao interagir (absorção e espalhamento) com a radiação eletromagnética tanto no espectro solar quanto no terrestre (MCCORMICK e LUDWIG, 1967; HAYWOOD e BOUCHER, 2000). Esta interação impacta tanto no balanço radiativo em superfície, alterando a quantidade de radiação disponível para, por exemplo, a fotossíntese e os processos de convecção, quanto no perfil vertical de temperatura troposférica, alterando a instabilidade local. Os efeitos indiretos dos aerossóis no clima ocorrem a partir da interação destes com as nuvens. Parte do particulado atmosférico é higroscópico, ou seja, capaz de adsorver a água à sua superfície, podendo formar gotas de nuvens. Partículas que crescem pela condensação da água sobre sua superfície e formam gotas de nuvens estáveis são conhecidas como Núcleos de Condensação de Nuvens (ou *Cloud Condensation Nuclei*, CCN, como são referidas na bibliografia). O processo de transformação dos aerossóis em CCN foi primeiramente descrito por Köhler (1936) e posteriormente modificado por Petters e Kreidenweis (2007). A concentração de CCN impacta diretamente na concentração de gotas

das nuvens, alterando tanto sua refletividade quanto seu tempo de vida (HAYWOOD e BOUCHER, 2000; WARNER, 1968; TWOMEY, 1974; ALBRECHT, 1989;). Estima-se que maiores concentrações de CCN aumentam a quantidade de gotas, refletindo em um aumento no albedo das nuvens. Por outro lado, com quantidade de vapor constante, o maior número de gotas reflete em menores tamanhos das mesmas, podendo suprimir a precipitação e aumentar o tempo de vida das nuvens. Os aerossóis também podem impactar a dinâmica de nuvens frias, atuando como nucleadores de gelo. Neste caso, intensificariam a liberação de calor latente ao favorecerem o congelamento, levando a uma intensificação dos processos de precipitação. No entanto, os efeitos dos aerossóis nas nuvens ainda são pouco compreendidos e novos estudos são necessários para este fim.

O projeto CHUVA visa caracterizar os sistemas precipitantes em diversas localidades do Brasil, cobrindo as regiões Norte, Nordeste, Centro, Sudeste e Sul do País. Este projeto está montando um banco de dados sobre as chuvas, com especial atenção aos sistemas quentes, a partir de medidas com radar de dupla polarização, disdrômetros, radiômetros em micro-ondas, lidar, radiossondas, entre outros instrumentos. Este tipo de informação é muito importante para descrever e prever com maior qualidade a precipitação sobre o Brasil. Além disto, estes dados podem ser complementados com informações dos aerossóis para obter um banco de dados que possibilite o estudo do impacto das partículas nas propriedades das chuvas. No período de 23/11/2011 a 09/01/2012, o autor deste trabalho levou e instalou um contador de CCN e um contador de particulado total para o Instituto de Estudos Avançados (IEAv), em São José dos Campos, onde já estava montada e funcionando uma estação com os instrumentos do projeto CHUVA. No local também se encontravam filtros coletores de material particulado, utilizados para realizar a pesagem das partículas e análises de suas composições elementares. As informações obtidas a partir desta gama de instrumentos serão analisadas com o intuito de descrever os aerossóis locais, as características dos eventos precipitantes e os impactos que as diferenças de concentrações e tipos dos aerossóis podem ter nas chuvas.

## **1.1. OBJETIVOS**

Os objetivos deste trabalho serão divididos em três etapas. Primeiramente serão caracterizados os aerossóis da região de estudos (Instituto de Estudos Avançados – IEAv) , durante o período de 22/11/2011 a 10/01/2012. Esta caracterização será feita com base em dados meteorológicos e instrumentos capazes de contar e analisar os aerossóis. Em seguida, serão analisados os dados gerados e processados pela equipe do projeto CHUVA sobre os eventos de precipitação que passaram sobre a região no mesmo período. Estas informações serão utilizadas para caracterizar os tipos de eventos presentes na região e suas propriedades típicas, como distribuições de tamanho de gotas e intensidade de precipitação. A terceira etapa do estudo tratará da relação entre os cenários de aerossóis e as propriedades físicas dos eventos de chuva.



## 2 FUNDAMENTAÇÃO TEÓRICA E REVISÃO BIBLIOGRÁFICA

### 2.1. Aerossóis

#### 2.1.1. Fontes

O particulado atmosférico possui como principais fontes naturais a poeira do solo (corrosão e levantamento por ação dos ventos), erupções vulcânicas, emissões de sal marinho, queima de biomassa e conversões de gases em partículas. A contribuição antropogênica se deve predominantemente a queima de combustíveis, produção industrial, levantamento de poeira por automóveis em movimento, construções e degeneração de plantações. A Tabela 2.1 mostra uma estimativa de emissões globais por diferentes fontes (retirado de Seinfeld e Pandis, 2006). Observa-se que a maior fonte de aerossóis (em termos de massa) são os oceanos.

Tabela 2.1 - Estimativas de emissões globais de aerossóis por diferentes fontes em Tg/ano ( $Tg = 10^{12} g$ ).  
Fonte: Menon (2004).

| Tipo                                      | Emissão estimada |
|---|------------------|
| Sulfato                                   |                  |
| Industria                                 | 65,0-92,4        |
| Oceano                                    | 10,7-23,7        |
| Aviação                                   | 0,04             |
| Queima de biomassa                        | 2,0-3,0          |
| Carbono orgânico                          |                  |
| Combustível fóssil                        | 10-20            |
| Biomassa                                  | 30-45            |
| Carbono elementar                         |                  |
| Combustível fóssil                        | 5,8-6,6          |
| Biomassa                                  | 6,0-17,2         |
| Nitrato                                   |                  |
| Combustível fóssil                        | 0,3              |
| Biomassa                                  | 5,7              |
| Outros (homem, solo, animal, agricultura) | 74,5             |
| Sal Marinho                               |                  |
| <2 $\mu m$                                | 82               |
| >2 $\mu m$                                | 2583             |
| Poeira de solo                            |                  |
| <2 $\mu m$                                | 243              |
| >2 $\mu m$                                | 4859             |

### 2.1.2. Características físicas

Os aerossóis variam em diâmetros da ordem de alguns nanômetros ( $1 \text{ nm} = 10^{-9} \text{ m}$ ) a dezenas de micrômetros ( $1 \text{ }\mu\text{m} = 10^{-6} \text{ m}$ ). De modo geral, diz-se que partículas com diâmetros inferiores a  $2,5 \text{ }\mu\text{m}$  compõem a moda fina, enquanto que partículas maiores formam a moda grossa. Whitby e Cantrell (1976) desenvolveram um esquema idealizado para ilustrar os mecanismos de formação dos aerossóis (Figura 2.1).

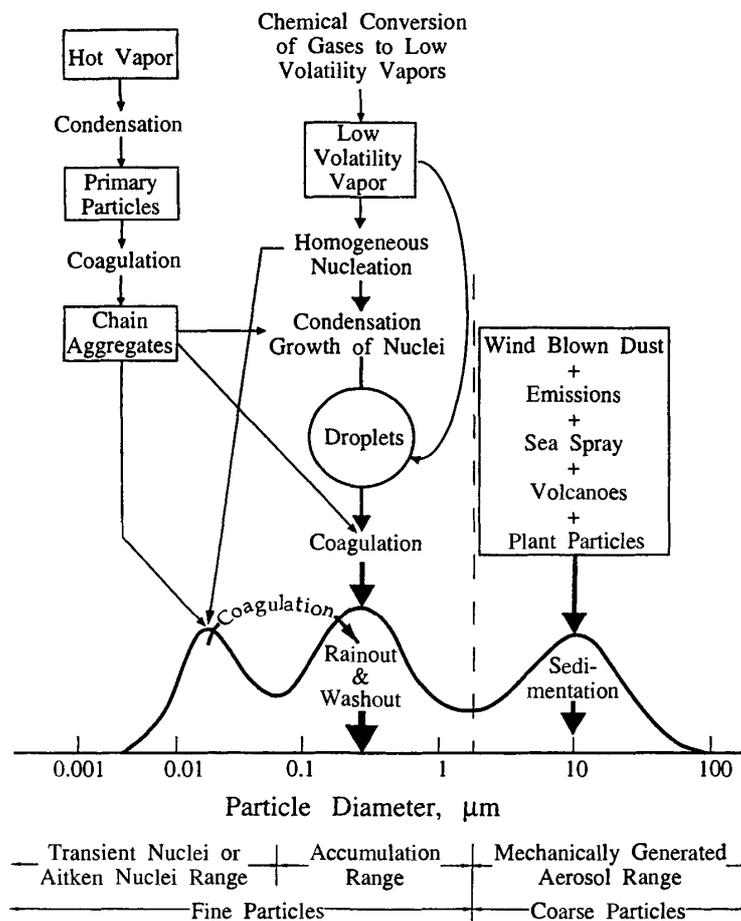


Figura 2.1 - Classificação dos aerossóis pelos diâmetros e pelos principais processos envolvidos.  
Fonte: Whitby e Cantrell (1976).

Esta figura mostra uma distribuição da área total superficial das partículas em função do diâmetro (semelhante a uma distribuição de tamanho) e os principais processos que levam a ela. Observa-se que há 3 máximos na distribuição. O

primeiro deles se refere a partículas pequenas, com diâmetros na ordem de 0,01  $\mu\text{m}$ . Estas partículas (intervalo de Aitken) são formadas principalmente pela conversão de gases em partículas e seu número é diminuído pelo processo de coagulação com partículas maiores. O segundo máximo (intervalo de acumulação) é formado principalmente por dois processos. Pode ocorrer o crescimento de partículas do intervalo de Aitken por condensação de vapor sobre suas superfícies, formando um particulado com maior tamanho. Ou então, partículas no intervalo de acumulação podem ser geradas pelo processo de coagulação de aerossóis menores. Partículas no intervalo de acumulação são retiradas da atmosfera predominantemente pelos processos de *Rainout* e *Washout*, quando os aerossóis nucleiam gotas de chuva ou são coletadas por estas quando em queda livre, respectivamente. O terceiro máximo corresponde às partículas da moda grossa, que são geradas mecanicamente através dos ventos, vulcões, spray marítimo ou mesmo por emissões de florestas. Estas partículas retornam à superfície através da sedimentação, uma vez que possuem tamanhos avantajados e são relativamente pesadas.

### **2.1.3. Aerossóis urbanos, marítimos, florestais e de desertos**

Grande parte dos aerossóis urbanos primários são gerados por emissões de indústrias, meios de transporte e pelo sistema de geração de energia. Estas partículas geralmente possuem diâmetros menores do que 0,1  $\mu\text{m}$ , contrastando com os aerossóis naturais. Zhu et al. (2002) realizaram medidas das distribuições de tamanho dos aerossóis a diferentes distâncias (levando em consideração a direção dos ventos) de uma estrada de alto tráfego de automóveis. A Figura 2.2 mostra um dos resultados desse estudo.

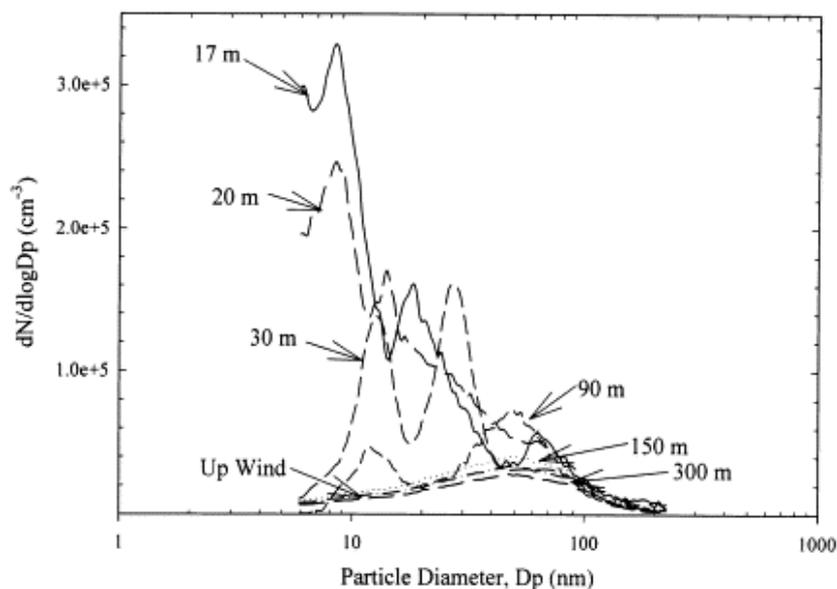


Figura 2.2 - Distribuições de tamanho dos aerossóis urbanos a diferentes distâncias de uma estrada movimentada.  
 Fonte: Zhu et al. (2002).

Observa-se claramente que à medida que se aproxima da estrada, a quantidade de particulado fino aumenta significativamente, assim como o número total de aerossóis. Nota-se que a escala de diâmetros fica abaixo de 1  $\mu\text{m}$ , o que exclui a representação dos aerossóis da moda grossa. No entanto, as concentrações de particulado nessa moda são geralmente baixas nos centros urbanos quando comparadas à quantidade de partículas da moda fina. Sendo assim, uma distribuição de tamanho típica das concentrações numéricas dos aerossóis urbanos se limita à ordem de nanômetros. A Figura 2.3 mostra distribuições típicas de concentração numérica, área de superfície e volume dos aerossóis urbanos. A partir dessas distribuições observa-se que, mesmo com a predominância numérica do particulado no intervalo de Aitken, a distribuição de área da superfície possui um máximo no intervalo de acumulação e a distribuição de volumes é bimodal, com um máximo no intervalo de acumulação e outro na moda grossa. A concentração total de particulado urbano geralmente se encontra na faixa de milhares de aerossóis por centímetro cúbico, podendo chegar a dezenas de milhares. Em termos de composição, observa-se uma diferença entre o particulado da moda fina e da

grossa. Na moda grossa, encontram-se partículas como poeira de solo, fragmentos de borracha de pneus, cinza e inclusive sal marinho. Já na moda fina há a presença tanto de aerossóis primários quanto secundários. Os primeiros são resultados de combustões, enquanto que os secundários são formados por conversões gás-partículas e resultam em pequenas partículas de sulfatos, nitratos, amônia e material orgânico.

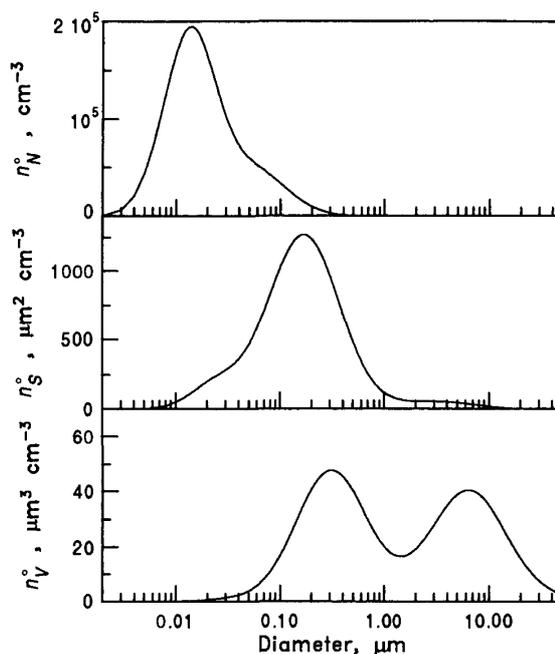


Figura 2.3 - Distribuições típicas de concentração numérica, área de superfície e volume (respectivamente, de cima para baixo) dos aerossóis urbanos. Fonte: Seinfeld e Pandis (2006).

O particulado marítimo difere drasticamente do encontrado em centros urbanos. Sobre regiões oceânicas sem a influência dos continentes, as concentrações de partículas no ar variam em torno de 100 a 300 por centímetro cúbico, sendo compostas basicamente por sal marinho. A moda grossa desse particulado representa aproximadamente 95% da massa total e de 5% a 10% da concentração numérica (SEINFELD e PANDIS, 2006).

Os aerossóis de florestas (biogênicos) possuem uma alta variabilidade de composições químicas, contendo principalmente material orgânico mas também traços de potássio, cálcio, magnésio, enxofre, fósforo, zinco e outros

elementos (ARTAXO, 2006). Predominantemente, o particulado atmosférico sobre as florestas consiste de fungos, esporos, fragmentos de folhas e bactérias. Possuem diâmetros na faixa da moda grossa e são geralmente solúveis em água, podendo atuar como CCN (YAMASOE et al., 2000; ANDREA et al., 2004).

Uma importante fonte de aerossóis são os desertos. Estas regiões possuem um solo arenoso que facilmente desprende particulado para a atmosfera através da atuação dos ventos. Os aerossóis presentes nos desertos são constituídos predominantemente de silicatos. Em termos de tamanho, tendem a se manter na moda grossa em função de sua origem mecânica. Um importante processo relativo aos aerossóis desérticos é o transporte em larga escala. Exemplos são transportes do deserto do Saara para o Atlântico Tropical Norte, afetando a temperatura de superfície do oceano e possivelmente temporadas de furacões (FOLTZ e MCPHADEN, 2008; LAU e KIM, 2007 respectivamente), e até para a Amazônia, onde podem servir como nutrientes importantes para o ecossistema local (SWAP et al. 1992).

#### **2.1.4. Efeitos diretos no clima**

As partículas de aerossóis impactam o clima terrestre ao absorver e espalhar radiação. Estes efeitos impactam nos fluxos radiativos incidentes e emergentes do sistema terrestre, influenciando a quantidade de energia disponível para os processos físicos que ocorrem no planeta.

Os efeitos diretos dos aerossóis não serão muito detalhados neste trabalho, uma vez que foge ao seu escopo. No entanto, vale notar alguns dados importantes sobre o tema. Geralmente, o impacto dos aerossóis no clima é quantificado pela diferença que o particulado gera nos fluxos energéticos no topo da atmosfera (TDA) em relação a uma atmosfera limpa. Esta diferença nos fluxos é conhecida como forçante climática e valores positivos indicam maior energia disponível para o sistema terrestre, enquanto que valores negativos indicam o oposto. Yu et al. (2006) realizaram uma revisão sobre o assunto e chegaram ao resultado de uma forçante média global de  $-5,5 \pm 0,2$

$W/m^2$  no TDA, contando com a presença de aerossóis naturais e antropogênicos. Sobre os continentes a estimativa é mais difícil de ser efetuada, em função da heterogeneidade das superfícies. No entanto, foi feita uma estimativa de  $-4,9 \pm 0,7 W/m^2$  para a forçante no TDA (novamente, considerando tanto aerossóis naturais quanto antropogênicos). Para diferenciar os aerossóis naturais dos antropogênicos, podem ser utilizadas as características físicas representativas dos dois grupos. Por exemplo, como descrito na seção 3.1.3, os aerossóis urbanos tendem a se manter na moda fina, enquanto que os aerossóis de regiões remotas possuem geralmente diâmetros maiores. Baseado nestas diferenças, Bellouin et al. (2005) estimaram uma forçante de  $-1,9 \pm 0,3 W/m^2$  no TDA para os aerossóis antropogênicos, o que representa em torno de 30 % da forçante total. Em outro estudo, realizado por Yu et al. (2004), encontrou-se uma forçante de aproximadamente  $-1,4 W/m^2$  para os aerossóis antropogênicos. Ou seja, observa-se que o impacto antropogênico sobre a distribuição de aerossóis é significativa e tende a rebater, pelo menos em parte, os efeitos do aumento da temperatura do planeta devido ao aumento na concentração de gases do efeito estufa.

## **2.2. Formação de nuvens**

Para compreender a formação de nuvens, primeiramente é interessante analisar o conceito de *pressão de vapor de saturação*. Este parâmetro representa a capacidade que determinada massa de ar possui em armazenar vapor de água. A medida da pressão de uma massa de ar composta por diversos gases (como é o caso da atmosfera) consiste da soma ponderada das pressões parciais de cada gás isoladamente. O vapor d'água possui concentrações altamente variáveis espacial e temporalmente na atmosfera e o mesmo ocorre com a sua pressão parcial exercida. Conforme se adiciona vapor em uma massa de ar, a sua pressão parcial aumenta e, ocasionalmente, alcança o valor da pressão de vapor de saturação. A partir deste ponto, acréscimos de vapor podem resultar na formação de gotículas líquidas, uma vez que está esgotada a capacidade do ar em armazenar água na forma

gasosa. Observa-se que a pressão de vapor de saturação aumenta com a temperatura, como mostra a equação de Clausius-Clapeyron:

$$\frac{d(\ln e_s)}{dT} = \frac{L_v}{R_v T^2} \quad \text{Equação 2.2.1}$$

Onde  $e_s$  é a pressão de saturação do vapor com relação ao vapor,  $L_v$  é o calor latente de vaporização,  $R_v$  é a constante dos gases para o vapor e  $T$  a temperatura. Uma vez que todos os termos à direita da equação são positivos, temos que a variação da pressão de vapor de saturação com respeito à temperatura é necessariamente positiva.

A pressão de saturação também pode ser entendida como o balanço entre os fluxos de evaporação e condensação de água através de uma superfície de separação entre um meio contendo água líquida e outro vapor d'água (como na superfície de um lago, por exemplo). Na ocasião em que os fluxos se igualam, a pressão de saturação é atingida, por isso também é conhecida como *pressão de vapor de equilíbrio*. Sobre uma superfície plana, a pressão de vapor de equilíbrio é dada pela equação de Clausius-Clapeyron, no entanto ao tratarmos superfícies curvas (como uma gotícula) o tratamento é alterado. Observa-se que a pressão de vapor de equilíbrio aumenta conforme diminui o raio de curvatura da superfície. Ou seja, para que se forme uma gotícula de água, é necessária uma pressão de vapor maior do que a pressão de vapor de saturação, sob condição denominada de *supersaturação*. A supersaturação é definida como a fração de vapor d'água presente na massa de ar que ultrapassa os 100% de umidade relativa. Uma supersaturação de 1% corresponde a 101% de umidade relativa, por exemplo.

As nuvens são compostas por gotículas de água agrupadas em suspensão na atmosfera. Uma concentração característica de gotículas de nuvens é de 100 por  $\text{cm}^3$ , com diâmetros da ordem de 10  $\mu\text{m}$  (ROGERS, 1977). De modo geral, tais gotículas poderiam se formar a partir de dois processos distintos de nucleação. O primeiro deles é conhecido como *nucleação homogênea* e ocorre em ambientes com presença apenas de vapor d'água. Neste caso, através de

colisões aleatórias entre as moléculas de vapor, pequenos núcleos embrionários poderiam se formar e começar a crescer, tomando forma de gotícula de nuvem. No entanto, para que isto ocorra, seria necessária uma supersaturação extremamente alta, uma vez que as gotículas formadas homoganeamente evaporam com facilidade em função da baixa tensão superficial. De fato, as gotículas de nuvens são formadas predominantemente pelo processo de *nucleação heterogênea*. Este processo ocorre quando há nucleação de gotas ao redor de um particulado sólido. Parte dos aerossóis encontrados na atmosfera são higroscópicos (possuem afinidade com as moléculas de água) e solúveis, sendo capazes de realizar a nucleação heterogênea. Conforme já mencionado, a esses aerossóis é associado o nome *cloud condensation nuclei* (núcleos de condensação de nuvens – CCN). Quando o vapor d'água se condensa ao redor de um CCN, este se dissolve parcial ou totalmente na água, resultando em uma supressão da evaporação da gotícula. Ou seja, o acréscimo de um soluto na gotícula diminui a supersaturação necessária para que esta se mantenha estabilizada (KÖHLER, 1936).

Inicialmente, a teoria que descreve o crescimento das gotículas de nuvens ao redor de aerossóis foi proposta por Köhler (1936), que propôs a seguinte equação para o crescimento das gotas:

$$s = \exp \left( \frac{M_w \sigma_w}{RT \rho_w D_p} - \frac{6 \nu n_s M_w}{\pi \rho_w D_p^3} \right) \quad \text{Equação 2.2.1}$$

Onde  $s$  corresponde à supersaturação sobre a superfície da gota,  $M_w$  é a massa molecular da água,  $\sigma_w$  é a tensão superficial na superfície de separação gota-ar,  $R$  é a constante universal dos gases,  $T$  é a temperatura,  $\rho_w$  é a densidade da água,  $\nu$  é o número de íons dissociados do soluto (fator de van't Hoff),  $n_s$  é o número de mols do soluto e  $D_p$  é o diâmetro da gota. Neste caso, o primeiro termo dentro da exponencial representa o efeito de Kelvin, associado à curvatura da gota e o segundo o de Raoult, ou do soluto. A solução da Equação 2.2.1 resulta em uma curva de  $s$  em função do diâmetro (ou raio) da gota, a qual é diferente para cada soluto e é conhecida como

“curva Köhler”. Por exemplo, para uma solução de sulfato de amônia  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ , com diâmetro seco inicial de 200 nm, a curva Köhler resultante é como a mostrada na Figura 2.4.

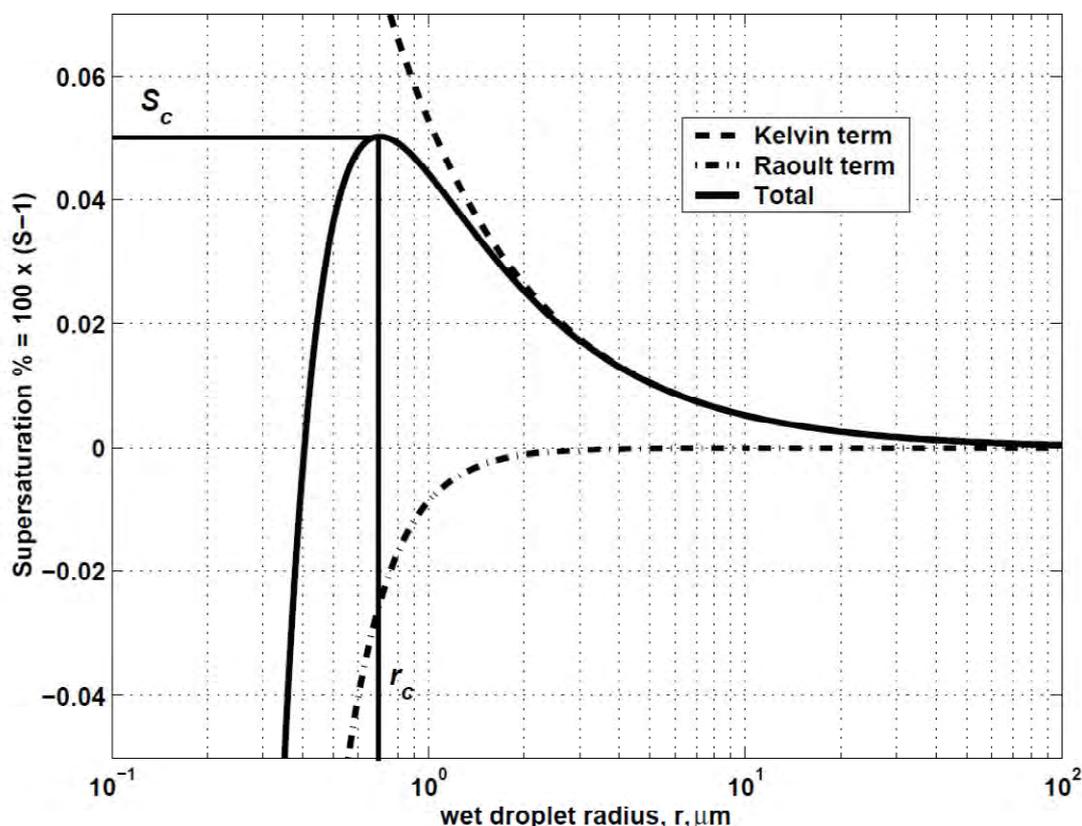


Figura 2.4 - Razão de supersaturação em função do raio da gotícula. Considerando uma partícula de sulfato de amônia com diâmetro seco inicial de 200 nm.  
Fonte: McFiggans et al. (2006).

Nesta figura pode-se observar a oposição entre os efeitos de Kelvin e de Raoult, bem como a curva Köhler resultante. Na Figura 2.4 s representa a quantidade normalizada de vapor d’água, sendo que valores maiores do que a unidade representam a supersaturação e abaixo a umidade relativa. A curva Köhler indica que há um raio crítico, associado a uma supersaturação crítica ( $S_c$  e  $r_c$ , na Figura 2.4), que separam dois comportamentos distintos do crescimento da gota. Para diâmetros menores do que o crítico, um aumento na umidade relativa implica em um aumento no tamanho da gota e vice-versa. Ou

seja, se não houver uma fonte de umidade a gota cessará o seu crescimento. No entanto, quando a gota atinge o diâmetro crítico, ela começa a crescer desenfreadamente, não importando se a supersaturação diminui ou aumenta. Assim, diz-se que uma partícula foi ativada e, portanto, se tornou CCN, se esta atingiu o diâmetro crítico e iniciou o seu crescimento autossuficiente.

Recentemente, Petters e Kreidenweis (2007) propuseram uma alteração da teoria Köhler original, com o intuito de facilitar a sua utilização. Estes autores definiram um único parâmetro (o fator de higroscopicidade  $\kappa$ ) o qual faz uma síntese de todas as propriedades químicas do CCN. Neste caso, a teoria recebe o nome de teoria  $\kappa$ -Köhler e a sua curva é representada pela equação:

$$\frac{e'_g}{e_s} = \frac{D_{wet}^3 - D^3}{D_{wet}^3 - D^3(1-\kappa)} \exp\left(\frac{4\sigma_{sol}M_w}{RT\rho_w D_{wet}}\right) \quad \text{Equação 2.2.2}$$

Onde D é o diâmetro seco do aerossol,  $D_{wet}$  é o seu diâmetro após a condensação de vapor,  $\kappa$  é o fator de higroscopicidade,  $\sigma_{sol}$  é a tensão superficial da gota,  $M_w$  é a massa molecular da água, R é a constante dos gases, T a temperatura e  $\rho_w$  a densidade da água líquida. Esta equação foi aplicada com sucesso por Rose et al. (2008), utilizando os valores: T = 298,15 K;  $\sigma_{sol} = 0,072 \text{ J/m}^2$  (tensão aproximada para a tensão superficial da água à temperatura de 298,15 K); R = 8,315 J/K;  $\rho_w = 997,1 \text{ kg/m}^3$  e  $M_w = 0,018015 \text{ kg/mol}$ . A razão  $\frac{e'_g}{e_s}$  corresponde à razão entre a pressão de vapor sobre a superfície da gotícula e a sobre uma superfície plana. Caso esta razão ultrapasse a unidade, o sistema se encontra em estado de supersaturação. O fator  $\kappa$  sintetiza as características químicas dos solutos em um único termo, o qual pode ser estimado experimentalmente. Um composto totalmente hidrofóbico possui  $\kappa = 0$ , enquanto que para um totalmente higroscópico  $\kappa = 1$ . No caso do sulfato de amônia, composto comum entre os aerossóis, este fator é de aproximadamente 0,61.

A taxa de crescimento de uma gotícula pode ser expressa matematicamente como:

$$r \frac{dr}{dt} = \frac{D_v}{\rho_w} \frac{e_s}{R_v T} \left( S + 1 - \frac{e_g}{e_s} \right) \quad \text{Equação 2.2.3}$$

Onde  $r$  é o raio da gotícula,  $S$  é a supersaturação ambiente e  $D_v$  é um coeficiente de difusão de vapor no ar. Este coeficiente é tabelado e possui unidades de  $\text{m}^2/\text{s}$ . Quanto maior for seu valor, mais rápida será a difusão de vapor no meio. Por exemplo, a  $0^\circ\text{C}$  seu valor equivale a  $2,21 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ . A dedução da equação 2.2.3 foi omitida, no entanto deduções desta relação estão presentes na bibliografia, como em Wallace e Hobbs (2006). É importante notar que só haverá crescimento da gotícula caso o termo entre parênteses seja maior do que zero, ou seja, a supersaturação ambiente deve ser maior do que a supersaturação de equilíbrio sobre a superfície da gota. Outra noção importante que se observa pela Equação 2.2.3 é a de que gotículas pequenas crescem mais rapidamente do que gotículas grandes por condensação, desde que a supersaturação ambiente seja suficiente. Em termos de distribuição de tamanho de gotas de nuvens, este fator gera uma tendência de estreitamento da mesma.

É importante notar que a principal forçante para a iniciação de nuvens é a convergência de massa próxima à superfície e consequente ascensão de ar. Conforme as parcelas de ar se elevam, elas sofrem resfriamento adiabático. Este, por sua vez, é o responsável pelo aumento da umidade relativa da parcela, possibilitando a supersaturação da mesma e a posterior formação de gotículas pelo processo mencionado nesta seção.

### **2.3. Crescimento e desenvolvimento de nuvens**

O processo de formação e crescimento de gotas a partir da condensação de vapor d'água sobre os CCN é de suma importância para o surgimento das nuvens. No entanto, este processo não é eficiente para a geração de gotas de nuvens maiores e muito menos de gotas de chuva. Para exemplificar os tamanhos típicos de aerossóis, gotículas de nuvens e gotas de chuva, McDonald (1958) desenvolveu o esquema conceitual representado na Figura 2.5 (adaptação retirada de WALLACE e HOBBS, 2006).

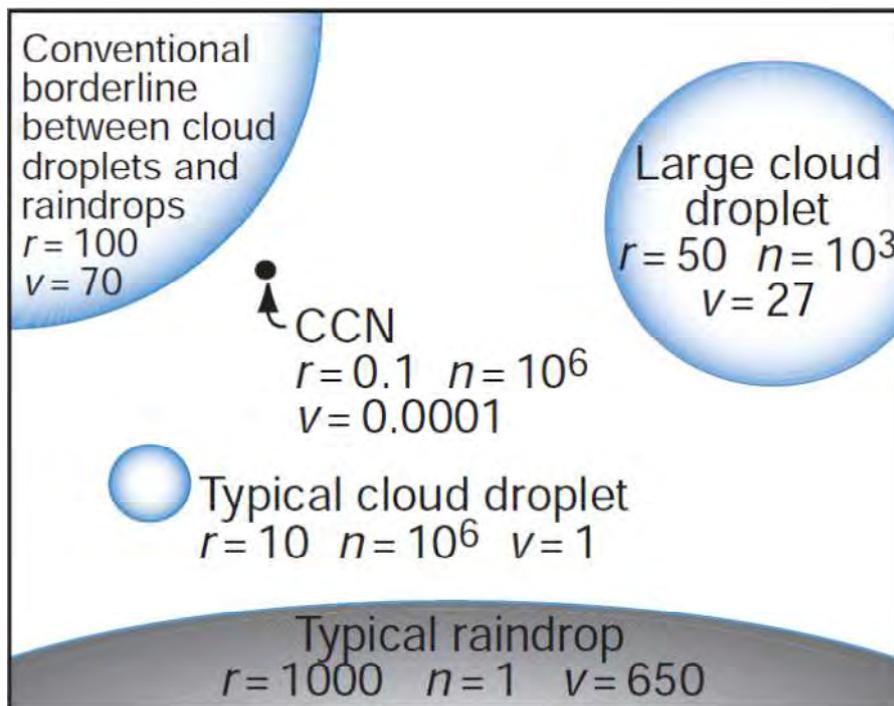


Figura 2.5 - Tamanhos típicos relativos entre CCN, gotículas de nuvens e gotas de chuva. R representa o raio em  $\mu\text{m}$ , n a concentração típica em  $\#/litro$  e v a velocidade terminal em  $\text{cm/s}$ . Nota: O tamanho do ponto preto representando o CCN está 25 vezes maior do que seria a escala indicada para facilitar sua visualização. Fonte: Wallace e Hobbs (2006).

A partir desta figura é possível observar a ampla variação em termos de tamanho entre uma partícula de CCN e uma gota de chuva. Da menor para a maior, temos na figura uma partícula de CCN, um gota típica de nuvens, uma gota grande de nuvem, uma gota na transição entre gota de nuvens e de chuva e uma gota típica de chuva. De acordo com Mason (1971), uma partícula contendo  $10^{-12}$  g de sulfato de amônia leva em torno de 14,5 minutos para crescer de  $1,5 \mu\text{m}$  a  $20 \mu\text{m}$  em termos de diâmetro. Este seria, portanto, o tempo necessário para que uma nuvem se forme apenas a partir da condensação de vapor d'água sobre os CCN. No entanto, para que seja formada precipitação, é necessário a presença de gotas grandes no interior da nuvem, como por exemplo a de diâmetro igual a  $100 \mu\text{m}$  no canto superior direito da Figura 2.5. Neste caso, a mesma partícula inicial de  $1,5 \mu\text{m}$  de diâmetro levaria cerca 11,5 horas para atingir tal tamanho. Tal intervalo de tempo é muito superior ao que geralmente ocorre entre a formação da nuvem e

o início da precipitação. Ou seja, observa-se que o processo de condensação de vapor d'água sobre os CCN é relativamente eficiente para gotículas pequenas, no entanto não é eficiente para produzir precipitação. A seguir, serão descritos outros processos que ocorrem no interior das nuvens e que são responsáveis pela presença de precipitação.

### 2.3.1. Processos quentes

Denomina-se nuvem quente aquela que possui seu topo abaixo da isoterma de 0°C e, portanto, possui apenas água em estado líquido. Os mecanismos de crescimento das gotas desse tipo de nuvens são os de condensação sobre CCN já mencionado e o processo conhecido como *colisão-coalescência* (ou *coleta*). Este ocorre devido às diferentes reações que gotas com tamanhos distintos têm com relação à força gravitacional. Ou seja, gotas maiores tendem a cair mais rapidamente com relação às gotas menores. As forças atuantes em uma gota são (desconsiderando efeitos elétricos) a gravitacional (peso), a de empuxo e a de arrasto. Estima-se que as gotas precipitantes caem com velocidade constante, à chamada *velocidade terminal*. Esta velocidade corresponde à situação em que as três forças atuantes na gota estão em equilíbrio. Na prática, costuma-se calcular a velocidade a partir de uma relação do tipo:

$$v_t = kr^\alpha \quad \text{Equação 2.3.1.1}$$

Onde  $k$  e  $\alpha$  são constantes positivas e  $v_t$  é a velocidade terminal. As constantes mencionadas podem, no entanto, variar de acordo com o intervalo de diâmetros das gotas estudadas. De acordo com Rogers (1977) e Beard (1976):

$$k = 1,19 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-1} \text{ s}^{-1} \quad e \quad \alpha = 2 \quad \text{para} \quad r < 40 \mu\text{m} \quad (\text{lei de Stokes})$$

$$k = 8 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1} \quad e \quad \alpha = 1 \quad \text{para} \quad 40 \mu\text{m} < r < 600 \mu\text{m}$$

$$k = 2,01 \cdot 10^3 \text{ cm}^{1/2} \text{ s}^{-1} \quad e \quad \alpha = \frac{1}{2} \quad \text{para} \quad 600 \mu\text{m} < r < 2000 \mu\text{m}$$

Mesmo com esta variação nos termos  $k$  e  $\alpha$ , é possível ver que as velocidades terminais das gotas aumentam com o diâmetro. O conceito básico do processo

de colisão-coalescência é que as gotas maiores, por caírem mais rápido, tendem a coletar as gotas menores em seu caminho, crescendo rapidamente durante o deslocamento e ganhando velocidade. É possível mostrar que a equação de crescimento de gotas por colisão-coalescência é dada aproximadamente por:

$$\frac{dr}{dt} = \frac{v_t \cdot w_l \cdot E_c}{4\rho_w} \quad \text{Equação 2.3.1.2}$$

Onde  $w_l$  é o conteúdo de água líquida das gotículas coletadas (pode variar entre 0,5 e 5 g/m<sup>3</sup> em nuvens do tipo cumulus) e  $E_c$  é conhecido como *eficiência de coleta* e será mais detalhado adiante. Substituindo a equação 2.3.1.1 na 2.3.1.2, obtemos:

$$\frac{dr}{dt} = \frac{k \cdot w_l \cdot E_c}{4\rho_w} \cdot r^\alpha \quad \text{Equação 2.3.1.3}$$

Ou seja, ao contrário do crescimento por condensação, as gotas maiores tendem a crescer mais rápido do que as menores pelo processo de colisão-coalescência. Neste caso, a tendência é um alargamento na distribuição de tamanho das gotas da nuvem. É importante notar que uma gota grande não coleta todas as gotas em seu deslocamento durante a precipitação. Por este motivo define-se o termo  $E_c$ , o qual representa a fração das gotas coletadas. Este termo é subdividido como o produto de duas outras eficiências: a de colisão e a de coalescência. A eficiência de colisão corresponde à fração entre o número de colisões ocorridas durante a queda da gota coletora e o número de gotas presentes no seu volume geométrico de coleta. Ou seja, mesmo que haja uma gota menor no caminho da gota coletora, não necessariamente ocorrerá colisão, uma vez que a gotícula pode ser desviada em função do deslocamento de ar da gota maior. Por outro lado, o fato de haver colisão não garante que haverá coalescência. A eficiência de coalescência é definida como o número de gotas coletadas sobre o total de colisões. Podem ocorrer basicamente três processos na colisão entre uma gota coletora e uma gotícula menor. O primeiro é a coalescência completa, onde a gotícula é totalmente coletada pela gota maior. Em algumas ocasiões pode haver uma coalescência

temporária e posteriormente uma separação das duas gotas. O terceiro processo que pode ocorrer é uma divisão em diversas gotas menores logo após a colisão. Basicamente, as eficiências de colisão e de coalescência dependem da relação entre o raio da gota coletora e o da coletada. As Figuras 2.6 e 2.7 ilustram esse aspecto (WALLACE e HOBBS, 2006).

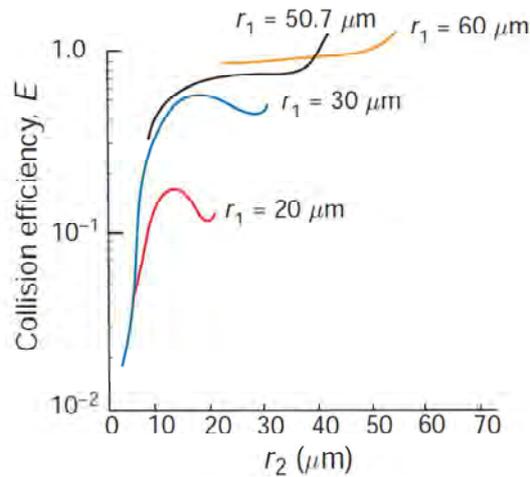


Figura 2.6 - Eficiência de colisão para diferentes relações entre o raio da gota coletora ( $r_1$ ) e o da coletada ( $r_2$ ).

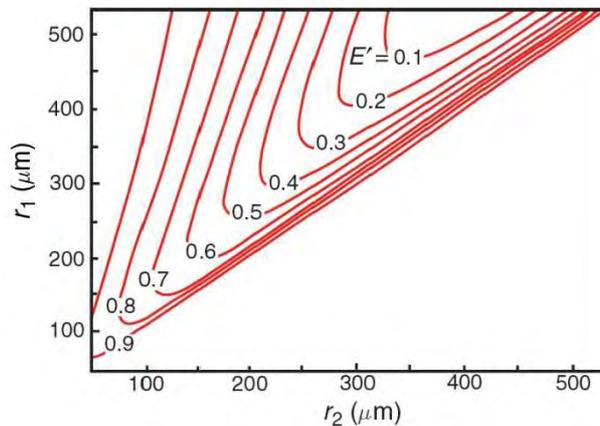


Figura 2.7 - Eficiência de coalescência em função da relação entre os raios da gota coletora ( $r_1$ ) e da coletada ( $r_2$ ).

Pela figura 2.7 pode-se observar que a eficiência de coalescência corresponde praticamente à unidade no caso em que  $r_1 \gg r_2$ . Nesta situação, com gota coletora muito maior do que a coletada, o fator limitante para haver coalescência é haver colisão. No caso da eficiência de colisão, observa-se que esta tende a se aproximar da unidade conforme o raio da gota coletora

aumenta. De modo geral, o valor do termo  $E_c$  tende a ser próximo da unidade desde que a gota coletora possua raio suficientemente grande.

Observando a eficiência dos processos de crescimento por condensação e por colisão-coalescência, é possível perceber que há uma lacuna na explicação teórica do crescimento de gotas de nuvens. O processo de condensação é eficiente para gotículas pequenas, principalmente abaixo de 15  $\mu\text{m}$ . Por outro lado, o processo de colisão-coalescência necessita de uma gotícula de 25  $\mu\text{m}$  ou mais de raio para se tornar eficiente. Ou seja, os dois processos descritos até o momento não são suficientes para explicar por completo o desenvolvimento de nuvens quentes, uma vez que ambos são ineficientes para gotas no intervalo entre 15  $\mu\text{m}$  e 25  $\mu\text{m}$ . Sendo assim, se faz necessária a presença de processos complementares que realizem a ligação entre o crescimento por condensação e o por colisão-coalescência. Wallace e Hobbs (2006) resumem tais processos em quatro possibilidades. 1) Presença de CCN gigantes (GCCN, como encontrado na literatura): os GCCN são partículas de CCN com raios superiores a 3  $\mu\text{m}$ , podendo chegar a tamanhos da ordem de 100  $\mu\text{m}$ . Estas partículas podem acelerar a iniciação de precipitação, principalmente sobre os continentes, uma vez que já possuem tamanhos próximos aos de gotículas de nuvens, facilitando o aparecimento de gotas maiores. 2) Efeito da turbulência no interior de nuvens: este fator gera flutuações nas características internas das nuvens, podendo levar a um alargamento da distribuição de tamanho de suas gotas. Flutuações nas supersaturações interiores à nuvem podem levar à mistura entre parcelas de ar saturadas e não saturadas, gerando evaporação de parte das gotas. Cálculos numéricos indicam que este processo geraria aumentos locais na supersaturação, aumentando a taxa de crescimento das gotas por condensação e também um aumento nas eficiências de colisão e coalescência. Flutuações nas velocidades verticais no interior das nuvens também favorece a colisão-coalescência através de maior movimentação das gotas, aumentando a possibilidade de colisões. 3) Efeito radiativo: uma gotícula geralmente é mais quente do que o ambiente ao seu redor devido ao aquecimento pela liberação de calor latente durante a condensação. No entanto, a gotícula também resfria

por perda radiativa, que aumenta em função do raio. Ou seja, quanto maior for a gotícula, maior será a perda radiativa e menor será a diminuição na supersaturação sobre a superfície da gota. Assim, gotículas maiores tendem a crescer mais rapidamente do que o predito sem considerar a radiação, gerando um alargamento na distribuição de tamanho das gotas. 4) Crescimento estocástico (ou estatístico): na teoria inicial de desenvolvimento de nuvens quentes estas são consideradas de maneira uniforme, ou seja, com conteúdo de água líquida distribuído homogeneamente, bem como as supersaturações. Isto implica que nuvens com a mesma distribuição de tamanho de gotas e conteúdo de água líquida se desenvolvem identicamente. No entanto, isto pode não ser necessariamente verdadeiro e, ao considerar possíveis variações estatísticas de propriedades das nuvens, o desenvolvimento das gotículas é afetado de maneira a alargar a distribuição de tamanho, reproduzindo com mais fidelidade as observações.

### **2.3.2. Processos frios**

Nuvens frias são aquelas que ultrapassam a isoterma de 0°C e, portanto, podem conter água em seus três estados. Isto torna os processos microfísicos das nuvens frias mais complexos do que os encontrados nas nuvens quentes, uma vez que é necessário o tratamento da interação entre vapor, gotas líquidas e cristais de gelo. Dentre as nuvens frias podem haver as *mistas*, onde coexiste água líquida e sólida e as *congeladas*, havendo presença unicamente de gelo.

Mesmo com temperaturas inferiores a 0°C no interior de nuvens frias podem existir gotas de água líquida, sendo conhecidas como gotas *super-resfriadas*. A presença destas gotas é possibilitada pois o seu congelamento depende de alguns fatores que nem sempre estão presentes (como será mais detalhado a seguir).

### 2.3.2.1. Nucleação do gelo

Assim como ocorre a nucleação de gotas líquidas na formação de nuvens quentes, também há o processo de nucleação para formação de partículas congeladas. Este processo, no entanto, pode ocorrer não somente através do congelamento de água líquida, mas também da sublimação direta do vapor, processo conhecido como *deposição*. Vale notar que a supersaturação com relação ao gelo é diferente da supersaturação com relação à água líquida. Isto pode ser exemplificado ao analisar a Equação 2.2.1. Uma vez que o calor latente de congelamento/fusão é diferente do de condensação/vaporização, a curva de supersaturação em função da temperatura é diferente entre o gelo e a água. Sabendo-se que o calor latente de fusão é maior do que o de vaporização, a Equação 2.2.1 diz que a pressão de equilíbrio com relação ao gelo decai mais rapidamente com a queda de temperatura do que no caso da água líquida. Em situações de temperaturas inferiores a 0°C, onde podem coexistir gotas super-resfriadas e cristais de gelo em nuvens frias, observa-se que a supersaturação é menor sobre o gelo, favorecendo seu crescimento sobre as gotículas super-resfriadas.

A nucleação de partículas de gelo pode ocorrer de maneira homogênea ou heterogênea, dependendo da presença ou não de partículas de aerossóis. Ao contrário do caso da nucleação de gotas líquidas, a nucleação homogênea do gelo é importante sob as condições atmosféricas encontradas nas nuvens, no entanto somente no caso de congelamento de gotas super-resfriadas. A nucleação homogênea por deposição necessitaria de uma supersaturação sobre o gelo mais elevada do que as observadas nas nuvens frias. Para que ocorra nucleação homogênea em gotas super-resfriadas, é necessária a criação de embriões de gelo no interior da gota líquida. Como no caso da nucleação em nuvens quentes, este embrião deve atingir tamanho suficiente para se manter estável e possibilitar o seu crescimento pelo congelamento da gota líquida. Experimentos em laboratório mostram que abaixo de -41°C todas as gotículas super-resfriadas maiores do que 1  $\mu\text{m}$  se congelam homogeneamente, formando partículas de gelo. Gotas maiores se congelam em

temperaturas mais quentes. Em nuvens altas como as do tipo Cirrus (Ci) ou mesmo em topos de nuvens espessas como as Cumulonibus (Cb) são observadas temperaturas frias o suficiente para fazer com que a nucleação homogênea do gelo seja significativa.

As partículas de aerossóis além de servirem como CCN também podem servir como nucleadores de gelo, neste caso recebendo o nome de *Ice Nuclei* (Núcleos de Gelo – abreviado como IN na literatura). Os IN servem como catalisadores para o processo de nucleação de gelo, facilitando o aparecimento de cristais de gelo. Na presença de IN, pode haver o congelamento de gotas super-resfriadas a temperaturas tão altas quanto, por exemplo, -2°C. Quando um IN se encontra no interior de uma gota super-resfriada no ato do congelamento, ele recebe o nome de *núcleo de congelamento*. No entanto, partículas de IN podem gerar cristais por outros processos também. Se uma gota super-resfriada pura colide com um IN e é congelada, este recebe o nome de *núcleo de contato*. Por outro lado, também pode ocorrer deposição do vapor diretamente sobre o IN, o qual recebe o nome de *núcleo de deposição*. Estes três processos podem ocorrer no interior de uma nuvem fria e são significativos para a formação de cristais de gelo. Ao contrário dos CCN, os IN mais eficientes são partículas insolúveis em água, sendo grande parte proveniente de minerais presentes no solo. Partículas orgânicas também podem ser eficientes nucleadoras de gelo. De modo geral, as concentrações de IN são bem inferiores às de CCN e são fortemente dependentes da temperatura, sendo que quanto mais frio o ambiente, melhores serão as condições para aumento na concentração de IN. Uma concentração típica de IN a -20°C corresponde a 1 por litro de ar, podendo aumentar em uma ordem de grandeza a cada 4°C de resfriamento. Algumas relações foram desenvolvidas para tentar associar a temperatura e a supersaturação com relação ao gelo com a quantidade de IN. Duas dessas equações são (Wallace e Hobbs, 2006):

$$\ln N = a(T_1 - T) \quad \text{Equação 2.3.2.1.1}$$

$$N = \exp\{b + c[100(S_i - 1)]\} \quad \text{Equação 2.3.2.1.2}$$

Onde  $N$  é a concentração de IN em  $\text{litros}^{-1}$ ,  $a$  é um fator que varia de 0,3 a 0,8,  $T_1$  é a temperatura para a qual se forma 1 IN por litro,  $T$  a temperatura,  $b$  equivale a -0,639,  $c$  vale 0,1296 e  $S_i$  é a supersaturação com respeito ao gelo. No entanto, ao comparar tais relações com observações de nuvens chega-se a um impasse representado na Figura 2.8.

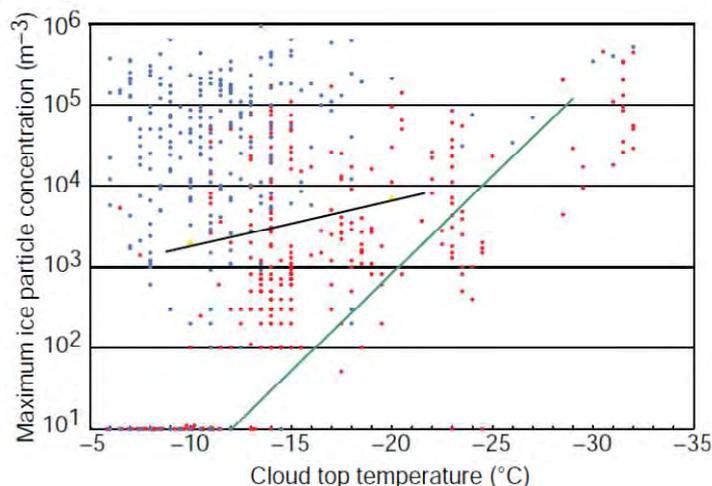


Figura 2.8: Concentrações máximas de IN observadas em função da temperatura do topo das nuvens. Os pontos azuis correspondem a nuvens Cumuli marítimas em estágio maduro e os vermelhos a nuvens continentais cumuliformes. A linha verde corresponde à equação 2.3.2.1.1, com  $a = 0,6$  e  $T_1 = 253 \text{ K}$  e a preta à equação 2.3.2.1.2, assumindo condições de saturação com relação à água líquida. Fonte: Wallace e Hobbs (2006).

Como pode ser observado, as concentrações de IN obtidas pelas equações se mantiveram bem diferentes das observações, sendo que em diversas ocasiões foram medidas concentrações de IN algumas ordens de grandeza maiores do que as esperadas pelas equações 2.3.2.1.1 e 2.3.2.1.2. Isto ilustra um processo exclusivo das nuvens frias, que é a *multiplicação do gelo*.

A multiplicação do gelo é a responsável pelas observações de concentrações maiores de partículas de gelo do que de IN. Ou seja, uma partícula formada a partir de um IN pode ser utilizada para formar diversas outras partículas de gelo. Dois processos podem ser exemplificados para a multiplicação do gelo. O primeiro é a quebra de cristais de gelo delicados por granizos mais resistentes.

O segundo é o processo chamado *Hallett-Mossop*. Quando uma gota super-resfriada se choca com um granizo grande ela poderá não se congelar instantaneamente. Preferencialmente entre as temperaturas de -3°C e -8°C, pode ser formada uma “ponte” de gelo entre a gota e o granizo e a gota começa a congelar por fora. Em dado momento, fica configurada uma situação de uma casca de gelo ao redor da gotícula líquida e esta estrutura se mantém conectada ao granizo. A gotícula no interior da casca eventualmente se congela, estilhaçando a casca. Estes estilhaços servem, então, como novos núcleos de gelo, aumentando a concentração de cristais possível.

### 2.3.2.2. Crescimento de cristais de gelo

Os cristais de gelo, assim como as gotas líquidas, podem crescer pela difusão de vapor. Em geral, no interior das nuvens mistas, o ambiente é praticamente saturado com relação à água e, portanto, supersaturado com relação ao gelo. Portanto, as derivações das equações para o crescimento de partículas congeladas se dá de maneira semelhante às de gotículas líquidas. No entanto, cristais de gelo podem tomar formas mais complexas do que as gotas de água, sendo mais adequada a quantificação de seu crescimento em termos de sua massa e não dimensões físicas. Os tipos de formas de cristais de gelo que podem ser formados dependem tanto da supersaturação quanto da temperatura ambiente. Libbrecht (2005) resumiu tais formas na Figura 2.9. O crescimento destes cristais pode ser equacionado genericamente como:

$$\frac{dM}{dt} = 4\pi D_v \cdot C \cdot (\rho_{va} - \rho_{vc}) \quad \text{Equação 2.3.2.2.1}$$

Onde M é a massa do cristal, D a condutividade do vapor no ar, C um parâmetro relativo à forma da partícula,  $\rho_{va}$  é a densidade de vapor ambiente e  $\rho_{vc}$  é a densidade de vapor na superfície do cristal. O parâmetro C pode tomar diversas formas, sendo três delas mostradas na Tabela 2.2.

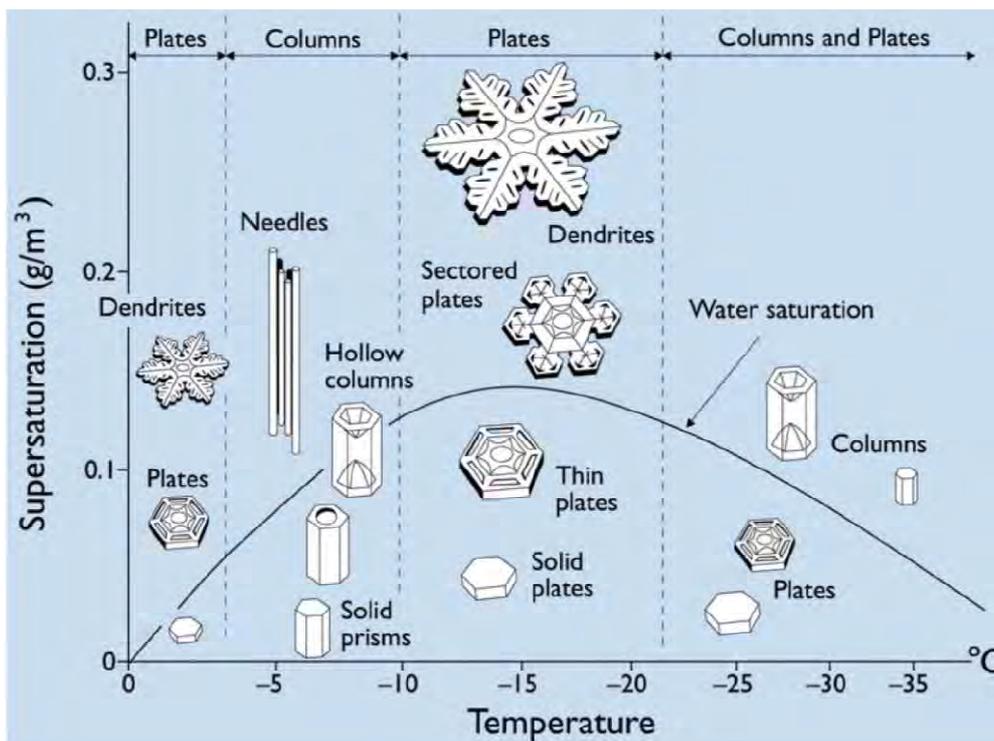


Figura 2.9: Formas típicas de cristais de gelo formadas pela deposição de vapor, em função da temperatura ambiente e da supersaturação com relação ao gelo. Nas colunas da esquerda para a direita temos as placas (e dendritos), as colunas (inclusive as agulhas bem finas), placas maiores e colunas e placas.

Tabela 2.2: Valores de C para diferentes formas.

| Forma                                   | C  |
|---|--|
| Esfera                                  | $r$  |
| Disco Circular                          | $2r/\pi$   |
| Esferoide (raio maior $a$ e menor $b$ ) | $\frac{A}{\ln\left[\frac{a+A}{b}\right]}, A = (a^2 - b^2)^{1/2}$ |

De acordo com Pruppacher e Klett (1980), as formas de placas hexagonais e os dendritos podem ser aproximados por discos circulares e as colunas por esferoides onde  $a \gg b$  com boa coincidência com as observações. Para as colunas, C pode ser simplificado como  $C = \frac{a}{\ln\left(\frac{2a}{b}\right)}$ .

O crescimento dos cristais também pode ser expresso em função da supersaturação com relação ao gelo. Neste caso:

$$\frac{dM}{dt} = 4\pi \cdot C \cdot G_i S_i \quad \text{Equação 2.3.2.2.2}$$

Onde  $G_i = D\rho_{va}$  e  $S_i = (e_a/e_i)-1$ .  $S_i$  é a supersaturação com relação ao gelo, sendo que  $e_i$  é a pressão de vapor com relação ao gelo sobre o cristal. A partir da equação 2.3.2.2.2, observa-se que o crescimento dos cristais é proporcional ao termo  $G_i S_i$ , independente de sua forma. De acordo com Wallace e Hobbs (2006), este termo varia como mostrado na Figura 2.10, considerando um ambiente saturado com relação à água e pressão ambiente de 1000 hPa.

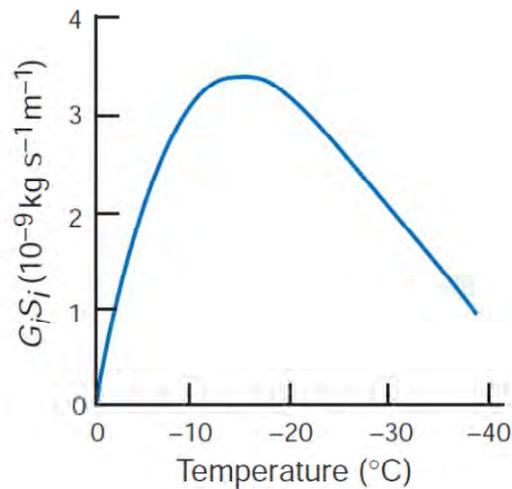


Figura 2.10: Termo  $G_i S_i$  em função da temperatura. Condições de saturação com relação à água e pressão ambiente de 1000 hPa foram consideradas.

O máximo da curva mostrada na Figura 2.10 se situa em torno de  $-14^\circ\text{C}$ , temperatura para a qual o crescimento dos cristais de gelo por difusão é máximo. É importante notar que em um ambiente saturado com relação à água as gotículas líquidas serão desfavorecidas para o crescimento. No entanto, neste mesmo ambiente, o ar está supersaturado com relação ao gelo e, portanto, os cristais crescerão. Por exemplo, um ambiente saturado com relação à água e com temperatura de  $-10^\circ\text{C}$  está supersaturado com relação ao gelo em 10%. O mesmo ambiente a  $-20^\circ\text{C}$  possui uma supersaturação com

relação ao gelo de 21%. Estes valores superam (e muito) os de supersaturação com relação à água líquida, que raramente ultrapassam 1%. Desta maneira, o ambiente favorece o crescimento dos cristais de gelo em detrimento das gotas super-resfriadas, processo que é mais significativo em ambientes com temperaturas em torno de  $-14^{\circ}\text{C}$ . Este mecanismo é conhecido como processo de Bergeron-Findeisen.

As partículas de gelo também podem crescer através de colisões com outros hidrometeoros. Neste caso, pode haver colisões de cristais de gelo com gotas super-resfriadas ou mesmo com outras partículas de gelo. Caso ocorra colisão entre um cristal de gelo e uma gota super-resfriada e aconteça a junção dos dois, o processo recebe o nome de *acrecção*. Caso duas partículas de gelo se juntem, é configurado o mecanismo de *agregação*.

O processo de *acrecção* ocorre em nuvens mistas e é de extrema importância pois influencia diretamente na velocidade terminal dos cristais, podendo aumentar sua eficiência em crescer ainda mais por colisões. Vale notar que a eficiência de coalescência no processo de *acrecção* é praticamente 1, uma vez que as gotas super-resfriadas se congelam quase imediatamente após o contato com o cristal de gelo, unindo-se a este. No entanto, a eficiência de colisão pode não ser tão elevada, uma vez que cristais de gelo podem possuir velocidades terminais semelhantes. Exemplos de partículas formadas por *acrecção* são mostrados na Figura 2.11.

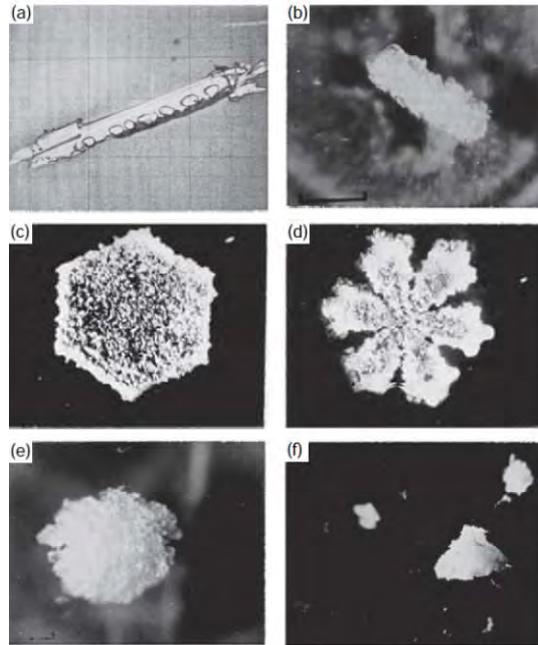


Figura 2.11: Formas típicas de cristais gerados pelo processo de acreção. a) Agulha após poucas acreções; b) coluna após várias colisões; c) placa; d) dendrito; e) neve granular (conhecida como graupel na literatura); f) graupel em formato cônico.  
 Fonte: Wallace e Hobbs (2006).

É possível observar que os cristais podem manter sua forma original mesmo após o processo de acreção. No entanto, se o processo for muito intenso, podem tomar formas como as da Figura 2.11 e) e f), conhecidas como *graupel*. Este tipo de partícula é importante para os processos de crescimento do gelo pois sua velocidade terminal aumenta rapidamente com o diâmetro. Rogers e Yau (1989) determinaram uma equação para a velocidade terminal dos cristais de gelo:

$$v_{Ti} = a_v D_i^{b_v} \quad \text{Equação 2.3.2.2.3}$$

Onde  $v_{Ti}$  é a velocidade terminal em cm/s do cristal,  $D_i$  é o diâmetro da gota resultante do derretimento de dendritos, placas ou colunas ou o diâmetro da esfera que circunda um graupel e  $a_v$  e  $b_v$  são fatores de ajuste, mostrados na Tabela 2.3.

Tabela 2.3: Valores para o ajuste da velocidade terminal de diferentes tipos de cristais de gelo, segundo Rogers e Yau (1989).

| Tipo do cristal  | $a_v$ | $b_v$ |
|------------------|-------|-------|
| Graupel          | 343   | 0,6   |
| Dendrito         | 160   | 0,3   |
| Placas e Colunas | 234   | 0,3   |

O aumento de massa de cristais que crescem por acreção pode ser descrito pela equação:

$$\frac{dM}{dt} = \bar{E}M_l\pi R^2(v_{Ti} - v_t) \quad \text{Equação 2.3.2.2.4}$$

Onde  $\bar{E}$  é a eficiência média de coleta,  $M_l$  é a quantidade de água líquida,  $R$  é o raio efetivo do cristal,  $v_{Ti}$  é a sua velocidade e  $v_t$  é a velocidade terminal das gotas a serem coletadas. Observa-se, assim como no caso do processo de colisão-coalescência, que a acreção é mais eficiente para cristais maiores. No interior de nuvens muito ativas, podem ser formadas as pedras de granizo, que se diferenciam do graupel tanto pela aparência física quanto pelo seu processo de formação. O granizo possui um crescimento *úmido*, onde sua superfície é coberta por uma camada de água, formada em regiões no interior da nuvem com temperaturas próximas à 0°C. Desta maneira, o granizo se forma com menos protuberâncias do que o graupel. Além disto, também é mais denso, uma vez que é menos poroso. Granizos com diâmetros de 1 cm são relativamente comuns em tempestades severas.

O processo de agregação pode ser representado pelas mesmas equações que as do processo de acreção, no entanto é necessária a troca da quantidade de água líquida  $M_l$  na equação 2.3.2.2.4 para a quantidade de gelo. A eficiência com que a agregação ocorre não é tão compreendida quanto as eficiências de colisão e coalescência no caso de nuvens quentes. No entanto, estima-se que é dependente da temperatura, sendo mais eficientes para temperaturas acima

de  $-10^{\circ}\text{C}$  (e menores do que  $0^{\circ}\text{C}$ ). Estruturas formadas por agregação são ilustradas na Figura 2.12.

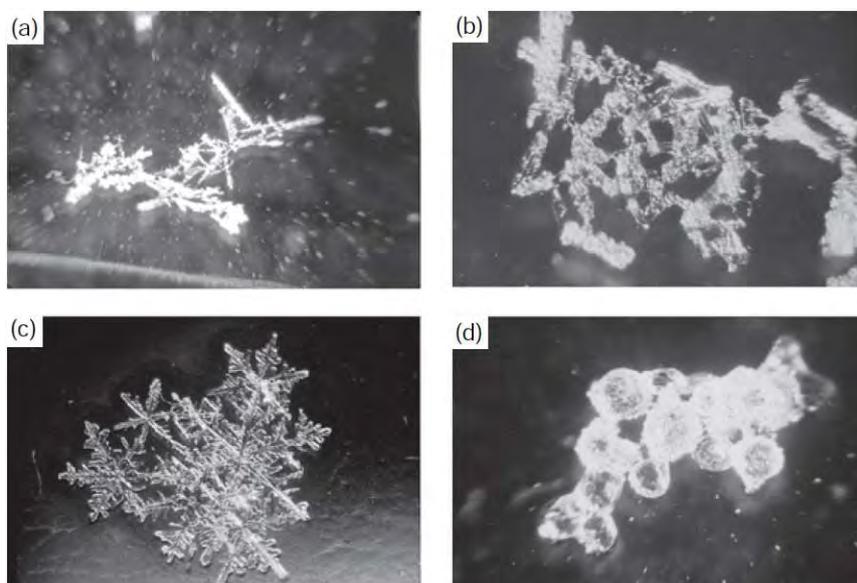


Figura 2.12: Estruturas formadas pelo processo de agregação entre a) agulhas, b) colunas, c) dendritos e d) gotas congeladas. Retirado de Wallace e Hobbs (2006).

#### **2.4. Impactos dos aerossóis nas nuvens**

A presença dos aerossóis afeta as propriedades de nuvens ao participarem dos processos descritos mencionados neste capítulo. Como podem ocorrer diversos processos simultaneamente e pela dificuldade de realizar observações no interior de nuvens, a determinação dos impactos finais dos aerossóis sobre as nuvens se torna de difícil realização. No entanto, diversos estudos foram realizados para este fim, os quais são brevemente resumidos na Tabela 2.4 (adaptado de LOHMANN e FEICHTER, 2005).

Tabela 2.4 - Efeitos dos aerossóis nas nuvens.

| <b>Efeito</b>                      | <b>Descrição</b>   |
|------------------------------------|--|
| Efeito Twomey                      | Twomey (1959) previu um aumento no albedo das nuvens com quantidade de água líquida constante em função de aumento da concentração de aerossóis. Com maior quantidade de CCN, maior será a disputa pelo vapor d'água no interior da nuvem, aumentando a quantidade de gotas e ao mesmo tempo diminuindo o raio médio destas. A maior concentração de gotas seria a responsável pelo aumento no albedo. |
| Efeito no tempo de vida das nuvens | Em nuvens com quantidade de água líquida variável, o aumento na concentração de aerossóis aumenta a quantidade de gotas e diminui o raio médio destas (de maneira semelhante ao Efeito Twomey acima). Gotas menores são menos eficientes em gerar precipitação, se mantendo em suspensão por mais tempo e, portanto, aumentando o tempo de vida da nuvem.  |
| Efeito de Absorção                 | Alguns aerossóis são eficientes em absorver a radiação solar, como é o caso de partículas de fuligem geradas em queimadas. A presença destas partículas no interior das nuvens pode gerar evaporação das gotículas, uma vez que ao absorverem radiação geram um aquecimento do ar ao seu redor. Este efeito tende também a diminuir a quantidade de precipitação.                                      |

Fonte: Lohmann e Feichter, 2005

Continua

Tabela 2.4 – Continuação.

|                                |   |
|--------------------------------|---|
| <p>Efeito em nuvens mistas</p> | <p>Este efeito ainda é pouco conhecido e resultados controversos são encontrados na bibliografia. Estudos observacionais (ROSENFELD, 2000 e ROSENFELD e WOODLEY, 2000) e de modelagem (KHAIN et al., 2001 e NOBER et al., 2003) encontraram supressão de precipitação em função do aumento da carga de aerossóis. Este efeito foi justificado pela diminuição do raio médio das gotas. Por outro lado, Khain et al., 2004 utilizaram um modelo microfísico detalhado e encontraram maior precipitação em nuvens poluídas. Isto foi justificado pela diminuição de queda de garoa, onde mais gotas se tornam disponíveis para os processos frios das nuvens, aumentando a eficiência da geração de precipitação. Outros estudos, como os de Zhang et al. (2005) e Seifert e Beheng (2005), também obtiveram resultados onde nuvens poluídas precipitaram mais.</p> |
| <p>Efeito de Glaciação</p>     | <p>O aumento na quantidade de aerossóis no interior de uma nuvem pode aumentar a disponibilidade de IN. Isto pode levar a aumento da eficiência dos processos frios, aumentando a precipitação. Este efeito é altamente não linear, levando em consideração os processos de multiplicação do gelo que ocorrem em nuvens frias, bem como a interação dos cristais de gelo com gotas de água líquida (LOHMANN e FEICHTER, 2005).</p>  |

Continua

Tabela 2.4 – Conclusão.

|  |  |
|--|--|
| Efeito no processo de acreção              | Aumento na carga de CCN leva a uma diminuição do tamanho médio das gotas de água líquida. Estas gotas menores são coletadas com menos eficiência pelos cristais de gelo, que crescem mais devagar por acreção. Isto leva a uma queda na produção de precipitação (LOHMANN e FEICHTER, 2005).   |
| Efeito no balanço de energia em superfície | Este efeito é mais indireto e foi proposto por Lohmann (2004). Grandes concentrações de aerossóis geram diminuição na quantidade de radiação solar que atinge a superfície através tanto do efeito direto de espalhamento, quanto através do efeito Twomey e de tempo de vida das nuvens. Assim, a temperatura da superfície será reduzida, podendo levar a um efeito climático de aumento da quantidade de queda de neve. |

É importante notar que os processos mostrados na Tabela 2.4 ainda não são completamente compreendidos e ainda restam muitos estudos para descrevê-los por completo e, também, quantificá-los em termos de impactos climáticos. Os efeitos de Twomey e de tempo de vida das nuvens são relativamente mais simples de serem observados e quantificados, sendo mais conhecidos pela comunidade científica. Os outros são mais difíceis de mensurar, principalmente os relativos aos processos frios nas nuvens. Estes, por sua vez, podem ser os mais relevantes em termos de impactos no ciclo hidrológico, uma vez que a maior parte da precipitação que atinge a superfície é gerada por nuvens frias (LAU e WU, 2003).



### 3 METODOLOGIA

As medidas foram realizadas no Instituto de Estudos Avançados (IEAv), na cidade de São José dos Campos – SP, durante o período de 22/11/2011 a 10/01/2012. Este período está contido no do experimento GLM – Vale do Paraíba do projeto CHUVA. A equipe deste projeto estava operando uma estação no local, com instrumentos como radar de apontamento vertical, disdrômetros, radiômetros em micro-ondas, estação meteorológica, entre outros (mais informações podem ser obtidas na página do experimento: <http://mogyb.cptec.inpe.br/portal/saoluis/index.html>). Complementando as medidas, o autor do presente trabalho levou e operou (com a ajuda dos técnicos do CHUVA) dois instrumentos para medidas referentes aos aerossóis locais. Além destes, haviam no local filtros coletores de material particulado, úteis para a pesagem das partículas e análises de suas composições elementares. Estes instrumentos, bem como a montagem experimental, serão descritos nas seções a seguir. O IEAv se encontra relativamente afastado da cidade, no entanto próximo à estrada Tamoios (aproximadamente 300 m em linha reta) e sob o efeito da circulação de carros no interior do instituto. Tal localidade, no entanto, ainda pode receber transporte de partículas da cidade, dadas condições favoráveis ao transporte. Os instrumentos ficaram espalhados por uma região gramada e alguns no interior de um contêiner (como foi o caso dos instrumentos coletores de aerossóis para a proteção contra a chuva). A Figura 3.1 a seguir mostra uma imagem obtida pelo software Google Earth sobre a região.

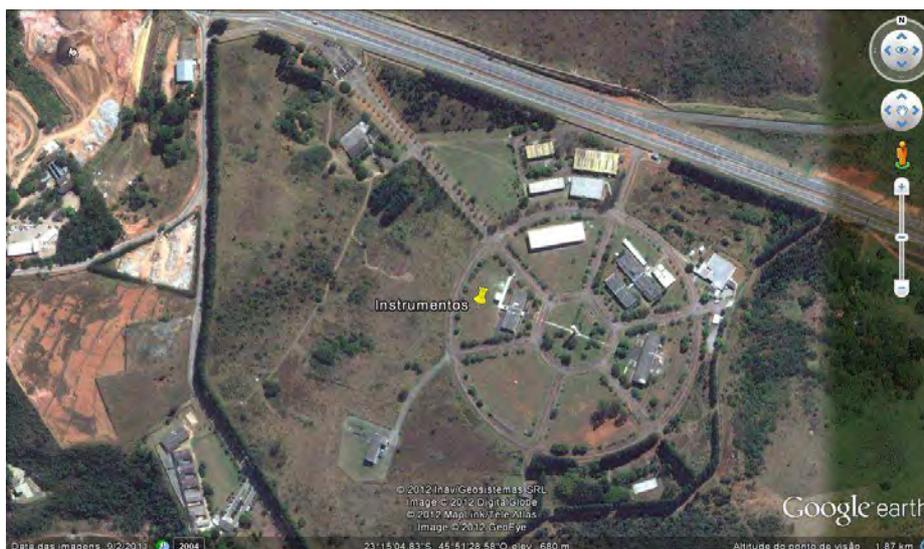


Figura 3.1 - Imagem sobre a região de estudos, com a marcação da localização dos instrumentos durante as medidas.

### 3.1. Instrumentos

Dentre a grande variedade de dados obtidos durante o experimento, alguns serão processados e analisados mais a fundo neste trabalho, enquanto outros serão utilizados de maneira complementar, já processados pela equipe do projeto CHUVA. Serão descritos os instrumentos contadores de CCN e particulado total, bem como o disdrômetro acústico Joss, pois as medidas destes instrumentos serão analisadas com mais detalhes. Descrições dos demais instrumentos do experimento GLM – Vale do Paraíba podem ser encontradas na sua página na web: <http://mogyb.cptec.inpe.br/portal/saoluis/index.html>. As análises do material coletado pelos filtros serão feitas pela Profa. Dra. Maria de Fátima Andrade (Instituto de Astronomia, Geofísica e Ciências Atmosféricas – IAG - da USP) e pelo Prof. Dr. Paulo Eduardo Artaxo Netto (Instituto de Física – IFUSP - da USP). Detalhes sobre os procedimentos de análise do material coletado podem ser obtidos em Miranda et al. (2012).

#### 3.1.1. Contador de CCN

O instrumento utilizado para realizar a contagem de CCN foi o *Cloud Condensation Nuclei Counter (CCNC)* da *Droplet Measurements Technology*

(DMT), cedido pelo Prof. Dr. Paulo Eduardo Artaxo Netto (IFUSP – USP). A base de operação do instrumento consiste da sucção do ar (com partículas de aerossóis) para o seu interior, onde a amostra é submetida a cenários controlados de temperatura e umidade para que sejam formadas gotículas de água com tamanhos suficientes para serem detectadas por um contador óptico.

A Figura 3.2 mostra uma imagem das componentes do CCNC. O fluxo utilizado nas medidas foi de aproximadamente  $500 \text{ c}^3/\text{min}$  (centímetros cúbicos por minuto), sendo a entrada de ar correspondente ao item 1 da Figura 3.2. Deste valor, 450 ccm corresponde ao fluxo de ar puro e 50 ccm ao fluxo de particulado, que é mantido próximo ao centro dos tubos condutores. A amostra é direcionada para um cilindro de 50 cm de comprimento, na posição vertical (item 10 da Figura 3.2), onde são aplicadas condições controladas de temperatura e umidade. A supersaturação é gerada baseado na diferença de difusão do calor e do vapor no ar. Três termo controladores são dispostos ao longo do cilindro, mantendo um gradiente de temperatura apontando verticalmente para baixo, ao longo da trajetória do particulado. As paredes do cilindro são umidificadas constantemente com água deionizada (armazenada no item 21 da figura 3.2), a qual é difundida em forma de vapor para o interior do cilindro. Uma vez que a difusão do vapor no ar é mais rápida do que a do calor, se torna possível a geração de um ambiente supersaturado com relação à água líquida. Quanto maior for o gradiente de temperatura, maior será a supersaturação resultante. O DMT-CCNC é capaz de gerar supersaturações no intervalo de 0,07% a 2,0%, condições que se assemelham às encontradas no interior de nuvens. Durante as medidas utilizadas neste trabalho, o CCNC foi configurado para operar nas supersaturações de 0,2%, 0,4%, 0,6%, 0,8% e 1,0%, sendo que para percorrer o ciclo todo de supersaturações o instrumento leva em torno de 20 minutos. As medidas são feitas a cada segundo, no entanto médias devem ser utilizadas para eliminar dados onde as condições internas do instrumentos ainda não estavam estabilizadas. Os aerossóis, ao atravessarem o cilindro em condições de supersaturação, podem crescer por condensação de vapor, tornando-se gotículas semelhantes às de nuvens. Estas gotículas são direcionadas para um contador óptico que utiliza um laser

com comprimento de onda de 660 nm para fazer a contagem. As gotículas são divididas em 20 categorias de diâmetros, no intervalo de 0,75 a 10  $\mu\text{m}$  e a contagem total também é realizada.

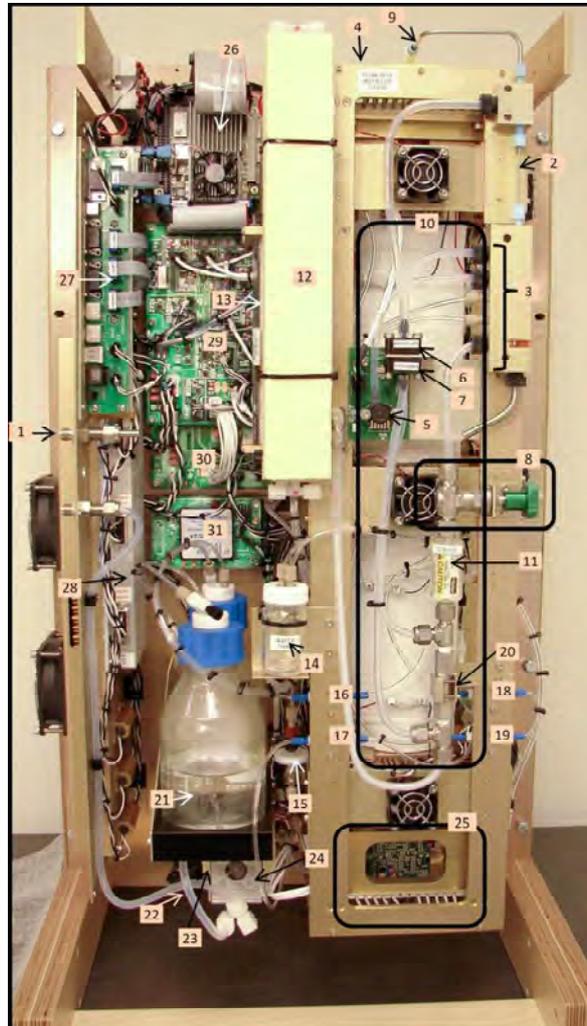


Figura 3.2 - Interior do instrumento CCNC.

Fonte: Manual do instrumento.

Este instrumento ficou alocado no interior de um contêiner com apenas um tubo de cobre exposto para a coleta do material. A Figura 3.3 mostra o contêiner, no entanto ainda não havia sido feita a instalação do instrumento CCNC. O tubo de cobre que serviu como *inlet* se localizava próximo ao radar de apontamento vertical presente na Figura 3.3, a aproximadamente 3 m de altura. Este *inlet* foi dividido em duas saídas no interior do contêiner com

mangueiras de borracha e ligados tanto ao CCNC quanto ao CPC (descrito a seguir). Foi dada especial atenção à entrada do tubo de cobre exposta, onde foi alocada uma tela metálica para evitar a sucção de insetos para o interior do instrumento. Esta montagem experimental garantiu medidas consistentes entre os instrumentos CCNC e CPC, os quais funcionaram quase continuamente no período das medidas. Para realizar o transporte do sistema CCNC para o local e de volta à USP, foi necessário realizar procedimentos de secagem (já configurados no software do instrumento), levando cerca de 6 horas cada. Este procedimento é necessário pois os componentes eletrônicos do sistema podem entrar em curto com a presença da água. Especial cuidado deve ser tomado com o OPC, componente importante e cara do sistema.



Figura 3.3 - Contêiner do projeto CHUVA, abrigando os instrumentos CPC, CCNC e computadores para coleta de dados.

O instrumento CCNC vem equipado com um computador e softwares especiais para a coleta de dados. Este sistema é automático e a única manutenção contínua necessária durante as medidas foi o abastecimento de água deionizada (consumo aproximado de 1 litro a cada 5 ou 6 dias), tarefa realizada por mim e pelos técnicos da equipe do CHUVA Jorge Nogueira, Jorge Melo e Jorge Marton.

As configurações das supersaturações e outros parâmetros do CCNC podem ser manipulados diretamente pelo software, mostrado na Figura 3.4 (retirada do manual do instrumento). Como pode ser observado, o número de supersaturações a percorrer, bem como a duração das medidas em cada uma podem ser alterados. Neste estudo, foram utilizadas as supersaturações de 0,2, 0,4, 0,6, 0,8 e 1,0%, com duração de 5 minutos em cada. A interface do software faz o monitoramento do funcionamento do instrumento, mostrando em tempo real as concentrações de CCN, a distribuição de tamanho destes, a supersaturação atual e os fluxos de ar. Além destes fatores, as temperaturas em diversas localidades do instrumento podem ser monitoradas, bem como as condições do OPC (Optical Particle Counter – contador óptico). Uma informação importante que o sistema fornece é se o gradiente de temperatura na câmara de supersaturação está estabilizado ou não. Ao trocar de uma saturação para outra, o gradiente leva em torno de 1 minuto para se ajustar e os dados colhidos nesse intervalo devem ser desconsiderados pois correspondem a diferentes supersaturações. Os dados são salvos em arquivos CSV (Comma Separated Values) a cada hora. Estes dados foram processados através da utilização do software Matlab, onde foram realizadas médias em cada supersaturação, com o gradiente de temperatura estabilizado. Ou seja, cada média corresponde a aproximadamente 4 minutos de informação, com medidas a cada segundo.

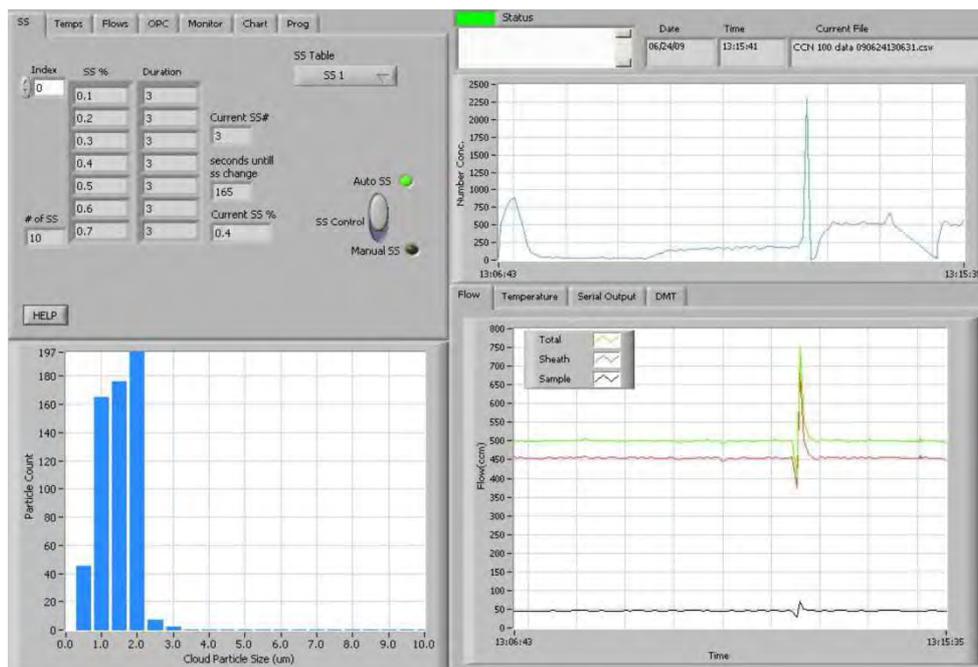


Figura 3.4 - Página inicial do software do sistema contador de CCN.

Fonte: Manual do instrumento

### 3.1.2. Contador de particulado total

Para medir a concentração total de particulado foi utilizado o *Condensation Particle Counter (CPC)* modelo 3772, da *TSI Inc.*, cedido também pelo Prof. Dr. Paulo Artaxo. Este instrumento possui base de operação semelhante ao CCNC, uma vez que coleta particulado, os faz crescer por condensação e depois realiza a contagem. A Figura 3.5 mostra o exterior do instrumento.



Figura 3.5 – Instrumento CPC.

Fonte: Manual do instrumento.

A amostra de ar é direcionada para o interior do instrumento através de uma bomba externa e o fluxo é ajustado internamente para se manter em 1 l/min. O fluxo é direcionado para uma câmara com temperatura superior à do ambiente ao redor, onde é injetado vapor de butanol. Em seguida, a amostra segue para uma câmara fria, onde o butanol condensa rapidamente sobre os aerossóis. As gotículas resultantes são contadas por um contador óptico capaz de identificar partículas individualmente. O CPC detecta partículas com diâmetros acima de 10 nm e concentrações de até  $10^4$  partículas por centímetro cúbico. Acima desta concentração, o instrumento continua a operar normalmente, no entanto com maiores incertezas envolvidas.

O CPC vem com um visor onde é possível definir as propriedades de operação e monitorar o funcionamento do equipamento. No entanto, é necessário um computador externo, ligado ao instrumento via USB, para a coleta de dados. A TSI fornece o software para captar as informações e o sistema funciona automaticamente, sem a necessidade de manutenção constante. A manutenção necessária é o abastecimento de butanol (durante o experimento

foram utilizados aproximadamente 2 litros) no recipiente mostrado na Figura 3.5. Além deste recipiente, mais um é necessário para captar o excesso de butanol que é expelido pelo instrumento. Para transportar o instrumento é necessário garantir que não haja butanol em seu interior para não correr o risco de queimar os componentes eletrônicos.

### **3.1.3. Disdrômetro**

O disdrômetro utilizado nas análises foi o *Joss Waldvogel Acoustic Impact Disdrometer* Modelo RD-80. Este instrumento realiza medidas da DSD das gotas de chuva em função da força mecânica que estas geram em um impactador. O sistema RD-80 consiste de três componentes, mostradas na Figura 3.6, retirada do manual do instrumento. A primeira delas fica exposta ao ar livre e consiste de uma placa metálica cilíndrica que abriga um disco de 50 cm<sup>2</sup> de área. Este disco é sensível ao impacto dos hidrometeoros e gera pulsos elétricos com amplitudes proporcionais à força do impacto que, por sua vez, depende da velocidade terminal das gotas e, portanto, de seus tamanhos. Os sinais são enviados a um processador que estava alocado no interior do contêiner. Ligado ao processador utiliza-se um computador para organizar e armazenar os dados. Os dados consistem da distribuição de tamanho das gotas de chuva, entre 0,359 mm e 5,373 mm, divididos em 20 *bins* espaçados não uniformemente entre si. As informações obtidas possuem uma acurácia de 5 %.

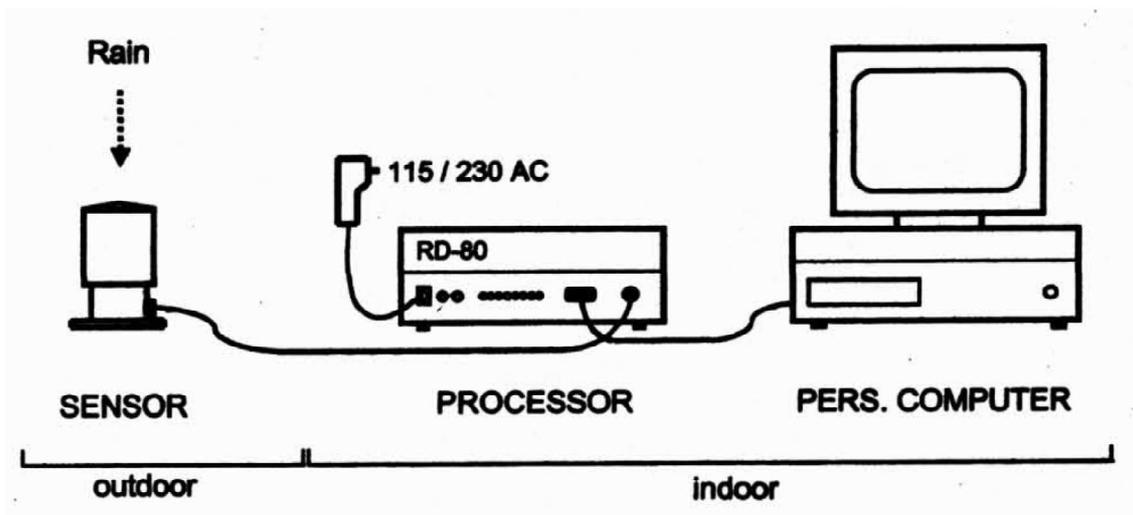


Figura 3.6 - Ilustração da montagem do disdrômetro RD-80.

Fonte: Manual do instrumento.

## 3.2. Metodologia das análises

### 3.2.1. Aerossóis

Primeiramente, será feita uma análise básica dos tipos de aerossóis presentes no local, bem como dos tipos de precipitação presente. A partir dos dados coletados pelo CCNC e pelo CPC, pode ser feita uma análise das variações das concentrações dos CCN e PT em um mesmo dia e durante vários dias. Além disto, também serão analisadas as variações nas concentrações de CCN e PT ao longo da duração de cada evento precipitante separadamente. A partir das informações obtidas pela coleta de material particulado pelos filtros Minisampler, será possível analisar não somente a concentração mássica dos aerossóis, mas também a sua composição química. Esta influencia significativamente na eficiência dos aerossóis em se tornarem CCN e será feito um estudo para aferir os tipos de aerossol mais ou menos presente na região. A eficiência de ativação dos aerossóis é medida pela fração CCN/PT, ou seja, a porcentagem dos aerossóis locais capazes de formarem gotículas de nuvens. Além disto, será possível comparar as análises químicas com a circulação atmosférica para identificar as diferentes fontes de particulado, inclusive os de origem marítima. Espera-se que a brisa marítima traga aerossóis ricos em

cloreto de sódio para a região, material bastante eficiente em ativar gotículas de nuvens. Os aerossóis marítimos, de modo geral, possuem maiores tamanhos do que os encontrados em centros urbanos, então será feito um estudo dos impactos da entrada da brisa nas medidas efetuadas. Em particular, serão analisadas as variações nas concentrações de CCN e os impactos nas DSD dos sistemas precipitantes.

### 3.2.2. Eventos de precipitação

Para analisar as variações temporais das DSD dos eventos de precipitação, é interessante realizar uma parametrização. A parametrização utilizada neste trabalho será baseada na discutida por Tokay e Short (1996) e Tokay et al. (2001). De acordo com os autores mencionados, é possível reproduzir as observações feitas pelo disdrômetro a partir de uma distribuição gamma. Essa distribuição pode ser descrita como mostra a equação 3.2.2.1.

$$N(D) = N_0 D^m \exp(-\Lambda D) \quad \text{Equação 3.2.2.1}$$

Onde  $N(D)$  é a concentração de gotas para cada classe de diâmetros  $D$  (DSD),  $N_0$  é o intercepto,  $m$  é o parâmetro de forma e  $\Lambda$  representa a curvatura da DSD. Os coeficientes da parametrização serão calculados pelo método dos momentos descrito por Tokay e Short (1996). Neste trabalho, os autores sugerem que os coeficientes podem ser calculados como nas equações a seguir. Os momentos da DSD estão relacionados com as concentrações de gotas pequenas, médias e grandes. Neste método, são utilizados os momentos de terceira, quarta e sexta ordem, os quais são representados de modo genérico na equação 3.2.2.2.

$$M_x = \int_0^{\infty} D^x N(D) dD \quad \text{ou} \quad M_x = N_0 \frac{\Gamma(m+x+1)}{\Lambda^{m+x+1}} \quad \text{Equação 3.2.2.2}$$

Onde  $M_x$  corresponde ao momento  $x$  da DSD. Através dos momentos se obtém os parâmetros da distribuição gamma através das equações a seguir:

$$m = \frac{11G - 8 + [G(G+8)]^{1/2}}{2(1-G)}, \text{ com } G = \frac{M_4^3}{M_3^2 M_6} \quad \text{Equação 3.2.2.3}$$

$$N_0 = \frac{\Lambda^{m+4} M_3}{\Gamma(m+4)} \quad \text{Equação 3.2.2.4}$$

$$\Lambda = \frac{(m+4)M_3}{M_4} = \frac{(m+4)}{D_m}, \text{ com } D_m = \frac{M_4}{M_3} \quad \text{Equação 3.2.2.5}$$

Através destes parâmetros obtém-se a DSD parametrizada descrita pela Equação 3.2.2.1, a partir da qual pode ser obtida a taxa de precipitação (RI):

$$RI = 6\pi \times 10^{-6} \int_0^{\infty} V(D)D^3 N(D)dD \quad \text{Equação 3.2.2.6}$$

Onde  $V(D)$  é a velocidade terminal (cm/s) de gotas com diâmetro  $D$  (mm). A partir dos três parâmetros obtidos com a parametrização pelo Método dos Momentos, será realizada análise em *cluster* para auxiliar no estudo das variações dos tipos de DSD. Para isto, determina-se um espaço tridimensional onde cada dimensão corresponde a um parâmetro, ajustando as ordens de grandezas dos valores para que se mantenham dentro de um intervalo semelhante numericamente. Este procedimento será realizado baseado no método *k-means* (função do *software* Matlab), o qual separa conjuntos de dados baseado nas distâncias euclidianas entre os pontos no espaço definido. É possível a realização de análise supervisionada ou não-supervisionada, onde determina-se a priori (no caso supervisionado) ou não (no não supervisionado) o número de conjuntos desejado. Neste trabalho serão realizados testes para aferir o número de *clusters* adequado ao conjunto de dados analisado. Informações detalhadas sobre o método *k-means* podem ser obtidas em Kanungo et. al (2002).

## 4 RESULTADOS

### 4.1. Variabilidade nas concentrações de aerossóis

As medidas das concentrações de CCN e PT (particulado total) mostraram alta variabilidade temporal, com valores entre centenas e dezenas de milhares de partículas por centímetro cúbico. A Figura 4.1 ilustra a série temporal destas concentrações, com medidas de CCN feitas sob a supersaturação de 1%.

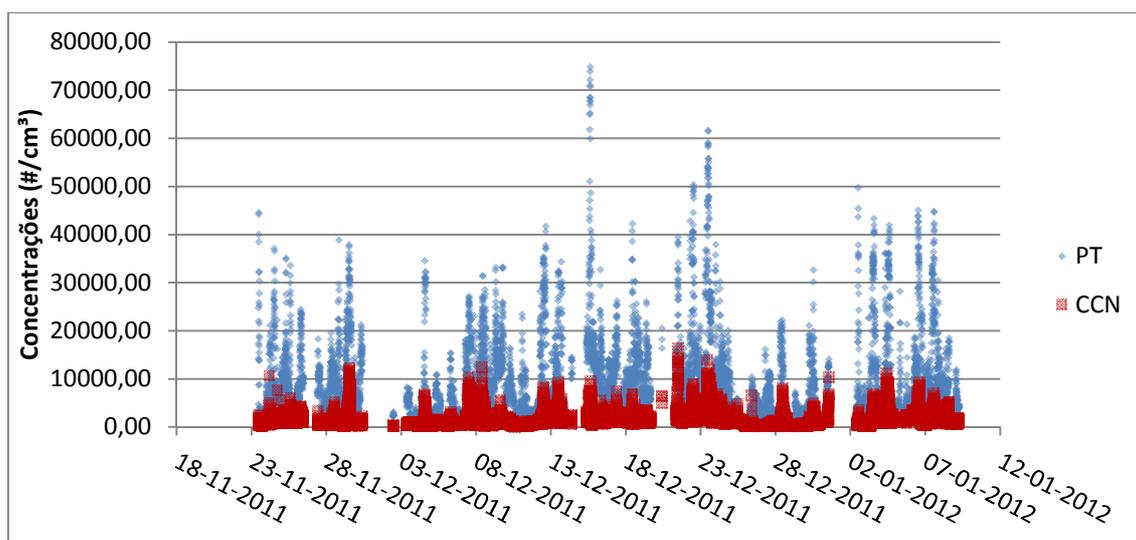


Figura 4.1 - Série temporal das concentrações de CCN e PT.

Pela figura acima é possível observar não somente a grande variabilidade nas concentrações, mas também que aumentos na quantidade de particulado total não necessariamente induzem aumento nas concentrações de CCN. Este fator está relacionado com o tipo de aerossol da região, em especial a sua distribuição de tamanho. Observou-se que as maiores concentrações de particulado geralmente estão relacionadas a partículas com diâmetros reduzidos. Para mostrar este efeito, foram utilizadas as medidas da distribuição de tamanho feitas pelo CCNC (Figura 4.2). Vale notar que tais medidas foram utilizadas em caráter qualitativo, uma vez que não representam especificamente nem a distribuição seca dos aerossóis e nem a das gotas no interior das nuvens. A medida de distribuição feita pelo CCN consiste apenas da distribuição de tamanho das gotículas formadas no interior do instrumento,

depois que os aerossóis secos são sujeitos ao crescimento por condensação enquanto na câmara de supersaturação. No entanto, este tipo de informação é interessante para comparar distribuições de tamanho em diferentes cenários. As distribuições de tamanho dos CCN foram normalizadas pela integral, a fim de simplificar a comparação.

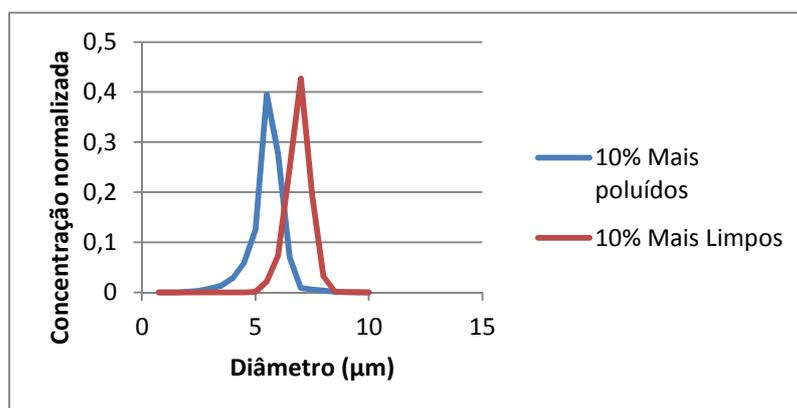


Figura 4.2 - Distribuições normalizadas de CCN para os casos mais poluídos e mais limpos.

Ao calcular as distribuições normalizadas médias nas ocorrências mais poluídas e mais limpas, observa-se o efeito ilustrado na Figura 4.2. Ou seja, de modo geral, as maiores concentrações de CCN consistem de partículas menores do que as encontradas em períodos mais limpos. Considerando a proximidade do local de estudo à cidade de São José dos Campos e das vias de acesso às intermediações do IEAv, as maiores concentrações de particulado (e seu tamanho diminuto) podem ser explicadas pela emissão de partículas de combustão e pelo transporte de aerossóis urbanos. Uma consequência do pequeno tamanho dos aerossóis encontrados na região é a sua baixa eficiência em ativar gotículas de nuvem. A eficiência de nucleação dos aerossóis pode ser medida pela fração CCN/PT. A fração média de ativação, para a alta supersaturação de 1%, foi de aproximadamente 42%, mostrando que em média a maior parte das partículas medidas não são capazes de ativar gotículas de nuvens nas condições de medição.

#### 4.1.1. Ciclo diurno

Realizando médias horárias das concentrações de CCN, foi possível observar seu ciclo diurno para todas as supersaturações definidas no CCNC, como mostra a Figura 4.3.

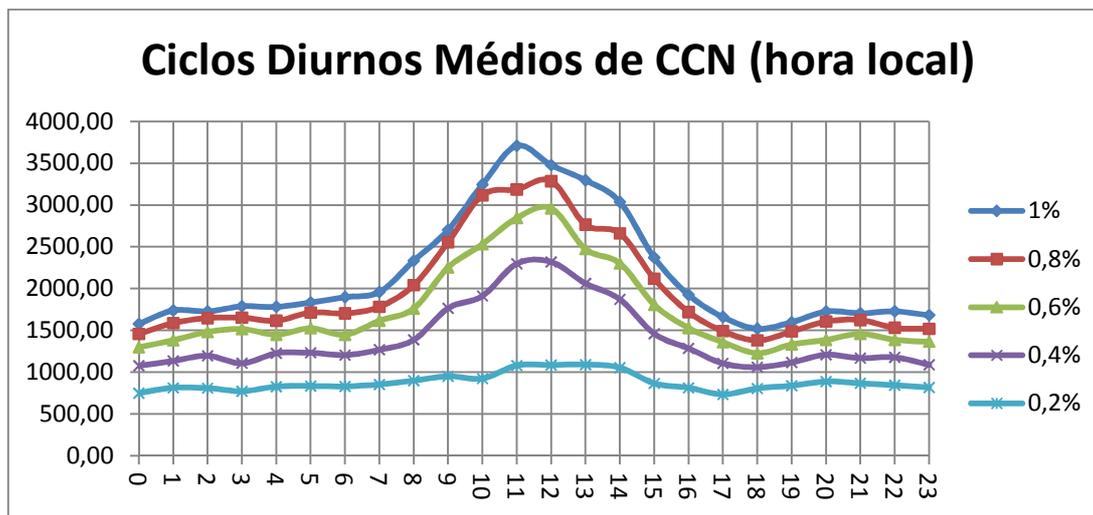


Figura 4.3 - Ciclo diurno médio das concentrações de CCN para as supersaturações utilizadas no CCNC.

A Figura 4.3 mostra que, de modo geral, as concentrações de CCN tendem a ser menores durante a noite e madrugada, para atingir maiores valores durante o dia. As concentrações de CCN durante a noite/madrugada variam aproximadamente entre 700 e 1700  $\#/cm^3$  para as diferentes supersaturações. Já durante a tarde as concentrações variam de 1000 a 3600  $\#/cm^3$  conforme a supersaturação. Isto evidencia que à tarde, com maior presença de partículas, as concentrações de CCN são mais sensíveis à supersaturação, aumentando mais pronunciadamente com esta em comparação com os períodos noturnos e matinais. Este fator está relacionado ao que foi mostrado na Figura 4.2. Ou seja, em ocasiões onde a concentração de CCN é alta e o diâmetro médio das partículas é menor, um aumento na supersaturação gera maiores concentrações de CCN uma vez que as partículas menores também ativam. Em casos onde os diâmetros dos aerossóis são maiores, as concentrações de CCN serão menos sensíveis à variação na supersaturação, uma vez que partículas maiores não necessitam de tão alta supersaturação para nuclearem

gotas de nuvens. As variações nas concentrações de particulado atmosférico (e CCN) são determinadas pelo balanço entre processos de fonte e sumidouro de aerossóis. As fontes de aerossóis na região estão associadas tanto a mecanismos naturais quanto antropogênicos. Ou seja, as concentrações de particulado podem ser aumentadas tanto por levantamento de poeira do solo por ação dos ventos, por emissões biogênicas, por advecção de sal marinho pela entrada da brisa, por transformações gás-partículas formando aerossóis secundários, quanto por emissões de veículos próximos ao local de medidas e transporte de aerossóis urbanos da cidade de São José dos Campos. As partículas que são emitidas, no entanto, estão sujeitas à evolução da camada limite planetária, que por sua vez, impacta diretamente na concentração de aerossóis medida. No período diurno, com o crescimento da camada limite, há tendência de diluição das concentrações de particulado, uma vez que há maior mistura devido à turbulência. À noite e de madrugada, a atmosfera próxima à superfície se encontra mais estabilizada, tendendo a aumentar as concentrações de aerossóis. No entanto, como mostra a Figura 4.3, as maiores concentrações de CCN são encontradas no período diurno, mostrando que a atividade da cidade próxima ao IEAv e a geração de aerossóis secundários, bem como as emissões naturais, superam a diluição induzida pelo desenvolvimento da camada limite planetária. À noite, com a diminuição da atividade das fontes de aerossóis, são observadas menores concentrações de CCN. Estas concentrações, no entanto, aumentam conforme se aproxima a madrugada, em função da estabilização da atmosfera.

Para compreender melhor o ciclo diurno das concentrações de CCN, foram realizadas médias somente para os dias de semana e o mesmo para os finais de semana, com o intuito de isolar os efeitos da circulação de carros no local. A Figura 4.4 mostra os resultados obtidos para esta análise. O desvio padrão entre as medidas tomadas nos mesmos horários em dias distintos é aproximadamente da mesma ordem de grandeza das concentrações médias. Ou seja, há uma grande variação dia a dia do comportamento das concentrações de CCN e PT, mas o intuito é mostrar um padrão geral. Foram utilizados os dados para a supersaturação de 1% pois estes são mais sensíveis

às variações nas concentrações de particulado total, mostrando um ciclo diurno médio com maior amplitude. As médias foram feitas “para frente”, onde o dado de 00:00, por exemplo, corresponde à média onde  $00:00 \leq t < 01:00$  com ‘t’ representando o tempo da medida.

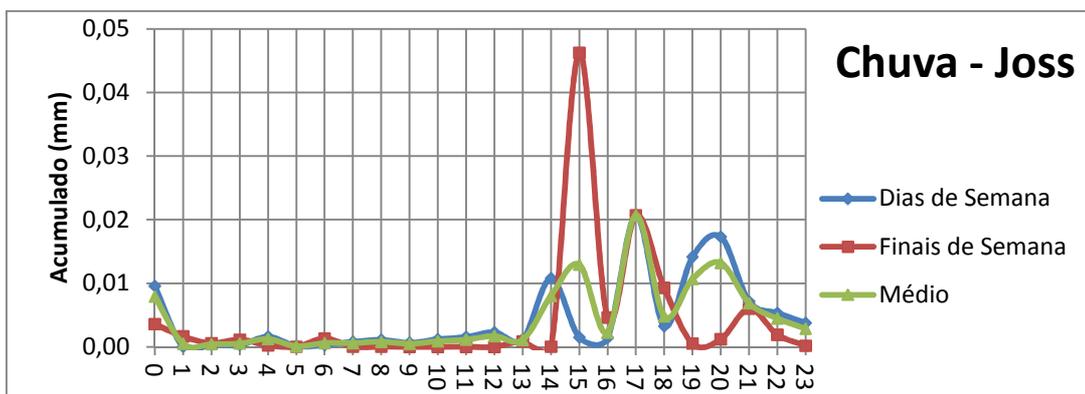
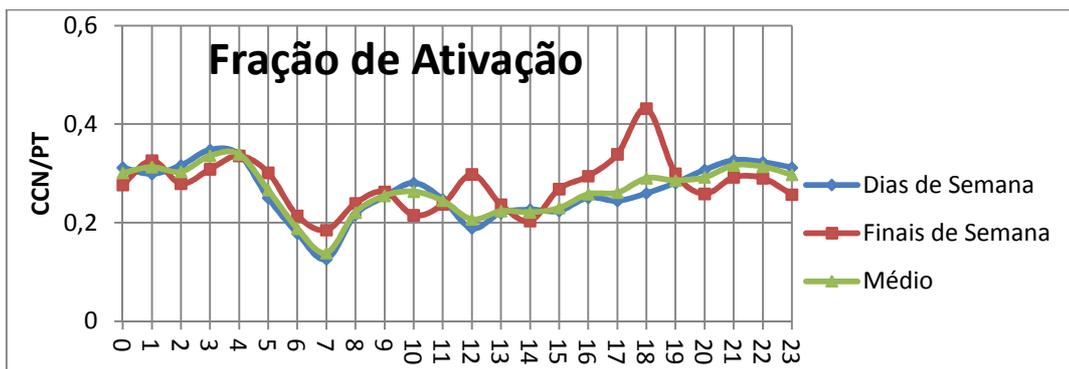
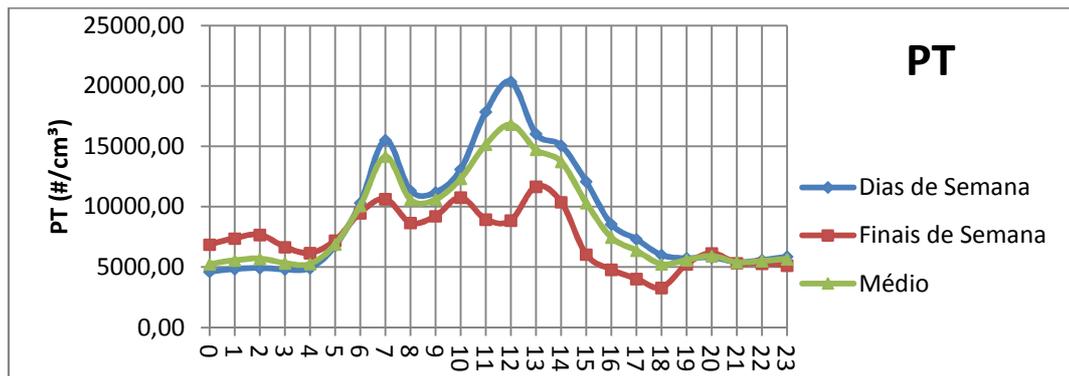
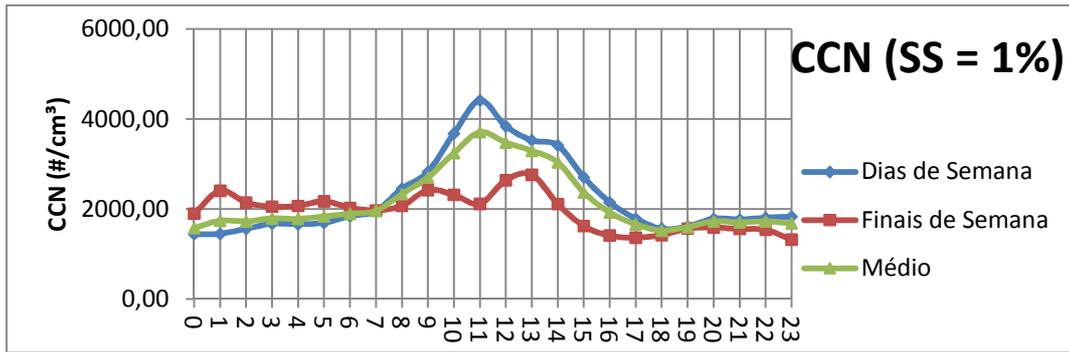


Figura 4.4 - Ciclos diurnos médios de CCN para SS = 1%, PT, fração de ativação e chuva para os dias de semana (azul) e finais de semana (vermelho), junto com o ciclo médio (verde). O gráfico mais abaixo se refere a médias de acumulados de chuva em 1 minuto, intervalo das medidas do disdrômetro Joss.

Antes de analisar as diferenças entre os ciclos diurnos médios nos finais de semana e dias de semana, vale notar algumas peculiaridades. Primeiramente, os feriados de Natal e Ano Novo estavam contidos no período das medidas e coincidentemente ocorreram nos finais de semana. Os dias 24 e 25 de Dezembro foram, respectivamente Sábado e Domingo, o mesmo ocorrendo para os dias 31 de Dezembro (2011) e 1 de Janeiro (2012). Mesmo com esta peculiaridade, é importante ressaltar que muito provavelmente a circulação de carros no interior do IEAv entre o Natal e o Ano Novo foi reduzida se comparada com outros períodos afastados das comemorações de final de ano. No entanto, dentro do conjunto das medidas que estão sendo presentemente analisadas, com as ressalvas comentadas anteriormente, foi possível observar diferenças entre os ciclos diurnos médios de dias úteis e de finais de semana, como pode ser visto na Figura 4.4. Primeiramente, o que mais chama a atenção é o pico nas concentrações de PT que ocorre às 7 da manhã (segundo gráfico de cima para baixo). Esta maior concentração observada neste horário é coerente com o período de entrada dos trabalhadores do IEAv. Portanto, o aumento de PT seria justificado pela emissão dos veículos em circulação no local, bem como pelo levantamento de partículas do solo através da ação mecânica dos carros. Nota-se que este efeito é mais acentuado nos dias de semana, onde as concentrações de PT foram maiores do que a média geral, mostrando o impacto da maior movimentação no interior do instituto nas concentrações de PT. Este aumento das concentrações de particulado em torno das 07:00, no entanto, não foi observado nas concentrações de CCN, mostrando que o tipo de aerossol emitido não é convertido rapidamente em CCN. Observa-se que, com exceção do período da madrugada, as concentrações de particulado foram menores durante os finais de semana de modo geral. No horário de almoço dos trabalhadores do IEAv, em torno do meio dia, foi observado um grande pico de PT nos dias úteis, fator não observado nos finais de semana. Já no final da tarde, na saída dos carros, não foi observado impacto nas concentrações de PT, o que pode ser explicado pela maior ocorrência de chuvas no período (gráfico mais abaixo da Figura 4.4). Analisando especificamente as variações de PT na média dos finais de

semana, observam-se três picos nas concentrações às 07:00, às 10:00 e às 13:00. Estima-se que nestes horários são realizadas rondas no interior do IEAv. Estudando as diferenças entre os ciclos diurnos das concentrações de CCN nos finais de semana e dias úteis, observa-se um padrão semelhante ao visto nas concentrações de PT no sentido em que foram medidas maiores concentrações nos dias de semana em comparação aos finais de semana (com exceção do período matinal). No entanto, não foram observados picos nas concentrações de CCN no horário de entrada do instituto, fato que pode ser explicado pela baixa eficiência de ativação das partículas associadas à circulação de veículos no local (terceiro gráfico de cima para baixo na Figura 4.4). Inclusive, as concentrações médias observadas às 07:00 foram praticamente iguais nos finais de semana e nos dias de semana. Nos períodos da tarde e final de tarde, as concentrações de CCN foram significativamente maiores durante os dias de semana, indicando impacto da circulação de carros no local nas concentrações de CCN. No final da tarde, embora as concentrações de CCN tenham sido menores nos finais de semana, não é possível observar um pico nas concentrações relativo à movimentação dos carros a caminho da saída do instituto.

#### **4.2. Caracterização dos aerossóis e regime de circulação local**

Os resultados das concentrações numéricas de CCN e PT foram organizados em médias diárias para a comparação com os resultados obtidos a partir da análise do material coletado nos filtros. A série temporal desses dados é mostrada na Figura 4.5.

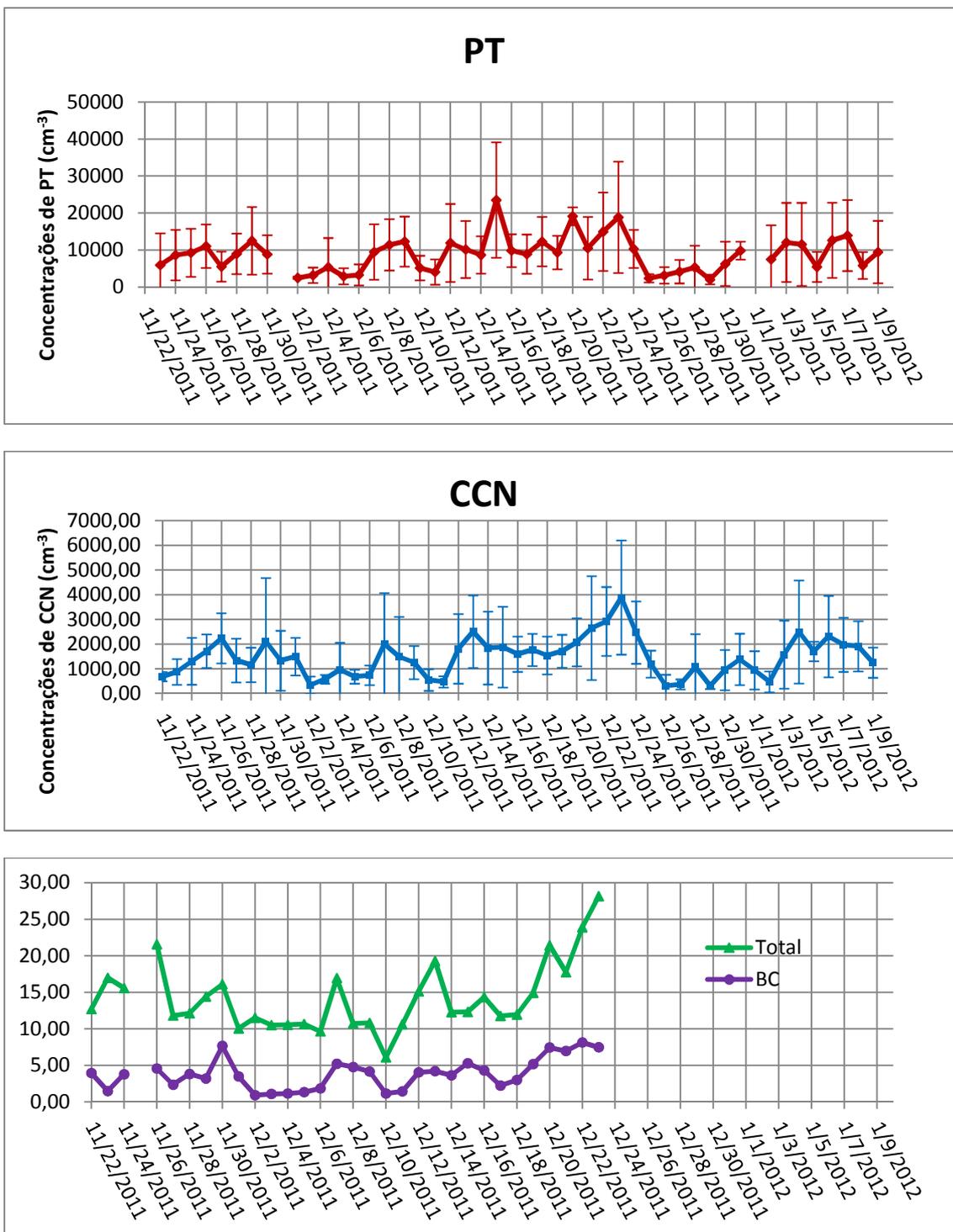


Figura 4.5 - De cima para baixo: médias diárias de PT; médias diárias de CCN; concentração mássica total dos aerossóis nos dias e concentração de BC (Black Carbon – carbono elementar).

Como pode ser observado, as variações na concentração mássica dos aerossóis abrange duas ordens de grandeza, variando de aproximadamente 6 a 28  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . De modo geral, as variações nas concentrações de BC

acompanham as de massa, insinuando que as maiores concentrações de particulado na região são ricas também em BC. A média geral das concentrações mássicas totais foi de  $14,26 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , enquanto que a de BC foi de  $3,83 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Comparando estes valores com o estudo feito por Miranda et al. (2012), nota-se que estas concentrações são próximas das médias observadas em cidades do Sul do país como Curitiba e Porto Alegre. Estes valores são inferiores às concentrações mássicas obtidas em cidades mais poluídas como São Paulo e Rio de Janeiro. Realizando as correlações lineares entre as concentrações mássicas e numéricas, foram obtidos os índices mostrados na Tabela 4.1:

Tabela 4.1 - Índices de correlação linear entre as concentrações numéricas de CCN e PT e as concentrações mássicas total e de BC.

| Correlação                                | Índice de Correlação Linear R <sup>2</sup> |
|---|--|
| CCN x PT                                  | 0,54                                       |
| CCN x Concentração Mássica                | 0,67                                       |
| CCN x Concentração de BC                  | 0,59                                       |
| PT x Concentração Mássica                 | 0,33                                       |
| PT x Concentração de BC                   | 0,56                                       |
| Concentração Mássica x Concentração de BC | 0,54                                       |

O teste *t-student* foi aplicado aos resultados e todos obtiveram significância estatística com mais de 95% de confiança. Primeiramente, notou-se uma correlação entre as médias diárias de CCN e PT, onde aproximadamente apenas 50% da variância nas concentrações de CCN é explicada pela variância na concentração total de partículas. Este valor não está próximo dos 100% uma vez que as medidas de PT são sensíveis até a partículas inferiores a 100 nm (por exemplo), que são incapazes de nuclear gotas nas condições de medidas. Comparando as concentrações de CCN com as concentrações totais de massa, observou-se um índice de correlação de 67%. Isto mostra que, de

modo geral, maior número de CCN reflete em maior massa acumulada nos filtros. Isto pode parecer óbvio, mas vale notar que o índice de correlação entre PT e a concentração mássica foi significativamente menor. Ou seja, aumentos nas concentrações numéricas totais de aerossóis podem não impactar significativamente a massa total acumulada nos filtros. As correlações entre as concentrações numéricas e as concentrações de BC foram significativas, com índice  $R^2$  levemente maior no caso dos CCN.

Os resultados das análises de composição elementar forneceram concentrações de massa para diversos elementos inorgânicos detectáveis nas análises de fluorescência de raios-X. Estas concentrações foram divididas pela concentração mássica total, considerando inclusive os compostos de carbono orgânico, a fim de obter a representatividade de cada elemento no total de massa. Subtraindo a massa de cada elemento da Tabela 4.2 da massa total coletada nos filtros, obtém-se a massa dos compostos orgânicos, os quais não são medidos diretamente pela metodologia utilizada. Em média, cerca de 64% da massa total coletada corresponde à massa dos compostos orgânicos, explicando a baixa representatividade dos compostos mostrados na Tabela 4.2 (com exceção do BC). A massa dos compostos medidos pela análise de raios-X (todos da Tabela 4.2, com exceção do BC) somam apenas 11% em média da massa total. Observa-se que, em termos de massa, há uma grande predominância do BC, onde, em média, um quarto da massa do particulado local é relativa à presença deste elemento. Com relação aos outros elementos, nota-se que os mais abundantes na região são, na ordem, o Enxofre, o Silício e o Sódio. O Enxofre, presente nos sulfatos, pode ter origens distintas. Ele pode estar presente nos compostos emitidos por veículos/indústrias onde há a queima de combustíveis fósseis, ou então pode se originar de regiões costeiras, onde pequenas partículas de sal marinho e aerossóis biogênicos (na ordem de 20 a 50 nm de diâmetro) podem servir como nucleadores para a formação de agregados ricos em Enxofre (LEVIN e COTTON, 2009). Possivelmente o Enxofre encontrado no material coletado nos filtros provém de ambas as fontes mencionadas. O Silício, segundo elemento mais abundante na média geral com exceção do BC, geralmente está associado ao levantamento

de poeira do solo pela ação dos ventos. Já o Sódio, presente no sal marinho, geralmente está associado a massas de ar de origem costeira.

Tabela 4.2 - Massa percentual dos compostos elementares, considerando a massa total coletada nos filtros, inclusive dos compostos orgânicos (coluna ao meio) e considerando apenas a massa dos compostos inorgânicos detectados pela análise de raios-X (coluna à direita).

| Elemento | Percentual de Massa (%) | Percentual de Massa XRF (%) |
|----------|-------------------------|-----------------------------|
| BC       | 23,97                   | -                           |
| S        | 4,64                    | 42,39                       |
| Si       | 1,59                    | 14,57                       |
| Na       | 0,86                    | 7,87                        |
| K        | 0,72                    | 6,59                        |
| Al       | 0,72                    | 6,54                        |
| Fe       | 0,53                    | 4,88                        |
| Mg       | 0,48                    | 4,35                        |
| Cd       | 0,28                    | 2,54                        |
| Ca       | 0,22                    | 2,00                        |
| Zn       | 0,18                    | 1,62                        |
| Sr       | 0,14                    | 1,30                        |
| P        | 0,08                    | 0,75                        |
| Se       | 0,06                    | 0,58                        |
| Cl       | 0,06                    | 0,57                        |
| Pb       | 0,06                    | 0,54                        |
| Sb       | 0,06                    | 0,53                        |
| Ti       | 0,05                    | 0,44                        |
| Mn       | 0,04                    | 0,40                        |
| Ni       | 0,04                    | 0,33                        |
| Br       | 0,03                    | 0,30                        |
| Cu       | 0,03                    | 0,24                        |
| V        | 0,02                    | 0,23                        |
| Rb       | 0,02                    | 0,22                        |
| Cr       | 0,02                    | 0,21                        |

Os valores associados aos compostos inorgânicos mostram grande predominância do Enxofre, presente nos sulfatos. Nota-se presença de aproximadamente 15% no percentual de massa associados aos metais Alumínio, Ferro e Magnésio somados. Estes metais possuem origem urbana,

mostrando os efeitos do transporte de particulado da cidade de São José dos Campos ao local das medidas.

Além de analisar a média geral das concentrações de massa dos elementos, também é interessantes realizar comparações dessas concentrações para dias mais poluídos e mais limpos. A Tabela 4.3 mostra os resultados das análises de XRF, juntamente com as concentrações médias de CCN, para quatro dias. Os dias 29/11/2011 e 23/12/2011 foram caracterizados por céu aberto, ausência de chuva e tempo relativamente quente. O dia 23/12/2011 especificamente foi o que apresentou maior concentração média de CCN e maior concentração mássica total. No dia 10/12/2011 ocorreu chuva estratiforme durante a madrugada até as 07:00 da manhã, resquícios de um sistema que passou pela região no dia anterior. Este cenário garantiu um dia mais limpo e frio. Já o dia 28/11/2011 foi um dia típico de verão da região, com uma pancada de chuva no final da tarde. Observa-se que neste dia a concentração média de CCN se manteve entre as concentrações do dia com chuva estratiforme e dos de céu aberto.

Tabela 4.3 - Resultados das análises de XRF para quatro dias distintos. Valores em %.

|           | Dias                        |                             |                            |                             |
|-----------|-----------------------------|-----------------------------|----------------------------|-----------------------------|
|           | 28/11/2011                  | 29/11/2011                  | 10/12/2011                 | 23/12/2011                  |
| Elementos | CCN = 1610 cm <sup>-3</sup> | CCN = 3169 cm <sup>-3</sup> | CCN = 856 cm <sup>-3</sup> | CCN = 5631 cm <sup>-3</sup> |
| BC        | 31,38                       | 22,09                       | 18,61                      | 26,50                       |
| Na        | 0,37                        | 0,15                        | 0,44                       | 0,50                        |
| Mg        |                             |                             |                            | 0,47                        |
| Al        | 0,67                        | 0,79                        | 0,31                       | 1,30                        |
| Si        | 1,64                        | 1,98                        | 0,31                       | 2,09                        |
| P         |                             | 0,12                        | 0,03                       | 0,16                        |
| S         | 3,27                        | 5,19                        | 3,77                       | 5,24                        |
| Cl        |                             |                             |                            | 0,01                        |
| K         | 0,46                        | 0,54                        | 0,23                       | 0,98                        |
| Ca        | 0,50                        | 0,44                        | 0,15                       | 0,30                        |
| Ti        | 0,06                        | 0,01                        | 0,08                       | 0,01                        |
| V         | 0,05                        | 0,05                        |                            | 0,03                        |
| Cr        | 0,02                        | 0,03                        | 0,01                       |                             |
| Mn        | 0,11                        | 0,06                        | 0,08                       | 0,05                        |
| Fe        | 0,45                        | 0,65                        | 0,33                       | 0,72                        |
| Ni        | 0,03                        |                             |                            | 0,03                        |
| Cu        |                             | 0,02                        |                            | 0,03                        |
| Zn        | 0,16                        | 0,20                        | 0,13                       | 0,13                        |
| Se        | 0,08                        | 0,09                        | 0,13                       | 0,06                        |
| Br        |                             | 0,03                        | 0,07                       | 0,02                        |
| Rb        | 0,02                        |                             |                            |                             |
| Sr        |                             |                             |                            | 0,02                        |
| Cd        | 0,18                        | 0,15                        |                            |                             |
| Sb        |                             |                             |                            |                             |
| Pb        | 0,03                        | 0,04                        | 0,11                       | 0,09                        |
| Soma XRF  | 8,09                        | 10,53                       | 6,16                       | 12,25                       |
| Orgânicos | 60,53                       | 67,38                       | 75,24                      | 61,26                       |

Analisando a Tabela 4.3, observa-se claramente uma diferença nos compostos químicos para cada tipo de dia. Os dias 29/11 e 23/12, ambos com céu aberto e maior concentração de aerossóis, apresentam resultados semelhantes de XRF. No dia 23/12, o mais poluído dos dois, no entanto, apresentou concentração de 0,47% de Magnésio, elemento não detectado no dia 29/11. Com relação aos outros elementos, há algumas diferenças nas concentrações percentuais, mas a soma destas resultam em percentual relativamente alto, acima dos 10%, tanto para o dia 23/12 quanto no 29/11. Observando os

resultados para o dia 10/12, nota-se uma grande diferença com os comentados anteriormente. Este dia apresentou concentrações percentuais inferiores para praticamente todos os compostos em relação aos outros dias, junto com menores concentrações de BC e maior participação dos compostos orgânicos. Ou seja, a chuva estratiforme no começo do dia realizou limpeza no ar local, principalmente dos compostos urbanos, deixando o ar com maior presença de aerossóis naturais. Com relação ao dia 28/11, dia com pancada de chuva no final da tarde, observam-se resultados na transição entre os dias mais limpos e os mais poluídos. De modo geral as concentrações percentuais são menores do que nos dias de céu aberto, com algumas exceções, de modo que a soma se manteve entre os valores observados nos dias mais poluídos e mais limpos. Ou seja, a pancada no final da tarde gerou um efeito de limpeza na atmosfera semelhante ao causado pela chuva mais contínua/estratiforme, no entanto com menor eficiência em função da duração mais curta da pancada de chuva. No entanto, a limpeza gerada pela chuva ocorreu de maneira a favorecer a participação de massa de BC, ao efetuar a deposição dos outros compostos.

Para estudar as possíveis fontes de aerossóis na região das medidas, é interessante observar a Figura 4.6. A figura de cima mostra uma visão mais ampla da região, para mostrar o posicionamento da costa e de São Paulo com relação aos instrumentos. Observando animações de imagens do RADAR banda X instalado na UNIVAP (não mostrado), foi possível identificar que as entradas da brisa marítima se deram no sentido de Sul para Norte, perpendicular à direção da costa na região de São Sebastião. Já a figura abaixo mostra a região mais próxima ao IEAv, ressaltando alguns pontos de interesse. Nota-se que o IEAv se encontra próximo a duas estradas movimentadas, a Estrada dos Tamoios e a Carvalho Pinto. As cidades de São José dos Campos e Jacareí são próximas da estação de medidas e podem constituir fonte significativa de partículas. Outros pontos de interesse mostrados são a Represa de Santa Branca a Sul, um aterro sanitário a Oeste e o aeroporto e a refinaria da PETROBRAS ao Norte.

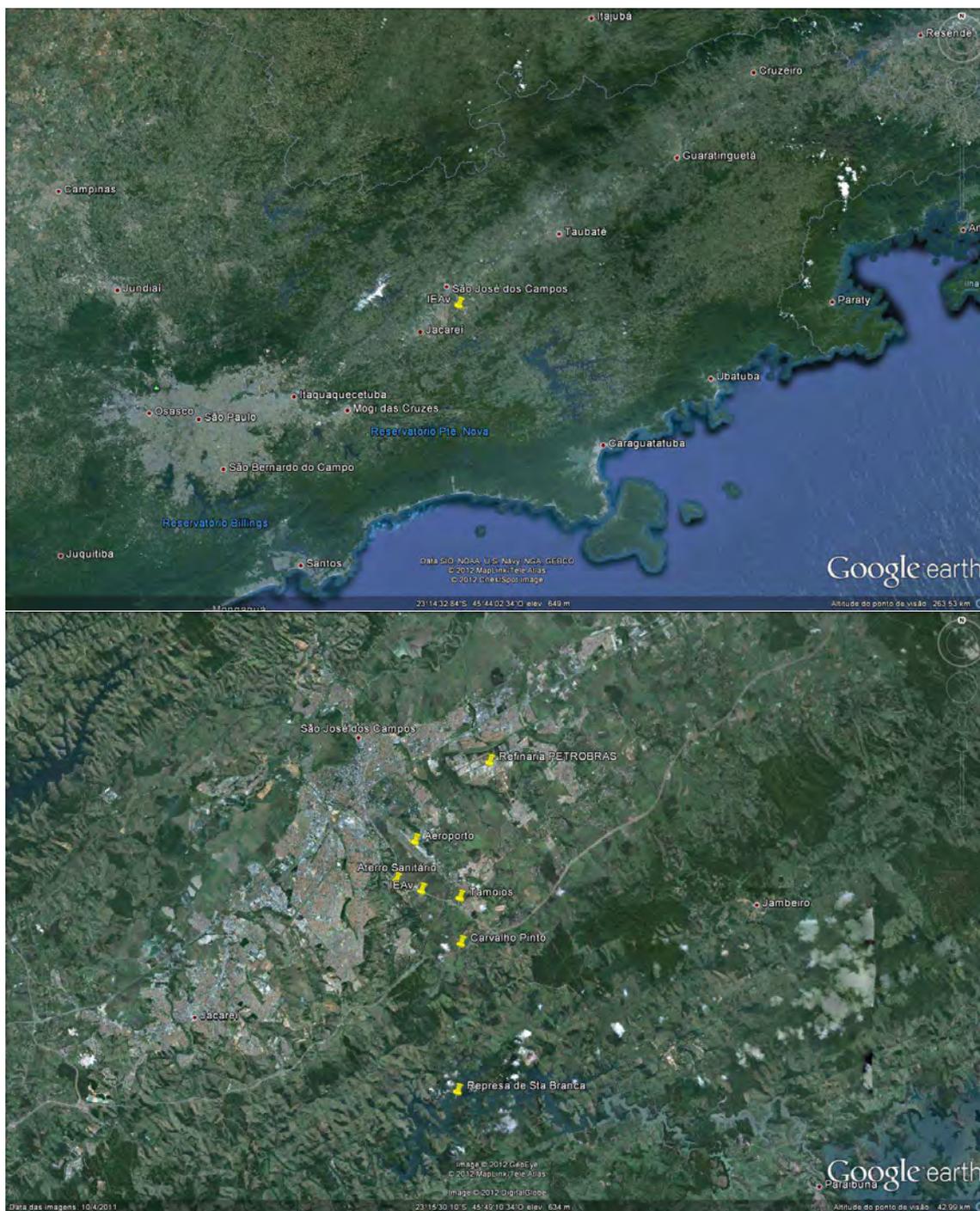


Figura 4.6 - Arredores da estação montada no IEAv. Imagem gerada pelo software Google Earth.

Para ter uma noção das escalas envolvidas, vale notar que a costa está a aproximadamente 55 km de distância em linha reta ao Sul e São Paulo a aproximadamente 90 km a Sudoeste. Uma velocidade média diária representativa do período de medidas foi de 1,7 m/s. Considerando ventos de

uma mesma direção ao longo de um dia todo com esta velocidade, temos que as massas de ar podem cobrir uma distância de aproximadamente 147 km por dia. Ou seja, dadas condições favoráveis, a estação de medidas está sujeita ao transporte de material particulado desde regiões costeiras a grandes cidades como São Paulo ou mesmo São José dos Campos. Isto, somado às transformações que os aerossóis sofrem enquanto em suspensão, gera uma variedade de espécies como representado na tabela 4.2 (isto sem considerar a enorme gama de compostos orgânicos emitidos pelas plantas).

Para entender quais são as principais fontes de aerossóis para a região é fundamental o conhecimento da circulação dos ventos. A Figura 4.7 mostra a distribuição de frequência das direções do vento a partir de dados horários obtidos pela torre meteorológica.

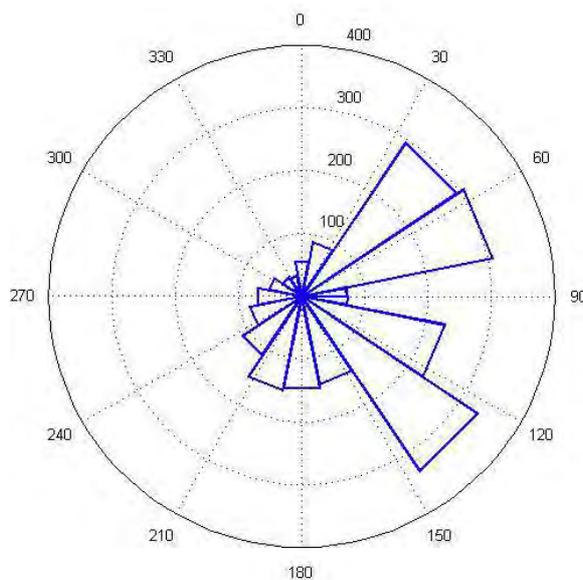


Figura 4.7 – Rosa dos ventos. Ângulos medidos em graus. A distância ao centro do círculo corresponde à contagem de medidas no intervalo angular.

Como pode ser observado, há uma predominância de ventos dos quadrantes SE e NE, seguidos por uma componente de Sul. Voltando à Figura 4.6, antecipa-se que os ventos de S e SE tragam massas de ar mais limpas para a região de estudos, uma vez que atravessam localidades mais vegetadas, do que os ventos de NE, que podem trazer resquícios da atividade da refinaria da

PETROBRAS ou mesmo de cidades como Taubaté e alguns bairros de São José dos Campos. É importante notar, no entanto, que ventos do quadrante Oeste, mesmo que menos frequentes, são fundamentais para a caracterização da circulação local uma vez que frequentemente estão associados a pancadas de chuva. Para relacionar os dados de ventos com o transporte de partículas, foi gerada a Figura 4.8, onde é mostrada a relação entre a circulação e as concentrações de particulado medidas pelo CPC. Na figura de cima são mostradas médias horárias de concentrações de PT em formato polar, onde a distância ao centro é a intensidade do vento, a direção deste mostrada em graus e as cores se referem à concentração numérica de aerossóis conforme a escala mostrada. A figura abaixo, por outro lado, mostra as médias diárias das concentrações de PT em função da mediana da direção do vento no dia (direção representativa do dia em termos de frequência de ocorrência), junto com um ajuste polinomial de segundo grau.

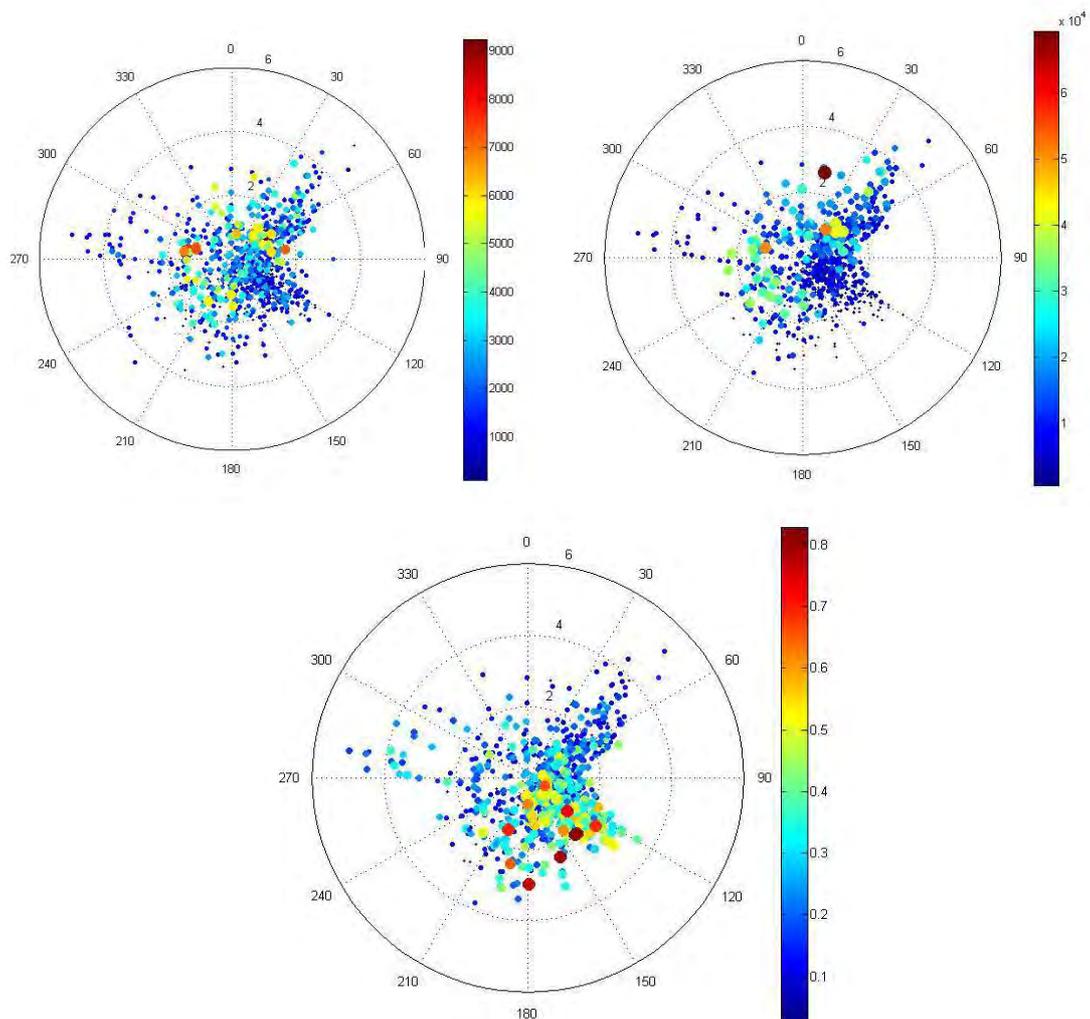


Figura 4.8 - Relações entre as concentrações numéricas das partículas e a circulação de ventos. As três figuras mostram, no sentido horário começando acima e a esquerda, resultados obtidos tirando médias horárias (esta foi a frequência de medidas utilizada na torre meteorológica) da relação entre, respectivamente, CCN, PT e Eficiência com as velocidades e direções dos ventos. As direções dos ventos são mostradas em graus, enquanto que a velocidade é dada em m/s e corresponde à distância ao centro do círculo. As concentrações estão em  $\text{cm}^{-3}$  e a eficiência é adimensional.

Nas figuras referentes aos dados horários mostram um padrão coerente com a disposição geográfica da região, mostrada na Figura 4.6. Foram observadas concentrações relativamente pequenas tanto de PT quanto de CCN para ventos de SE, direção onde há maior presença de vegetação, além de estar relacionado com a entrada da brisa marítima. O tipo de particulado trazido pelos ventos de SE são pouco numerosos, no entanto são mais eficientes para

a formação de gotas de chuva do que os aerossóis mais urbanos, como mostra o gráfico mais em baixo na Figura 4.8. Foram observadas maiores concentrações de CCN e PT para as outras direções de ventos, relacionado à disposição de centros urbanos/industriais ao redor do IEAv. Estes aerossóis são menos eficientes para a formação de nuvens em função de seu tamanho reduzido. Como mostrou a Figura 4.7, os ventos de SE foram os de maior frequência durante o período de medidas, indicando que o tipo de partícula trazido por esses ventos é importante para a formação e caracterização dos sistemas precipitantes da região. Outro fator interessante mostrado na Figura 4.8 é a relação da intensidade dos ventos com a concentração de particulado. Nota-se que os ventos mais intensos (acima de 3 m/s por exemplo) estão relacionados a baixas concentrações numéricas tanto de CCN quanto de PT. Estima-se, no entanto, que este seja um efeito mais instrumental e não um processo físico especificamente, onde os ventos mais intensos dificultaram a entrada das amostras de particulado no *inlet* dos instrumentos CCNC e CPC (ambos os instrumentos utilizaram o mesmo *inlet*).

Realizando um estudo da relação entre os ventos e as concentrações de cada elemento, foram encontradas relações relativamente pronunciadas apenas para S, Compostos Orgânicos, BC, K, Fe e Zn, como mostra a Figura 4.9. Foram utilizadas as medianas diárias das direções dos ventos para esta análise.

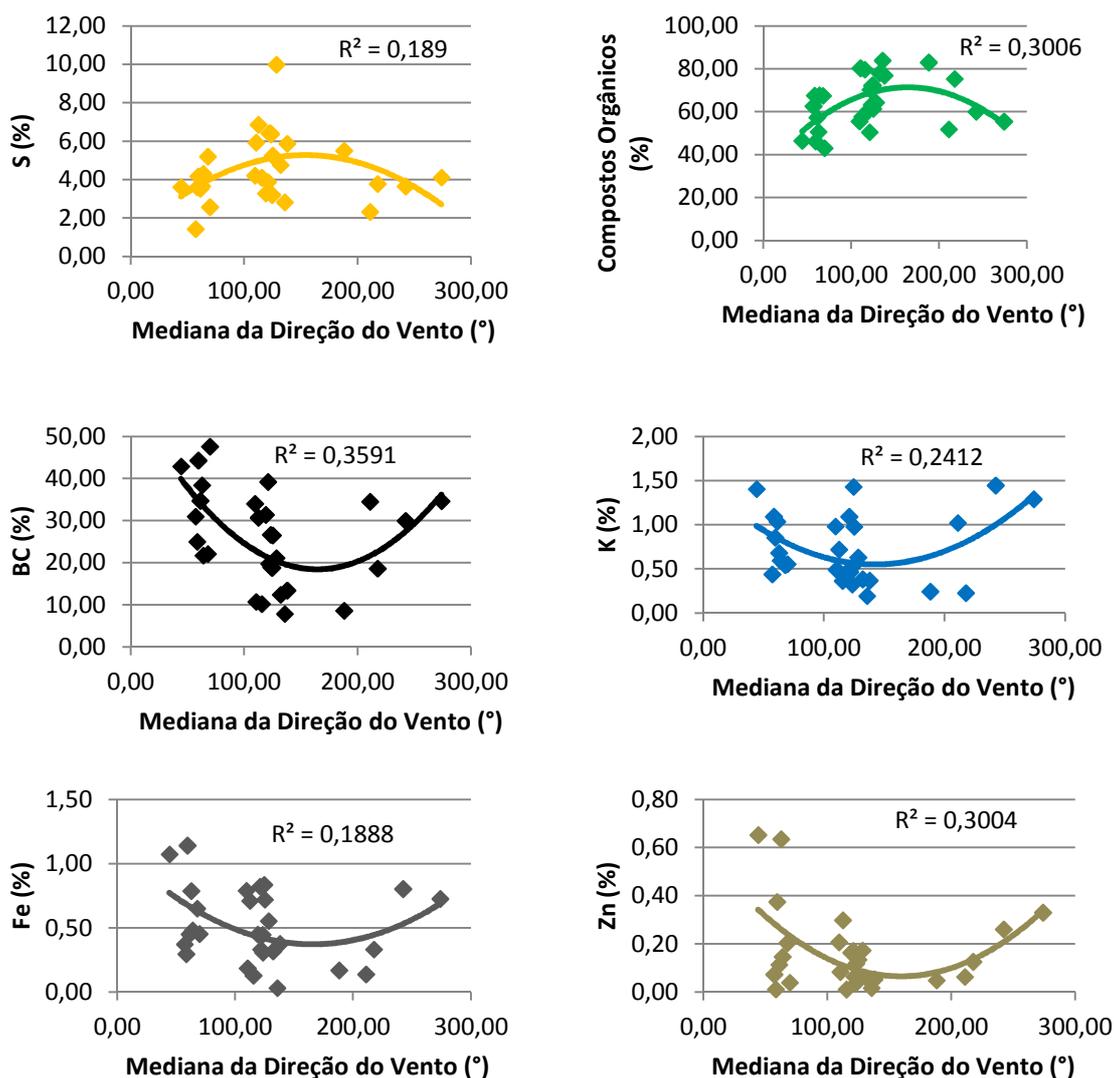


Figura 4.9 - Relações entre circulação dos ventos e as concentrações fracionárias de massa de S, Compostos Orgânicos, BC, K, Fe e Zn.

Como pode ser observado as relações entre as concentrações fracionais de massa dos elementos mostrados não obtiveram coeficiente  $R^2$  próximo à unidade, no entanto mostram uma tendência de seus comportamentos. No caso do Enxofre, o resultado obtido foi o oposto do inicialmente esperado. As maiores concentrações mássicas percentuais deste elemento foram associadas a ventos de E/SE, enquanto houve tendência de valores pequenos para ventos de quadrante Norte e Oeste/SO. Considerando que ao norte se encontram bairros de São José dos Campos e a refinaria da PETROBRAS e ao Oeste grande parte da cidade, esperavam-se maiores concentrações de

Enxofre vindas destes sentidos. Nota-se que as concentrações de compostos orgânicos seguem padrão semelhante ao do Enxofre, com maiores concentrações associadas a ventos do quadrante Sul. Estes dois gráficos mostram que estes compostos estão mais presentes, percentualmente, em material particulado de origem natural. O comportamento oposto, observado nos compostos BC, K, Fe e Zn, mostra a origem urbana destes elementos e a influência destes na composição atmosférica do local de medidas.

Para analisar quais compostos são mais importantes para a formação de CCN, foram feitas algumas correlações entre as concentrações mássicas normalizadas dos elementos e a fração de ativação média diária. Esta análise mostrou algumas leves tendências, mas não foi possível tirar alguma conclusão definitiva em termos quantitativos, então a seguir será feita uma breve descrição qualitativa dos resultados obtidos com este estudo. Foi observada uma leve tendência de aumento da fração de ativação com o aumento da concentração relativa de Enxofre, o que está de acordo com o esperado uma vez que os sulfatos são reconhecidamente ativos para a formação de gotas (principalmente o sulfato de amônia, composto abundante na atmosfera continental). Uma tendência de diminuição da eficiência de ativação foi observada com o aumento das concentrações de Zinco, Manganês e Chumbo, materiais relacionados a emissões urbanas/industriais que são pouco higroscópicos. Para os outros elementos não foi observada nenhuma relação entre suas concentrações e a eficiência de ativação dos aerossóis.

#### **4.2.1. Classificações diárias**

Para realizar a classificação dos padrões diários foi necessária primeiramente uma análise detalhada dos resultados das medidas dos instrumentos utilizados para averiguar quais as variáveis mais adequadas para a classificação. Para tanto, foram analisadas variações intradiurnas para todos os dias do período de temperatura, umidade reativa, pressão, concentrações de CCN e PT, velocidade e direção dos ventos e taxa de precipitação. A partir dessa análise foi feita uma classificação diária de modo subjetivo, inicialmente sem quantificar as variáveis, e percebeu-se que utilizando apenas informações do contador de

CCN, das medidas do disdrômetro e dos dados de temperatura já seria possível realizar uma classificação objetiva. O intuito desta nova abordagem foi o de classificar os dias que não tinham sido classificados de maneira subjetiva, em função do não reconhecimento visual do padrão. A análise objetiva foi construída de maneira a coincidir com a classificação subjetiva nos dias já definidos e seguiu a árvore de decisões mostrada na Figura 4.10.

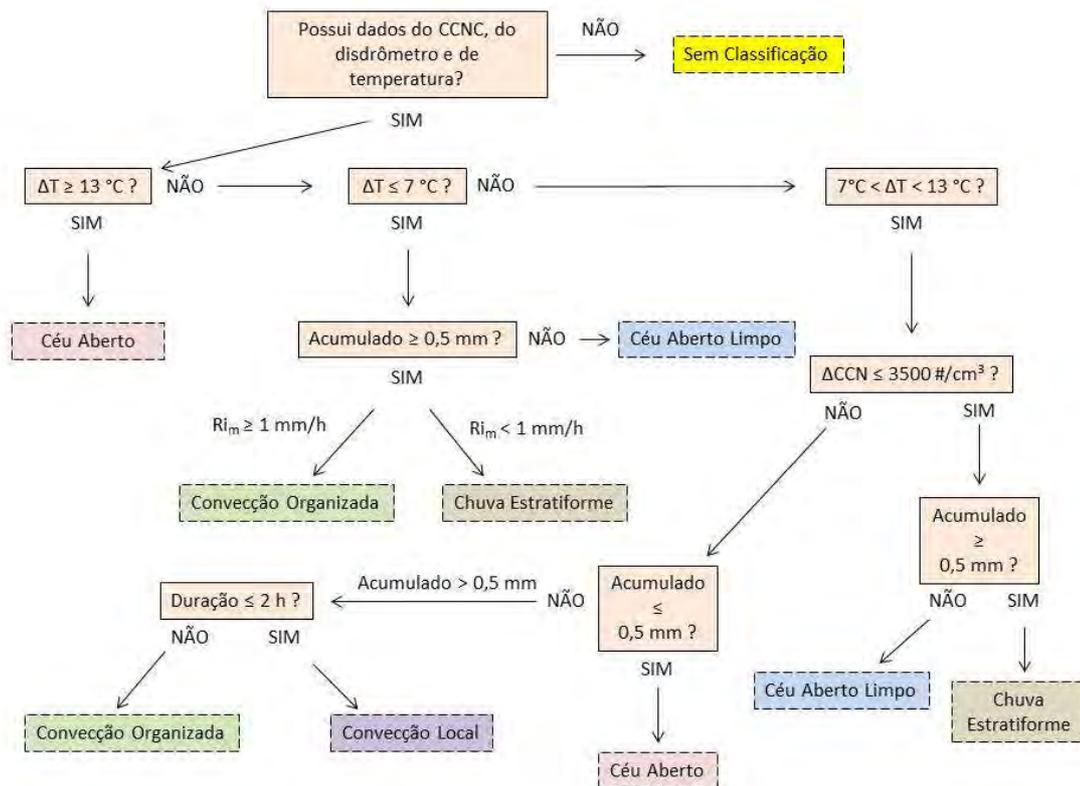


Figura 4.10 - Árvore de decisões da classificação objetiva.  $RI_m$  se refere à taxa média de precipitação durante os eventos de chuva do dia.  $\Delta CCN$  é a amplitude de concentrações de CCN do dia.

Vale notar que no esquema mostrado na Figura 4.10, antes da classificação final de um dia, é feita uma checagem não somente da existência de dados para o dia, mas também se estes possuem quantidade suficiente para a classificação. Por exemplo, para os dias com menos de 12 dados horários de temperatura não foi feita a classificação. Caso haja menos de 30 dados de concentrações de CCN para  $SS = 1\%$ , nas decisões que levam tais valores em consideração, o dia também é considerado sem classificação. Para calcular a

duração e intensidade média ( $RI_m$ ) dos eventos, foi realizado o seguinte procedimento: primeiramente foi feita uma média móvel de 5 minutos nos dados do disdrômetro (5 medidas pois o instrumento faz medições minuto a minuto); em seguida foram detectados eventos de chuva, considerando os períodos com taxa de precipitação maior do que zero na média móvel do disdrômetro; desta maneira são encontrados vários eventos de chuva por dia em função da sensibilidade das medidas do disdrômetro, então foi utilizado o evento de maior duração no dia;  $RI_m$  foi calculado considerando todos os eventos do dia.

Pela Figura 4.10, nota-se que os dias foram divididos entre 5 tipos de classificação, com 2 para dias sem chuva e 3 para dias com chuva: Céu Aberto, Céu Aberto Limpo, Chuva Estratiforme, Convecção Organizada e Convecção Local. Os limiares utilizados pela classificação objetiva foram baseados na análise subjetiva. É importante ressaltar que esta análise foi feita a partir de medidas em apenas um local, dentro de uma mesma estação do ano. Ou seja, os resultados mostrados não são globais e seu intuito foi apenas o de agrupar dias com propriedades semelhantes dentro do conjunto de dados utilizado.

O padrão denominado Céu Aberto define um dia onde não ocorreu precipitação (dentro dos limiares mostrados na Figura 4.10), com alta amplitude térmica, alta amplitude de CCN, geralmente mais poluído e as variações nas concentrações de CCN são mais próximas do ciclo diurno médio. A Figura 4.11 mostra um exemplo deste padrão (horário local). Por esta figura pode-se notar que as concentrações de CCN são menores durante a madrugada/manhã, aumentam rapidamente a partir das 10:00 aproximadamente e em seguida retornam a um patamar de valores levemente maiores do que os observados nas primeiras horas do dia. A amplitude total de CCN deste dia foi relativamente grande, ficando em torno de  $6000 \text{ \#/cm}^3$ , com concentrações de PT que variaram entre 2500 a  $45000 \text{ \#/cm}^3$ . Os ventos, de modo geral, sopraram de Leste até as 11:00 da manhã, girando para o quadrante Sul e em seguida SE. Conforme o vento girou para a direção aproximada de SE, a

fração de ativação aumentou, mostrando que partículas mais eficientes para a transformação em gotas de nuvens foram advectadas para o local. Foi possível observar um aumento nas concentrações de PT e uma queda na eficiência do particulado às 07:00, associado à emissão dos veículos dos trabalhadores que estavam chegando ao instituto e à formação de aerossóis secundários, que em seguida foram capazes de ativar gotículas de nuvens, como pode ser observado no aumento do número de CCN em torno das 08:00.

Um exemplo de dia com a classificação de Convecção Local é mostrado na Figura 4.12. Estes dias foram caracterizados por amplitudes térmicas e de CCN um pouco inferiores às dos dias de Céu Claro, com a presença de uma típica pancada de chuva no final da tarde. Observam-se concentrações de CCN relativamente baixas durante a madrugada/manhã, com aumento no início da tarde. No entanto, com a aproximação de um sistema precipitante, as concentrações de CCN começam a diminuir mais rapidamente do que o observado em dias de céu claro, mesmo aproximadamente 4 horas antes do início da chuva no local. Com a chegada da precipitação, as concentrações de CCN atingem um mínimo local, mostrando o efeito de *rainout* e *washout* (partículas são depositadas por ação das gotas de chuva). Este efeito, no entanto, não foi observado do mesmo modo nas concentrações de PT. Observa-se um aumento nas concentrações de particulado total mesmo com a presença de precipitação, sugerindo que ao mesmo tempo em que o sistema limpa o ar das partículas maiores ele gera um levantamento de partículas pequenas, que inclusive pode ser um mecanismo de retroalimentação de particulado para o sistema. Em torno das 19:00 horas houve uma rápida queda nas concentrações de PT, no entanto isto não foi associado diretamente aos efeitos de *rainout* e *washout*, uma vez que a chuva já havia terminado. O efeito da precipitação no tipo de particulado na atmosfera também pode ser observado através dos valores das frações de ativação. Com a chegada da precipitação e a consequente redução das partículas maiores em suspensão, a eficiência de ativação foi reduzida, chegando a valores inferiores a 10%. Com relação à direção dos ventos, observou-se um padrão semelhante ao do caso de Céu Claro mostrado na Figura 4.11, com um giro de Leste para Sul na

transição entre a manhã e a tarde, com retorno para ventos de Leste no final da tarde/Noite.

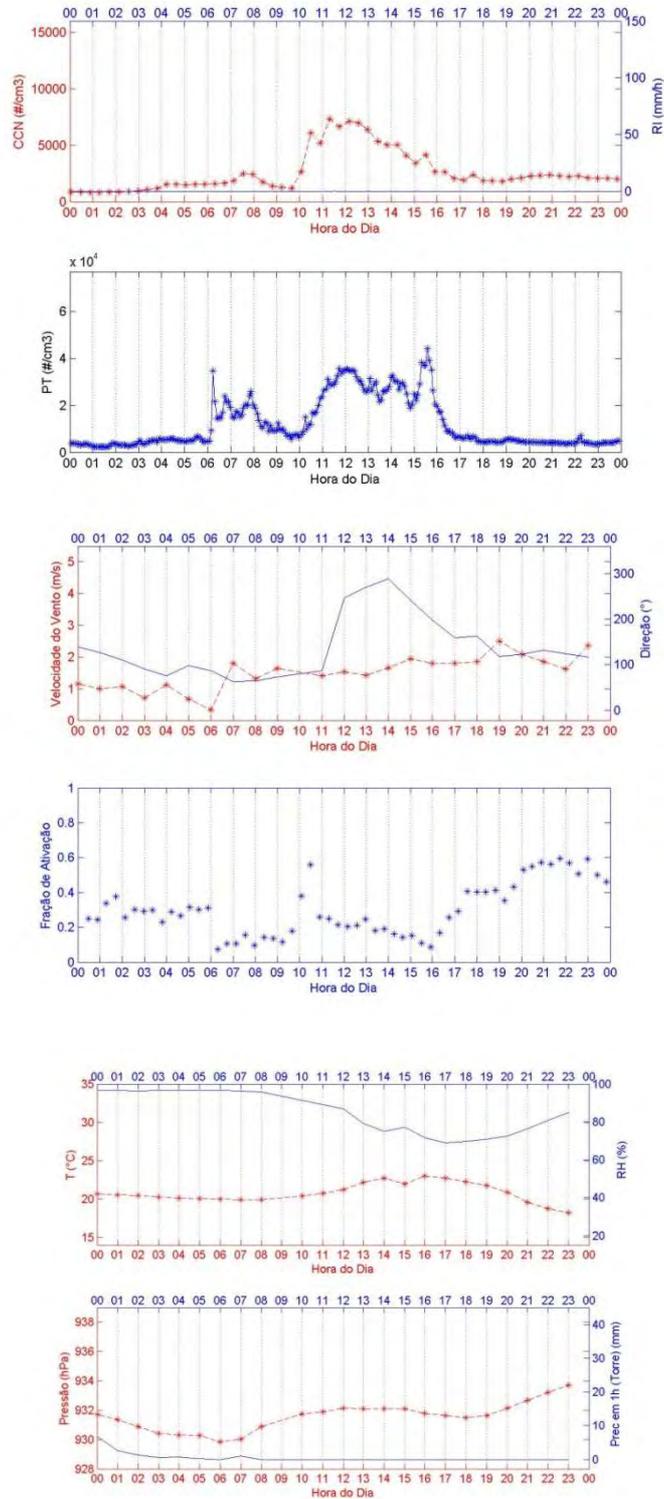


Figura 4.11 - Exemplo das propriedades de um dia com o padrão Céu Claro. Dia 12/12/2011.

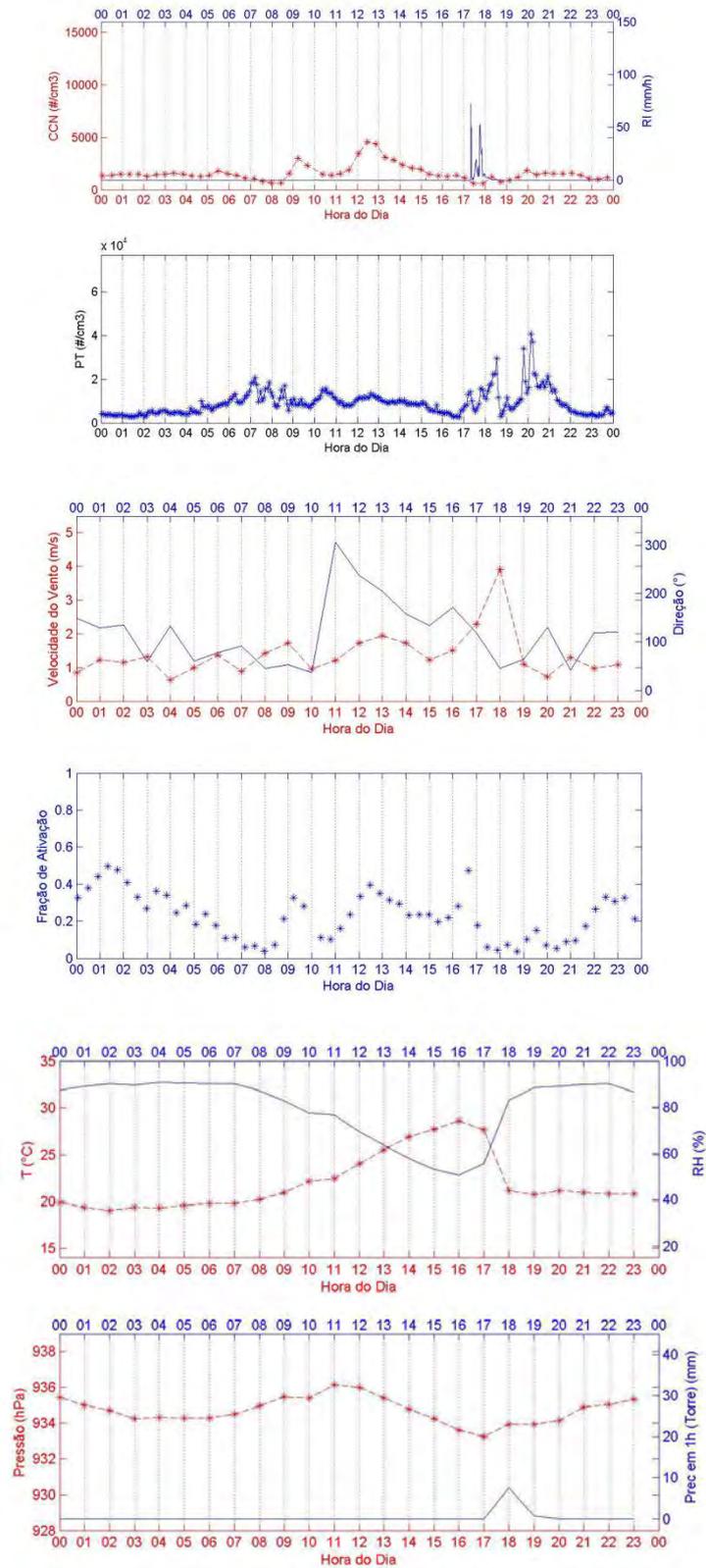


Figura 4.12 - Exemplo de dia com o padrão Convecção Local. Dia 28/11/2011.

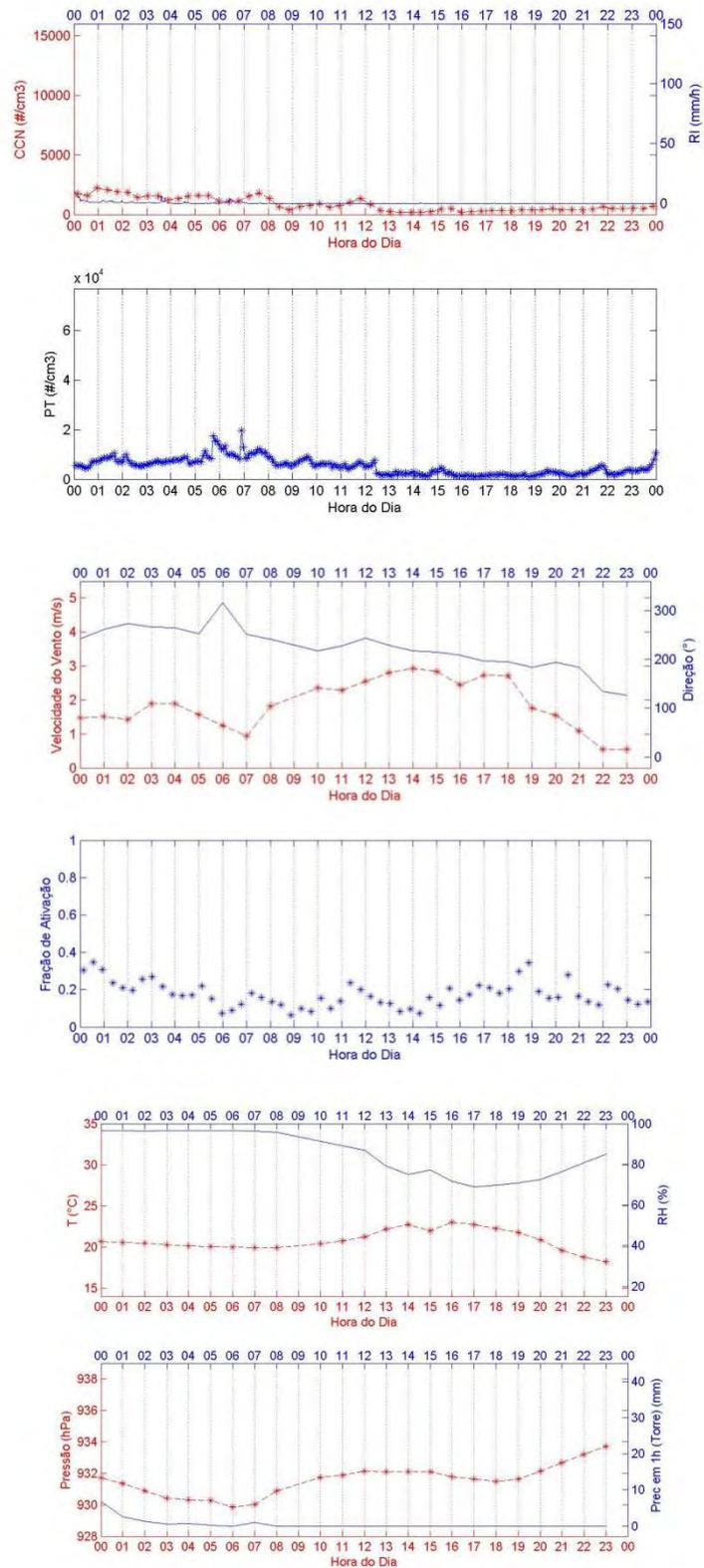


Figura 4.13 - Exemplo de dia com classificação Estratiforme. Dia 10/12/2011.

Ao contrário do que foi mostrado até o momento, foram observados dias com baixas concentrações e amplitudes de CCN e baixas amplitudes térmicas, associados às passagens de sistemas de precipitação estratiforme. Um exemplo é mostrado na Figura 4.13. Este dia foi caracterizado por chuva estratiforme na parte da manhã que garantiu condições de limpeza na atmosfera em termos de particulado. A chuva observada foi remanescente de um sistema do dia anterior, associado à ZCAS e à passagem de um cavado em superfície associado a um sistema de baixa pressão no Atlântico. Observa-se que as concentrações de CCN ficaram abaixo de aproximadamente  $2200 \text{ \#/cm}^3$  e atingiram valores tão baixos quanto da ordem de  $200 \text{ \#/cm}^3$ . Esta concentração, por exemplo, é comparável com as observadas em regiões remotas da Amazônia. É interessante notar que, grosso modo, ambos os valores das concentrações de CCN e PT foram decaindo ao longo do dia, coerente com o lento giro do vento em direção a SE. A fração de ativação se manteve relativamente constante ao longo do dia, com exceção de um aumento brusco próximo ao meio dia (e outro de menor intensidade à 01:00 da madrugada).

Além das pancadas de final de tarde e os sistemas de precipitação mais estratiforme, também foram observados dias com chuvas mais intensas e/ou de longa duração (se comparada à duração das pancadas). Estes dias foram classificados com o padrão Convecção Organizada e um exemplo é mostrado na Figura 4.14. Observa-se que neste dia mostrado a amplitude de concentrações de CCN foi extremamente alta, com valores medidos inferiores a  $1000 \text{ \#/cm}^3$  e superiores a  $10000 \text{ \#/cm}^3$  no mesmo dia. O padrão de ventos foi semelhante aos padrões observados de Céu Claro e Convecção Local com o giro no início da tarde e retorno gradual à direção observada de manhã. No caso mostrado na Figura 4.14 não foi observada uma queda rápida nas concentrações de CCN antes da chegada da chuva, como no caso do padrão Convecção Local. No entanto, a chegada do sistema precipitante diminuiu drasticamente as concentrações de CCN e PT, esta última voltando a crescer logo que a primeira pancada de chuva terminou. A segunda pancada observada à noite diminuiu um pouco mais as concentrações de CCN e PT. É

interessante notar os dias com padrões Convecção Organizada e Convecção Local mostrados foram semelhantes em termos de circulação dos ventos e variações nas concentrações de CCN, com a diferença em função do tipo de precipitação. O mesmo tipo de semelhança ocorreu entre outros dias classificados como Convecção Organizada, mas com relação aos dias com chuva estratiforme. Isto ocorreu pois os limiares utilizados no método de classificação objetiva identificam os dias como Convecção Organizada na ocorrência tanto de chuvas contínuas muito fortes para serem chamadas de estratiforme, quanto para pancadas muito longas para serem definidas como convecção local.

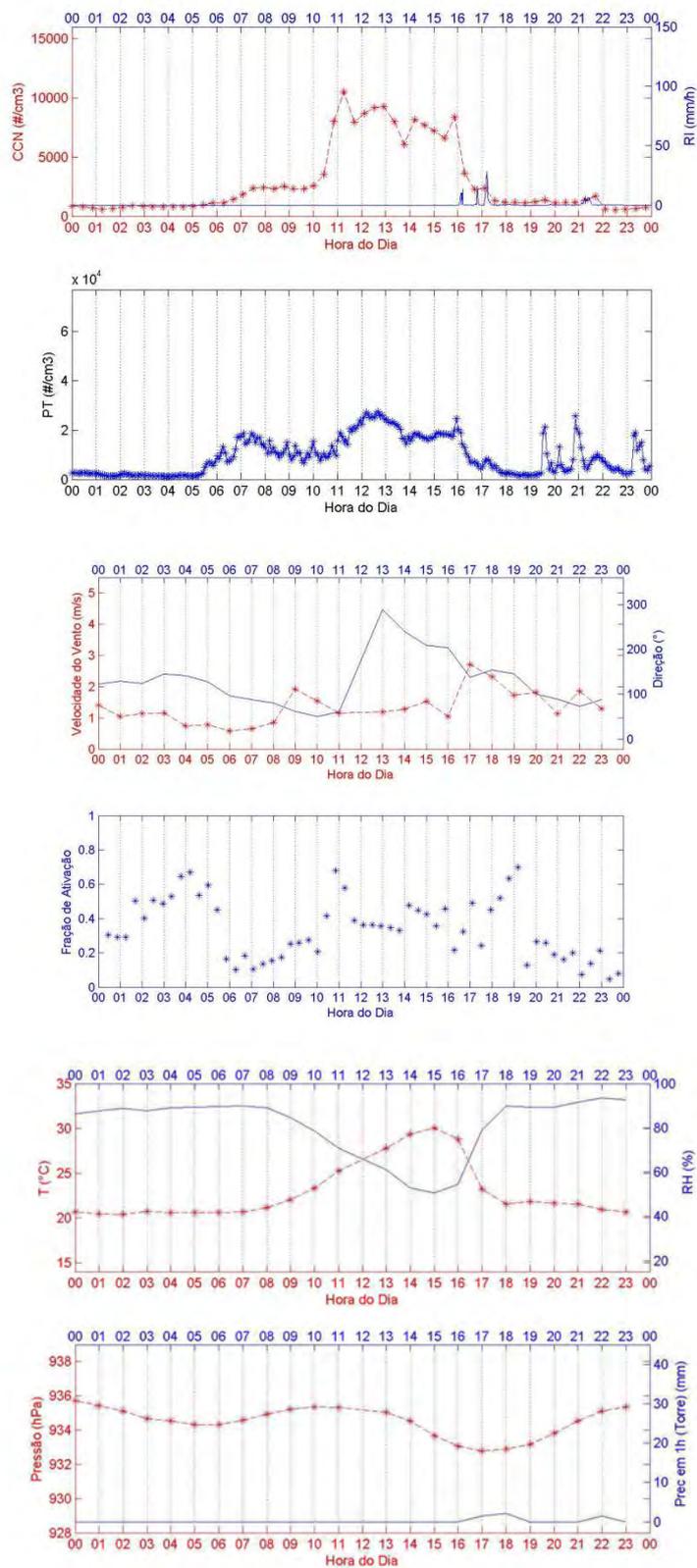


Figura 4.14 - Exemplo de dia com a classificação Convecção Organizada. Dia 07/12/2011.

Finalmente, foi encontrado o padrão denominado Céu Aberto Limpo, mostrado na Figura 4.15. Estes dias foram relativamente mais limpos, mas não houve ocorrência de chuva (dentro dos limiares adotados no método de classificação objetiva). É importante notar que o nome Céu Aberto Limpo não foi escolhido baseado em informações de cobertura de nuvens, mas sim em acumulados de chuva em superfície. Ou seja, estes dias podem ter sido encobertos por nuvens, mas a nomeação foi escolhida de maneira a separar mais claramente os dias com e sem a ocorrência de precipitação e não nuvens apenas. Dias com a classificação Céu Aberto Limpo foram selecionados em função das baixas amplitudes térmicas e de CCN e da baixa concentração numérica de CCN. Observa-se que o ciclo diurno das concentrações de CCN é semelhante ao do dia de Céu Claro mostrado anteriormente, no entanto com menores valores numéricos. Os ventos se mantiveram ao redor da direção SO ao longo de todo o dia, sem giros bruscos.

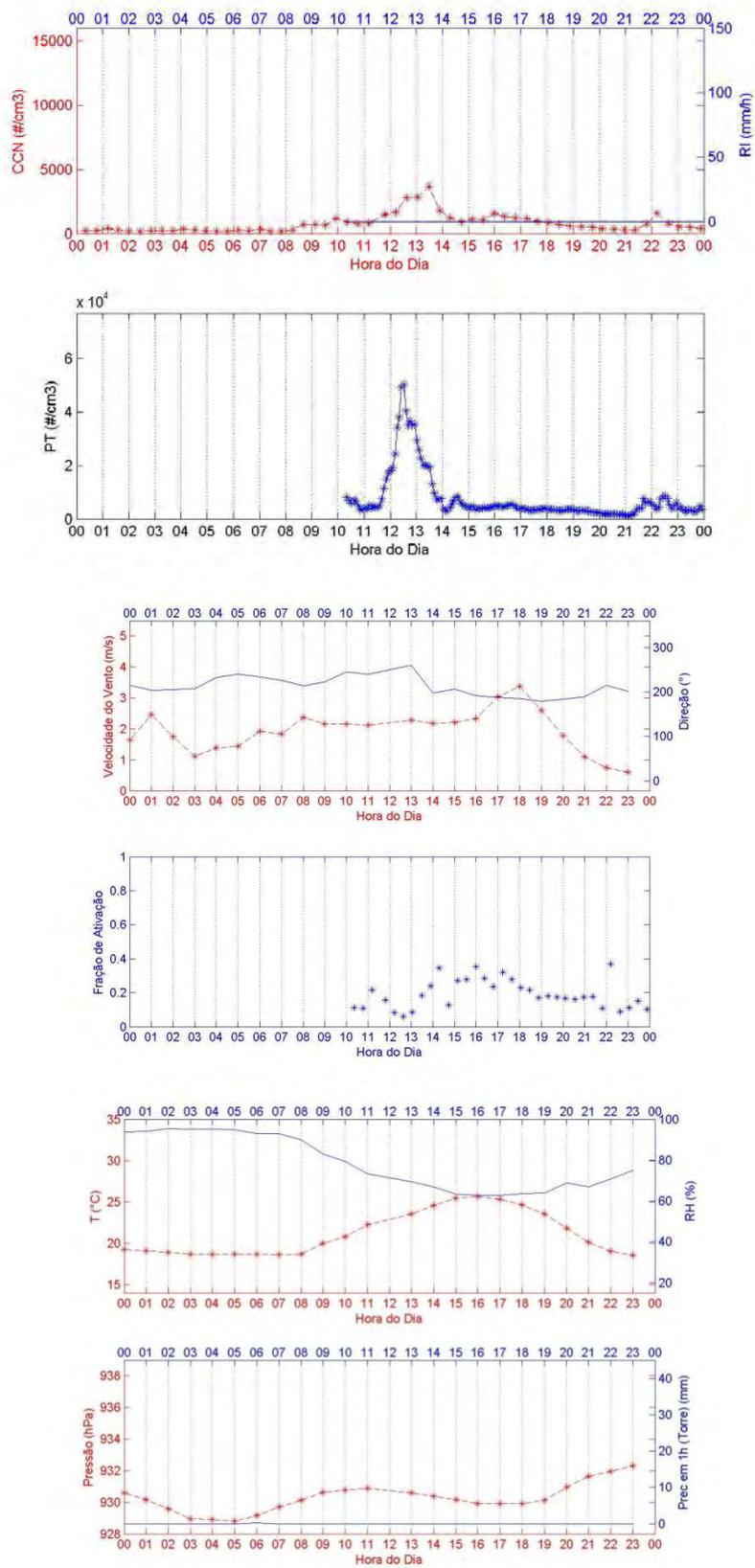


Figura 4.15 - Exemplo de dia com o padrão Céu Aberto Limpo. Dia 02/01/2012.

### 4.3. Caracterização dos eventos de precipitação

Os eventos de precipitação foram caracterizados a partir das medições feitas pelo disdrômetro Joss. Este instrumento coletou um total de 7004 distribuições de tamanho de chuva (DSD), com acumulado total de 295,74 mm de chuva durante o período de 22/11/2011 a 10/01/2012. As distribuições de tamanho foram medidas com intervalo de 1 minuto.

Primeiramente foi realizada uma análise para aferir a relação entre as DSD medidas com as intensidades de precipitação e com o ciclo diurno médio. Os resultados estão sintetizados na Figura 4.16.

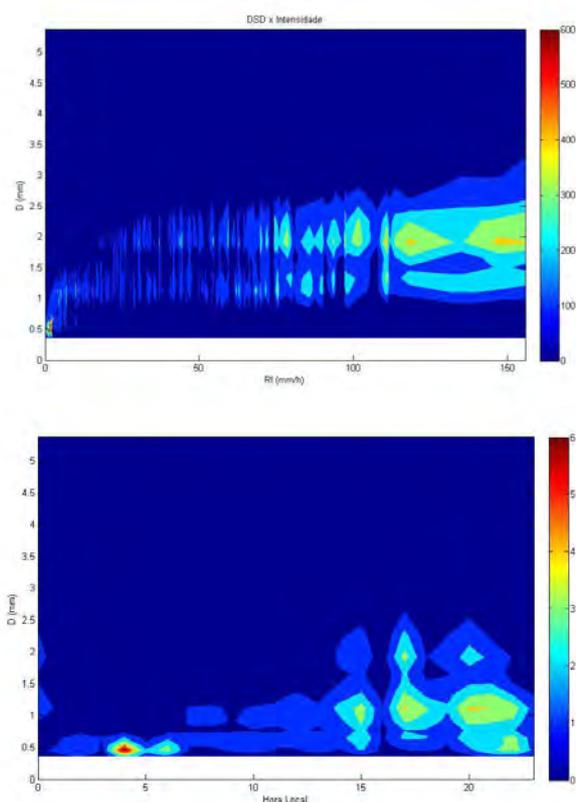


Figura 4.16 - Acima: DSD em função da taxa de precipitação. Abaixo: Ciclo diurno médio das DSD. A escala de cores nas figuras são contagens de gotas nos intervalos de diâmetros do Joss.

Como pode ser observado na Figura 4.16, há um padrão claro na relação entre as DSD e a intensidade de precipitação. As chuvas mais fracas tendem a possuir predominantemente gotas abaixo de 1 mm de diâmetro, com DSD uni

modal. Conforme a intensidade de precipitação (RI – *rainfall intensity*) aumenta, as DSD se tornam mais largas e com característica bi modal, com picos de concentração de gotas próximos a 1 e 2 mm. Com esse padrão em mente, é possível perceber que as chuvas mais intensas observadas no período de medidas ocorreram durante o período entre o meio da tarde e aproximadamente 21:00 horas (gráfico abaixo na Figura 4.16). Por outro lado, as chuvas mais fracas ocorreram predominantemente na parte da manhã. Entre estes dois períodos, compreendendo entre aproximadamente 08:00 e 14:00, houve ocorrências de chuvas moderadas com DSD característica da mistura de eventos estratiformes e convectivos. Observa-se a presença de DSD bi modal no horário aproximado de 00:00 horas local, mostrando que no período de medida também foram observadas chuvas relativamente intensas durante o início da madrugada.

Para cada DSD foi aplicado o método dos momentos, conforme descrito na Metodologia, com o qual foi possível o ajuste da função gamma. Este ajuste foi feito através dos parâmetros  $N_0$ ,  $m$  e  $\Lambda$ , que representam, respectivamente, o intercepto, a forma e a curvatura das DSD, quando visualizadas em gráfico com escala logarítmica. O cálculo dos parâmetros da distribuição gamma resultou em valores de  $N_0$  extremamente variantes, abrangendo cerca de 100 ordens de magnitude. Desta maneira, julgou-se necessária aplicação de filtros aos resultados para possibilitar as análises das DSD parametrizadas. Observou-se que as DSD com parâmetros mais instáveis eram relacionadas a baixas taxas de precipitação (RI), então se decidiu excluir as medidas com  $RI < 1$  mm/h, eliminando a maior parte das DSD com contagens insuficientes de gotas para a parametrização. Para ajustar uma curva a uma série de dados, são necessários ao menos 3 dados para fornecer informações sobre a curvatura. Ou seja, medições com contagens maiores do que zero em menos de 3 bins do Joss foram excluídas das análises. Após o cálculo dos parâmetros nas DSD restantes, foram ainda observadas anomalias, onde alguns parâmetros tendiam ao infinito ou eram indefinidos. Esses casos também foram eliminados pois se tratavam de minoria (menos de 0,5% dos casos) e estavam associados a DSD onde foi observado variações extremamente bruscas entre

as contagens em diferentes *bins*, impossibilitando a parametrização. Por fim, foram eliminadas as DSD com valores de  $N_0$  acima de  $10^{20}$  e abaixo de  $10^{-10}$ , pois se tratavam de minoria e instabilizavam os cálculos de médias dos parâmetros. Esses ajustes eram mal condicionados pela pouca representatividade do espectro descrito naquele minuto. Com estes filtros restaram 1866 DSD para a análise, com acumulado total medido de 278,31 mm. Note que embora tenham sido eliminados 73% dos dados, o acumulado total de precipitação diminuiu em apenas 6%, mostrando que a aplicação dos filtros preservou a maior parte das DSD que são significativas para as análises.

Através da DSD parametrizada como função Gamma, pode-se estimar a taxa de precipitação através da Equação 3.2.2.6. O método dos momentos se mostrou eficiente ao representar as medidas de DSD, pois as intensidades de precipitação parametrizadas estão de acordo com as medidas (Figura 4.17). Esta figura mostra a alta capacidade de se representar a intensidade de precipitação através do método dos momentos, onde foi obtido coeficiente de correlação linear ( $R^2$ ) de 0,9996 entre as intensidades parametrizadas e medidas.

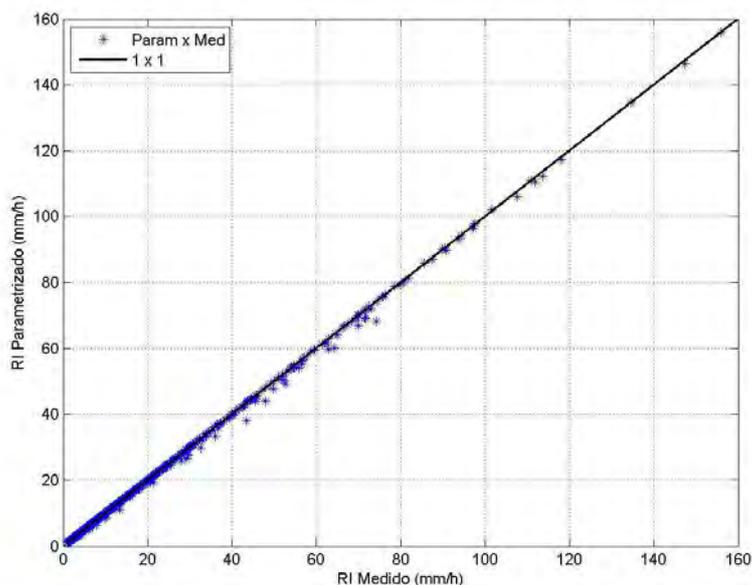


Figura 4.17 - Correlação entre as intensidades obtidas pela parametrização e as medidas (em azul), junto com a reta 1 x 1 para comparação.

As distribuições de frequências de RI e dos parâmetros do ajuste gamma são mostradas na Figura 4.18.

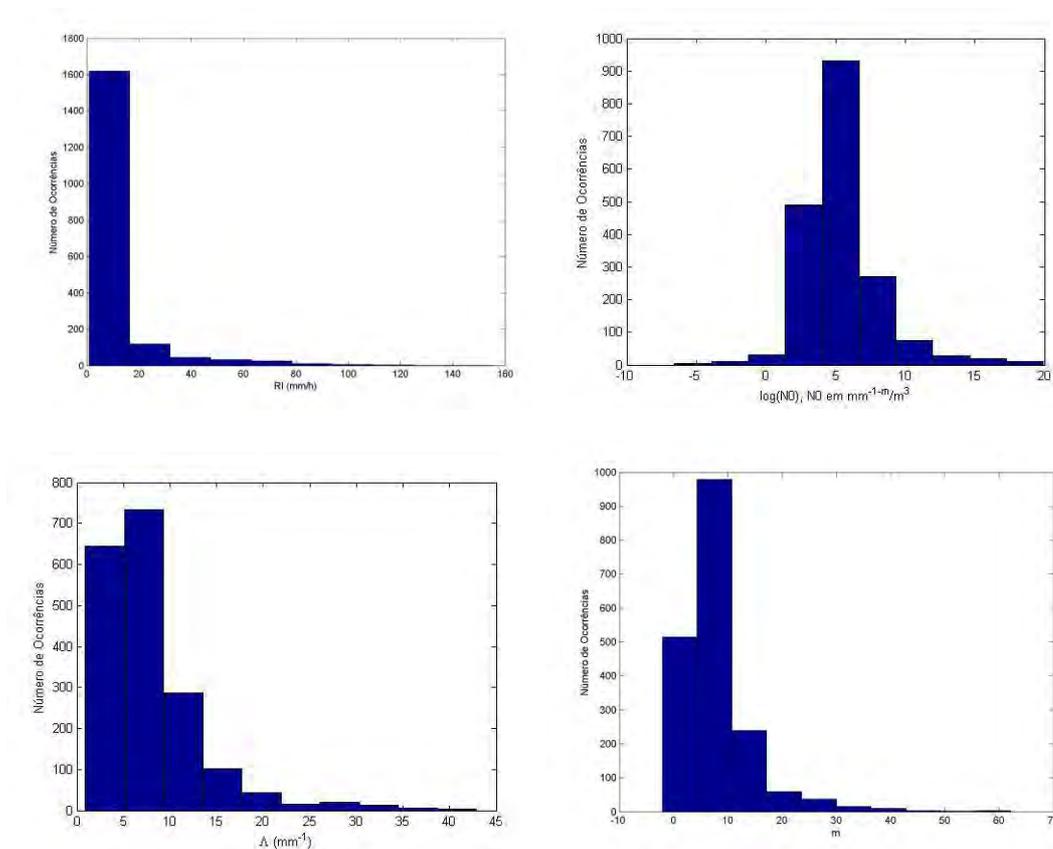


Figura 4.18 - Distribuições de frequências de RI e dos parâmetros do ajuste gamma. No sentido horário: Intensidade de precipitação;  $N_0$ , em escala logarítmica (a unidade de  $N_0$  é  $\text{mm}^{-1-m} \cdot \text{m}^{-3}$ , onde o  $m$  no expoente do  $\text{mm}$  corresponde à unidade do parâmetro de forma  $m$  do ajuste gamma);  $\Lambda$  e  $m$ .

É possível ver que a grande maioria das DSD (aproximadamente 85 %) são relativas a taxas de precipitação inferiores a 20 mm/h. O parâmetro  $N_0$  é o que possui maior variação numérica, abrangendo mais de 20 ordens de grandeza mesmo após a aplicação dos filtros. Os parâmetros  $m$  e  $\lambda$  possuem valores numéricos mais semelhantes que não alcançam uma centena. As medianas dos parâmetros são mostradas na Tabela 4.4.

Tabela 4.4 - Medianas dos parâmetros obtidos pela parametrização gamma.

| Parâmetro                                 | Mediana            |
|---|--------------------|
| $N_0$ ( $\text{mm}^{-1}\cdot\text{m}^3$ ) | $7,28 \times 10^4$ |
| m   | 6,36               |
| $\Lambda$ ( $\text{mm}^{-1}$ )            | 6,36               |

Com estes dados, nota-se que a DSD com maior representatividade em termos de frequência do conjunto de dados analisados é a mostrada na Figura 4.19 (obtida aplicando a equação 3.2.2.1). Integrando esta DSD, obtém-se RI de 2,96 mm/h, que está de acordo com a distribuição de frequências de RI, mostrado na Figura 4.18.

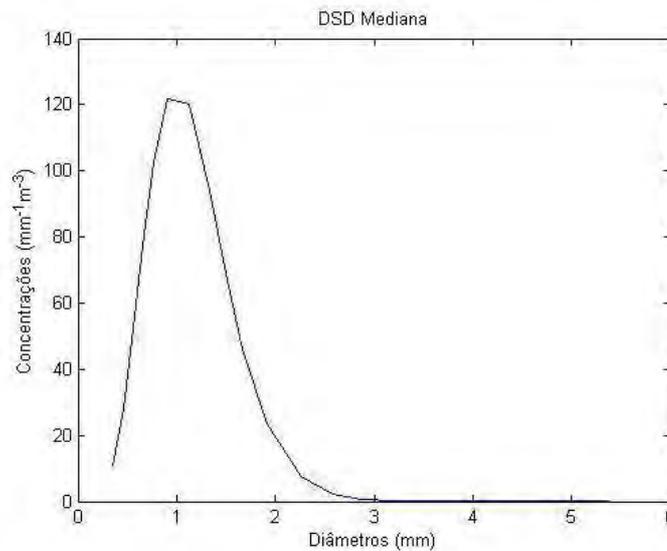


Figura 4.19 - DSD obtida através da equação 3.2.2.1 com a mediana dos parâmetros do ajuste gamma.

### 4.3.1. Análise de clusters

Os três parâmetros obtidos no ajuste da função gamma foram dispostos em espaço tridimensional para analisar as variações de cada parâmetro e suas inter-relações. O resultado é mostrado na Figura 4.20.

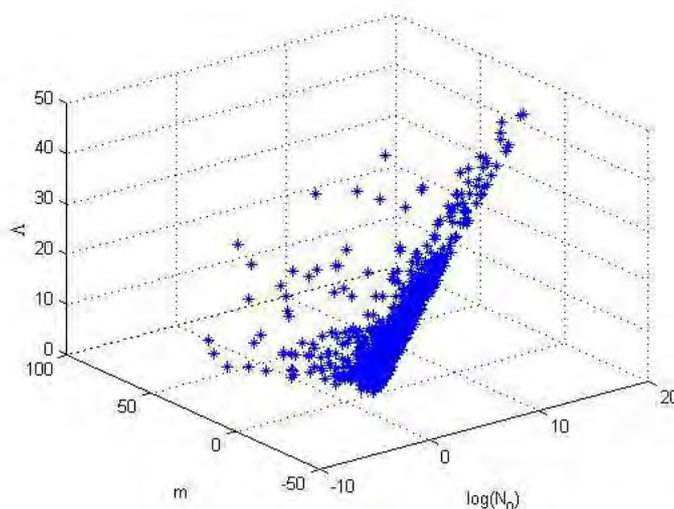


Figura 4.20 - Parâmetros  $N_0$ ,  $m$  e  $\Lambda$  dispostos em espaço tridimensional. As unidades são as mesmas utilizadas na Tabela 4.4.

Nota-se que os pontos no gráfico da Figura 4.20 estão mais concentrados na região referente aos menores valores numéricos dos três parâmetros. Mais especificamente, a concentração de pontos é máxima ao redor da posição definida pelos três valores da Tabela 4.4 e diminui, de modo geral, conforme aumenta a distância a esta. Levando em consideração a Figura 4.18, que mostra que a frequência de ocorrência aumenta conforme diminui a intensidade de precipitação, poder-se-ia dizer que as regiões com maior concentração de pontos na Figura 4.20 representam parâmetros do ajuste gamma para DSD de chuvas relativamente fracas. No entanto, é interessante a utilização de um método objetivo para separar em conjuntos mais definidos os tipos de DSD presentes no conjunto de dados analisado. O método utilizado para este fim foi o chamado “*k-means*”, que separa os pontos em subconjuntos (ou *clusters*) baseado nas distâncias euclidianas entre os dados dispostos em espaço  $k$ -dimensional, onde  $k$  é o número de parâmetros a ser utilizado. No caso das DSD, descritas por três parâmetros, foi fixado  $k=3$ .

Como o método *k-means* opera através de distâncias euclidianas, foi necessário ajustar as escalas dos parâmetros para que seus valores numéricos se mantivessem semelhantes. Para isso, foram calculados os logaritmos em escala 10 dos parâmetros  $N_0$ , multiplicando os resultados por 2. Os parâmetros  $m$  foram todos divididos por 2 e os  $\Lambda$  foram mantidos inalterados. Com estas alterações diminuiu-se a tendência de separação de *clusters* em função dos valores numéricos dos parâmetros, possibilitando interpretação física e não matemática dos resultados. Os *clusters* formados pela análise *k-means* são representados por *centroides*. Diz-se que distâncias internas são as calculadas entre pontos de um *cluster* e o seu respectivo centroide, enquanto que distâncias externas são as distâncias entre diferentes *centroides*. Os centroides são calculados de maneira a minimizar as distâncias internas e maximizar as externas.

Outro fator importante a ser levado em consideração em uma análise de *cluster* é a decisão entre realizar uma análise *supervisionada* ou *não-supervisionada*. Em uma análise supervisionada, o número de centroides (e, conseqüentemente, o número de *clusters*) é definido a priori, enquanto que uma análise não-supervisionada busca calcular o número de centroides que melhor se adapta ao conjunto de dados. No caso do estudo dos parâmetros das DSD, após a realização de alguns testes, foi decidida a utilização de análise supervisionada uma vez que a não-supervisionada gerou resultados com interpretação física limitada.

A análise *k-means* foi realizada para os parâmetros do ajuste gamma das DSD com número de centroides variando entre 2 e 10. Esta análise permitiu o estudo do conjunto de parâmetros em diferentes níveis de detalhamento. Percebeu-se que houve uma tendência de separação de uns parâmetros associados à DSD que, embora tivessem predominância de gotas acima de 2 mm, não contribuíram de maneira significativa para o acumulado total (representavam 3,5% em termos de frequência de ocorrência e 2,5% para o acumulado total de precipitação). Estes parâmetros foram excluídos e a análise *k-means* reprocessada.

Finalmente, chegou-se ao resultado de uma análise em *cluster* com 7 centroides, onde foi possível perceber uma interpretação física significativa para os resultados. Os centroides encontrados podem ser observados na Figura 4.21 e suas características são mostradas na Tabela 4.5. As unidades dos três parâmetros do ajuste gamma são as mesmas das mostradas na Tabela 4.4 e serão omitidas daqui em diante por simplicidade.

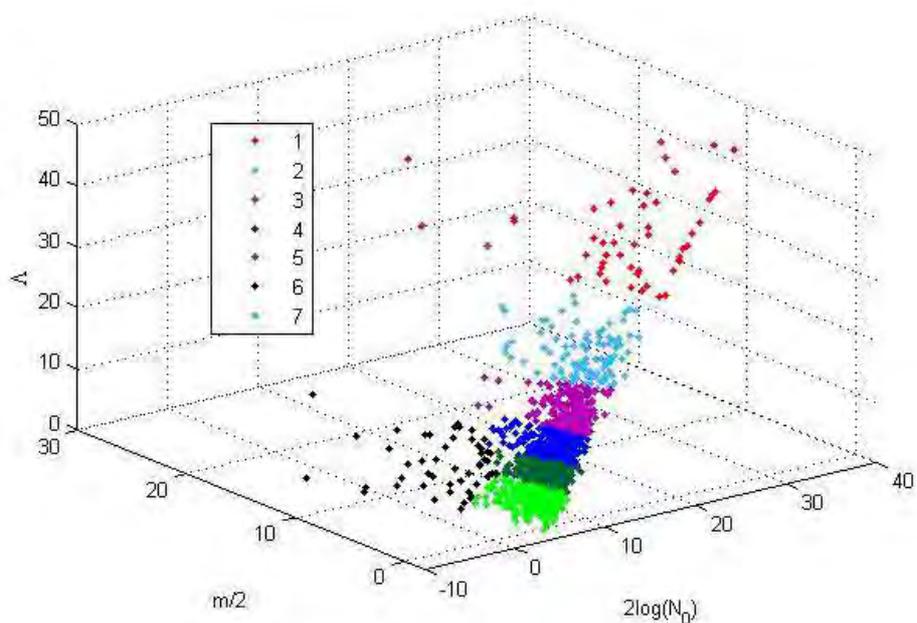


Figura 4.21 – Visualização 3D da separação em *clusters*.

Tabela 4.5 - Resultados finais da análise de *clusters*. \* Acumulado Centroides se refere ao acumulado total considerando que todas as DSD são iguais às dos seus respectivos centroides.

| # Cluster | $N_0$    | $m$   | $\Lambda$ | RI (mm/h) | Acumulado (mm)  | Frequência (%) | Acumulado Centroides* (mm) |
|-----------|----------|-------|-----------|-----------|-----------------|----------------|----------------------------|
| 1         | 1,31E+15 | 25,63 | 30,18     | 0,35      | 1,62 (0,62%)    | 2,83           | 0,30 (0,28%)               |
| 2         | 9,64E+09 | 16,40 | 17,52     | 1,39      | 4,59 (1,75%)    | 5,94           | 2,48 (2,36%)               |
| 3         | 2,66E+07 | 10,63 | 11,69     | 1,81      | 11,21 (4,28%)   | 13,49          | 7,33 (6,97%)               |
| 4         | 6,03E+05 | 7,78  | 8,20      | 2,33      | 29,14 (11,14%)  | 21,32          | 14,92 (14,20%)             |
| 5         | 3,77E+04 | 5,18  | 5,52      | 3,70      | 82,38 (31,48%)  | 30,15          | 33,45 (31,83%)             |
| 6         | 4,85E+01 | 14,65 | 6,20      | 2,81      | 5,87 (2,24%)    | 2,78           | 2,34 (2,23%)               |
| 7         | 2,49E+03 | 3,25  | 3,30      | 6,28      | 126,86 (48,48%) | 23,49          | 44,26 (42,12%)             |

Primeiramente, é importante ressaltar o valor de RI para o *cluster* 1, que é menor do que a unidade, embora tenham sido excluídas todas as DSD com intensidades abaixo desse valor. Isto foi permitido pela maneira como foram calculados os centroides, baseado nas distâncias euclidianas entre os pontos no espaço tri-dimensional. O centroide foi escolhido pelo algoritmo do método *k-means* através apenas dos três parâmetros do ajuste gamma, que não estão relacionados de modo linear à taxa de precipitação. Ou seja, o centroide 1 foi escolhido ao minimizar as distâncias internas no *cluster* 1, sendo que não há nenhuma condição que garanta ou exija que sua intensidade de precipitação seja igual à dos pontos ao seu redor. Esta diferença também pode ser observada ao analisar os acumulados considerando as DSD individuais ou somente as dos centroides (colunas 6 e 8 da Tabela 4.5). Em todos os *clusters* o acumulado foi menor quando considerado somente os parâmetros dos centroides. No entanto, nota-se que os acumulados relativos (em porcentagens) se mantêm mais próximos, mostrando que o cálculo dos

parâmetros dos centroides foi capaz de representar relativamente bem os diferentes tipos de DSD no conjunto de dados analisado.

Observando a Figura 4.21 é possível perceber que todos os *clusters*, com a exceção do número 6, seguem uma ordenação onde os parâmetros aumentam conforme diminui o número do *cluster*. Isto ocorre de maneira inversa para a taxa de precipitação (RI), como pode ser observado na Tabela 4.5. Ou seja, os parâmetros se comportam de maneira conjunta entre os diferentes tipos de DSD observados, onde as chuvas mais intensas são representadas por valores relativamente baixos destes. O *cluster* 6 está associado à presença de gotas grandes (Figura 4.22) que eventualmente ocorrem nos eventos de precipitação e se diferencia dos outros subconjuntos em função principalmente do parâmetro  $m$ . Nos eventos analisados, este tipo de DSD foi observada predominantemente no início dos eventos ou mesmo de maneira isolada e estima-se que esteja relacionada às gotas precipitadas que antecedem um evento de chuva relativamente intenso. Para dar suporte a essa hipótese, nota-se que seu valor de  $N_0$  é o menor dentre todos os centroides, indicando baixa concentração total de gotas.

Em termos de frequência de ocorrência, observa-se que os dois *clusters* com maior taxa de precipitação somam mais de 50% de participação e quase 80% do acumulado total. O *cluster* número 7, mesmo não obtendo a maior frequência de ocorrência, foi o que mais contribuiu para o total acumulado e, junto do *cluster* 5, foram os únicos que apresentaram porcentagens maiores no acumulado do que na frequência.

A Figura 4.22 mostra as DSD obtidas a partir dos parâmetros dos centroides listados na Tabela 4.5. Como pode ser observado, há uma tendência de alargamento das DSD conforme aumenta o número do *cluster*, seguindo o aumento de RI (com exceção do *cluster* 6). Nota-se que, embora a DSD relativa ao centroide 6 seja bastante larga, sua intensidade de precipitação associada é pequena em função das baixas concentrações totais de gotas, como visto claramente no gráfico acima na Figura 4.22. Com relação aos outros centroides, além do alargamento das DSD, nota-se uma queda da

participação de gotas pequenas e crescimento da participação de gotas grandes na população total, conforme aumenta o número do *cluster* (gráfico abaixo na Figura 4.22). Inclusive é possível observar uma tendência bi modal na DSD do *cluster* 7, resultado de um ambiente de favorecimento dos processos de colisão/coalescência em nuvens com características convectivas. Os maiores picos de concentrações foram observados nas DSD dos centroides 2 e 3, que provavelmente estão associados a chuvas estratiformes.

É interessante notar que, analisando somente  $m$  e  $\Lambda$  com relação à intensidade de precipitação, observa-se uma relação inversamente proporcional. A partir da equação 3.2.2.1 encontra-se uma explicação plausível para esta observação. O parâmetro  $m$  está relacionado com a forma da DSD em relação aos diâmetros, enquanto que o  $\Lambda$  indica a rapidez de decaimento da curva, uma vez que se encontra acompanhado de sinal negativo no termo exponencial na 3.2.2.1. Valores pequenos tanto de  $m$  quanto de  $\Lambda$  indicam que a DSD, mesmo deslocada para diâmetros inferiores, é suficientemente larga para gerar taxas consideráveis de precipitação. Por outro lado, altos valores de  $m$  e  $\Lambda$  em uma DSD não geram grandes taxas de precipitação uma vez que as concentrações decrescem rapidamente com o diâmetro em função da magnitude de  $\Lambda$ . Esta relação entre  $m$  e  $\Lambda$  pode ser entendida matematicamente através da equação 3.2.2.1. O parâmetro  $m$  aumenta as concentrações na DSD por crescimento de potencialização (é um expoente). Por outro lado, o parâmetro  $\Lambda$  diminui as concentrações por decaimento exponencial. A relação entre as taxas de crescimento e decaimento regidas por esses parâmetros é o que irá definir a forma e posicionamento da DSD que, por outro lado, é modulada pelo intercepto  $N_0$ . Seguindo este raciocínio, é possível compreender melhor os resultados mostrados na Tabela 4.5 e a relação entre os parâmetros e a intensidade de precipitação.

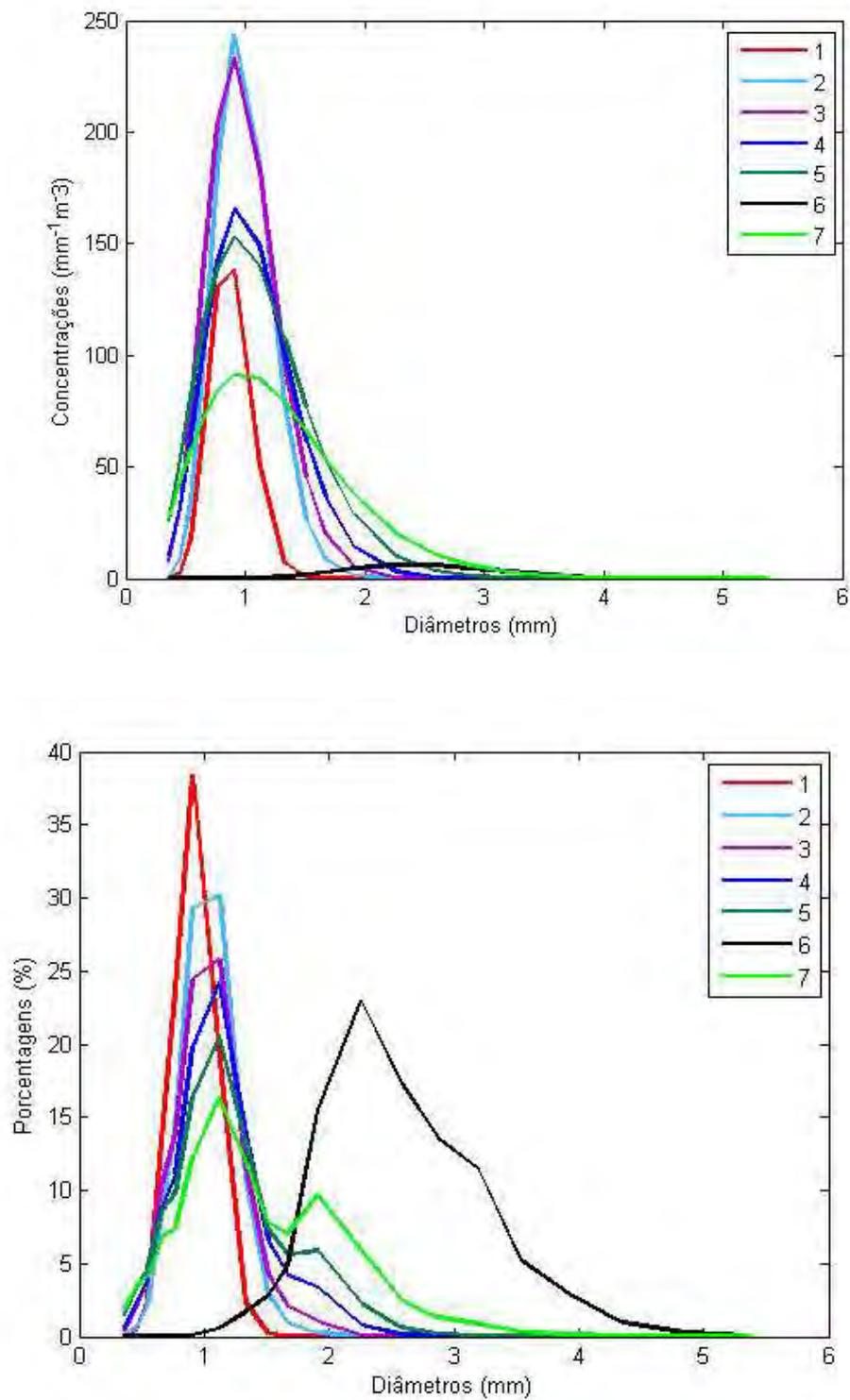


Figura 4.22 – DSD obtidas a partir dos parâmetros dos centroides. Acima: em concentrações; Abaixo: concentrações normalizadas pela integral.

Os resultados obtidos na análise de *cluster* possuem relação com as classificações diárias estabelecidas na seção anterior. Para ilustrar, foram analisadas as frequências de ocorrência de DSD de cada *cluster* nas ocorrências de dias com padrão Convecção Local, Chuva Estratiforme e Convecção Organizada. Foram calculadas médias dessas frequências e os resultados são mostrados na Figura 4.23, juntamente com a rosa dos ventos somando todas as ocorrências em cada tipo de dia.

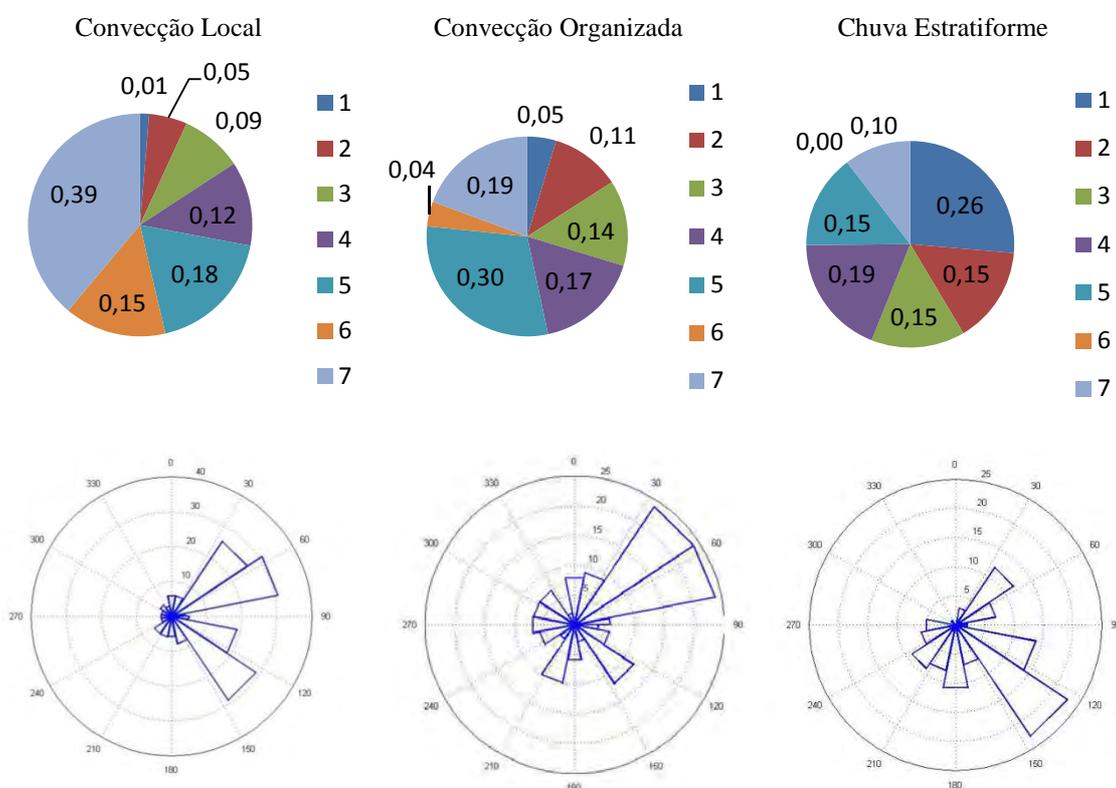


Figura 4.23 - Frequência relativa de ocorrência dos *clusters* e rosa dos ventos para as classificações diárias Convecção Local (coluna à esquerda), Convecção Organizada (coluna ao meio) e Chuva Estratiforme (à direita).

A Figura 4.23 mostra que há distinção clara nas características entre os dias com diferentes classificações. No total, foram contabilizadas 289 DSD associadas ao padrão Convecção Local, 794 para o Convecção Organizada e 232 para Chuva Estratiforme, sendo que ocorreram, respectivamente, 7, 6 e 5 dias com as classificações mencionadas. Nota-se grande número de DSD para

o padrão Convecção Organizada, mesmo com um dia a menos do que o Convecção Local, devido à maior duração dos eventos. Dias com padrão Convecção Local foram caracterizados por grande frequências do *cluster 7*, com maiores intensidades de precipitação. Nestes dias praticamente não foram observados DSD pertencentes ao *cluster 1*, o qual está associado a chuvas fracas. De modo geral, é possível perceber que os dias com a classificação Convecção Local foram caracterizados por eventos precipitantes com DSD mais largas e altas taxas instantâneas de precipitação, sendo que as trajetórias foram predominantemente de NE e SE. Os dias com padrão Convecção Organizada também apresentaram frequência significativa do *cluster 7*, mas a maior presença neste padrão é o *cluster 5*, com a segunda maior taxa de precipitação entre os *clusters*. As frequências de ocorrência dos *clusters 1, 2 e 3* foram maiores do que nos casos de Convecção Local, coerente com a maior participação de chuvas estratiformes em sistemas mais organizados. Estes sistemas estiveram associados a ventos predominantemente de NE, com menor ocorrência de ventos de SE. No entanto, a rosa dos ventos para os dias com padrão Convecção Organizada mostra algumas componentes de N, O e SO relativamente mais frequentes do que no caso de Convecção Local. Os dias com padrão Chuva Estratiforme apresentaram a menor frequência do *cluster 7*, coerente com as chuvas mais fracas observadas nesses dias. De modo geral, as gotas precipitadas nestes dias foram menores do que nos outros, uma vez que não foi observada ocorrência do *cluster 6*. O *cluster* mais presente nos dias com classificação Chuva Estratiforme foi o número 1, com a menor taxa de precipitação. De modo geral, os eventos estratiformes se apresentaram com ventos do quadrante Sul, direção de entrada da brisa marítima, com alguma presença de ventos de NE e O.

### 4.3.2. Relação entre os parâmetros $m$ , $N_0$ e $\Lambda$

Um dos focos de estudos observacionais é o de fornecer escopo para o desenvolvimento de parametrizações que possam ser implementadas em modelos atmosféricos computacionais. Um exemplo seria o próprio ajuste gamma das DSD, onde são substituídas diversas concentrações separadas em *bins* (intervalos de diâmetros de gotas) por apenas três parâmetros ( $N_0$ ,  $m$  e  $\Lambda$ ). Estima-se que esta parametrização possa ser ainda mais simplificada ao encontrar funções que inter-relacionam seus parâmetros.

Observando a Figura 4.21, principalmente os *clusters* 3, 4, 5 e 7, é possível notar uma tendência de alinhamento dos pontos sobre um plano inclinado imaginário. Este padrão sugere que uma das dimensões do espaço 3D mostrado é dependente das outras duas, uma vez que a forma resultante pode ser aproximada por uma bidimensional. Desta maneira, foi realizado um estudo para analisar qual e quão significativa é a dependência entre os parâmetros.

Inicialmente foram calculadas as correlações entre os pares  $m$  e  $N_0$ ,  $m$  e  $\Lambda$  e  $\Lambda$  e  $N_0$ , com  $N_0$  em escala logarítmica. Os resultados são mostrados na Figura 4.24. Esta figura mostra uma correlação significativa entre os parâmetros, com relações de proporcionalidade aproximadas pelas retas em cor preta nos gráficos. O fator que mais chama a atenção na Figura 4.24 é a alta correlação entre os parâmetros  $\Lambda$  e  $N_0$ , com coeficiente  $R^2$  de 0,958. Ou seja, as DSD parametrizadas se comportaram de maneira que o intercepto e a curvatura são fortemente relacionados, onde DSD com maiores concentrações de gotas são mais estreitas e aumentam sua largura conforme diminui o valor do intercepto. Isto possui relação também com o tipo e intensidade das chuvas, onde eventos estratiformes apresentam maiores valores de  $N_0$  e DSD estreitas, enquanto chuvas mais intensas apresentam menores concentrações totais de gotas e DSD alargadas.

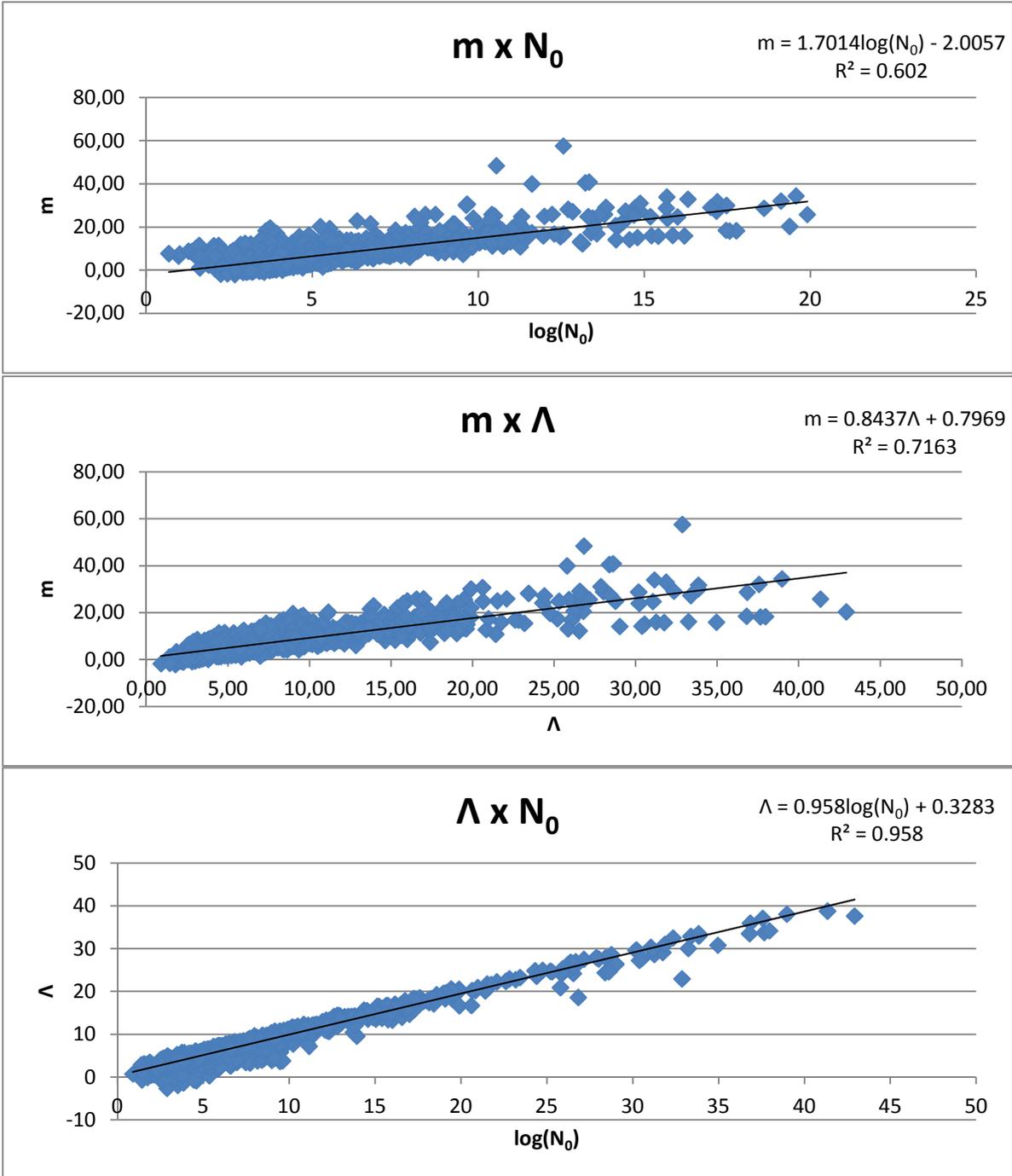


Figura 4.24 – Correlações entre os pares  $m$  e  $N_0$  e  $m$  e  $\Lambda$ .

O parâmetro  $m$  também se mostrou correlacionado com os outros parâmetros, com  $R^2$  acima de 0,6. Isto mostra outra tendência dos eventos precipitantes, onde as DSD com menores valores de  $N_0$  e mais largas também estão deslocadas em direção aos maiores diâmetros no intervalo considerado e vice-versa.

Observando que  $m$  está correlacionado tanto com  $N_0$  quanto com  $\Lambda$ , foi realizado cálculo da correlação múltipla entre estes fatores com o intuito de obter uma equação que os relacione. Através dos devidos cálculos estatísticos, chegou-se à equação 4.1:

$$m = -2,74 \log(N_0) + 2,06\Lambda + 6,40 \quad \text{Equação 4.1}$$

Nota-se que o parâmetro  $m$  apresentou dependência negativa com relação a  $N_0$  e positiva com relação a  $\Lambda$ , diferente do esperado ao analisar a Figura 4.24. No entanto, a Equação 4.1 se mostrou eficiente estatisticamente em representar o parâmetro  $m$ , onde foi obtido coeficiente linear  $R^2$  de 0,78 entre o parâmetro obtido pela relação acima e o calculado através do método dos momentos. O parâmetro  $\Lambda$  também foi estimado a partir da relação mostrada no gráfico mais abaixo da Figura 4.24, com o mesmo valor de  $R^2$  apresentado nesta figura (uma vez que foi utilizada regressão linear simples).

Estes resultados mostram que os coeficientes possuem fortes relações estatísticas entre eles, amparadas pelo vínculo físico entre eles, nomeadamente os mecanismos de formação de precipitação. No entanto, ao utilizar os parâmetros estimados para o cálculo da intensidade de precipitação, nota-se que este procedimento é inadequado. A Figura 4.25 mostra as relações entre as intensidades de precipitação estimadas e observadas, ao utilizar, respectivamente,  $m$  estimado e  $\Lambda$  estimado.

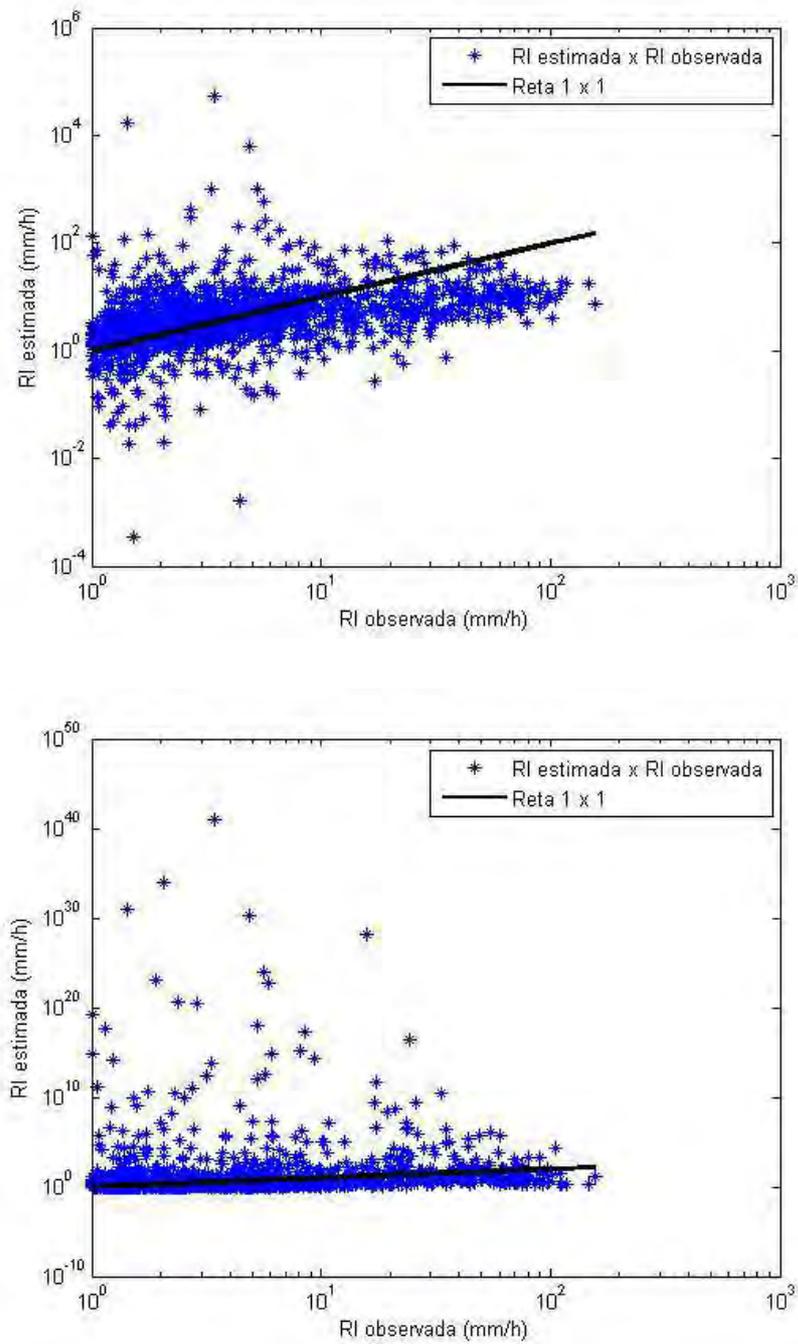


Figura 4.25 – Relações entre RI calculada a partir de um parâmetro estimado por relações estatísticas e os outros dois pelo Método dos Momentos aplicados às DSD medidas. Acima: utilizando  $m$  estimado; Abaixo: utilizando  $\Lambda$  estimado. As retas em preto representam a região de correlação perfeita entre as variáveis.

O gráfico acima na Figura 4.25 mostra que parte dos pontos se encontram próximos à reta  $1 \times 1$ , indicando que parte dos valores de RI estimada foram próximos aos valores observados. No entanto, há uma tendência de superestimativa para baixas intensidades de precipitação e subestimativa para valores mais elevados. Além disto, há valores estimados de RI extremamente divergentes dos valores observados. Por exemplo, para valores observados de RI próximos à unidade, foram estimadas taxas de precipitação tão altas quanto aproximadamente 100 mm/h. Algumas estimativas chegaram a milhares ou mesmo dezenas de milhares de mm por hora de chuva, valores irrealistas para qualquer sistema precipitante no planeta. Estes valores extremamente altos e irrealistas foram ainda mais pronunciados no cálculo de RI utilizando a estimativa de  $\Lambda$  pela relação estatística com  $N_0$ . Como pode ser observado na Figura 4.25, foram estimadas taxas de precipitação com ordens de grandeza superiores até a  $10^{40}$ . Ou seja, embora tenha sido observada relação estatística significativa entre os parâmetros, esta não pode ser utilizada para o cálculo da intensidade de precipitação associada, uma vez que gera, com frequência, valores irrealistas. Este fator pode ser explicado ao analisar a Equação 3.2.2.1, onde os parâmetros  $m$  e  $\Lambda$  são expoentes. Pequenas flutuações nos valores desses parâmetros podem ter impactos significativos no resultado final do cálculo da DSD e, conseqüentemente, RI. Por exemplo, se, ao parametrizar uma chuva estratiforme, onde o valor de  $N_0$  geralmente é elevado, for estimado valor de  $\Lambda$  levemente inferior ao ideal, a DSD resultante será mais alargada do que a observada e, somado ao alto valor de  $N_0$ , será estimada uma taxa de precipitação maior do que a que realmente ocorreu, levando a erros nas análises. Levando este fator em consideração, conclui-se que as correlações estatísticas entre os parâmetros do ajuste gamma não podem ser utilizadas para suas estimativas, sendo necessária outra abordagem para este fim.

#### 4.4. Impacto dos CCN nas propriedades dos eventos de precipitação

A análise entre as concentrações de CCN e as propriedades físicas das chuvas foi realizada sob diferentes perspectivas visando observar e quantificar os efeitos dos aerossóis nas DSD isolando ao máximo possíveis efeitos externos. Primeiramente foi realizado um estudo mais simples onde foram comparadas diretamente as medidas do CCNC e as parametrizações das DSD. Para cada concentração medida de CCN, foi calculada a mediana em cada *bin* do instrumento Joss (a partir das DSD parametrizadas e não medidas) de 20 minutos adiante no tempo. A partir da DSD resultante foram calculados os parâmetros  $m$ ,  $N_0$  e  $\Lambda$ . A mediana foi realizada adiante no tempo para eliminar, pelo menos em parte, os efeitos de *rainout* e *washout*. Com essa metodologia foram obtidos 111 dados com a concentração de CCN e a DSD associada para realizar as comparações. Realizando a mediana das DSD dos 10% dos casos mais poluídos e mais limpos, foi obtido o resultado mostrado na Figura 4.26. As concentrações médias de CCN nesses casos foram de, respectivamente, 4287,84 e 435,37  $\text{cm}^{-3}$ .

A Figura 4.26 mostra que a DSD associada às maiores concentrações de CCN apresentaram menores concentrações totais de gotas e participações levemente superiores de gotas com diâmetros acima de 1,5 mm quando comparada à DSD relacionada às menores concentrações de CCN. Estas diferenças são representadas como diminuições dos 3 parâmetros do ajuste gamma com o aumento nas concentrações de CCN (aproximadamente 98% de diminuição de  $N_0$ , 32 e 34% em  $m$  e  $\Lambda$  respectivamente). Caso esse resultado seja analisado sem levar em conta outros fatores externos, esta observação possui ao menos duas interpretações possíveis. Uma onde se entenderia que os CCN têm impacto bastante significativo nas propriedades da precipitação, onde favoreceram o crescimento das gotas pela condensação de vapor sobre suas superfícies e pelos impactos nos processos de colisão e coalescência associados. Outra que ressalta que as diferenças nas DSD poderiam estar associadas seja à intensidade da precipitação seja às características do ambiente de formação dos eventos de precipitação, como a instabilidade

atmosférica, velocidades de ascensão do ar, temperatura, passagem de frentes frias, entre outros fatores. De fato, as medidas com as menores concentrações de CCN foram observadas durante dias com presença de chuvas mais estratiformes, enquanto que dias mais característicos de ciclo diurno da convecção no verão, com maior amplitude térmica, apresentaram atmosfera mais poluída de partículas. Ou seja, o que a Figura 4.26 pode estar mostrando é a diferença entre características de chuvas mais estratiformes e mais convectivas e não necessariamente o impacto dos aerossóis nas DSD. No entanto, é necessário maior aprofundamento na questão para tentar buscar uma resposta a este comportamento. Para isto, foram selecionados eventos de precipitação individualmente, como será descrito a seguir.

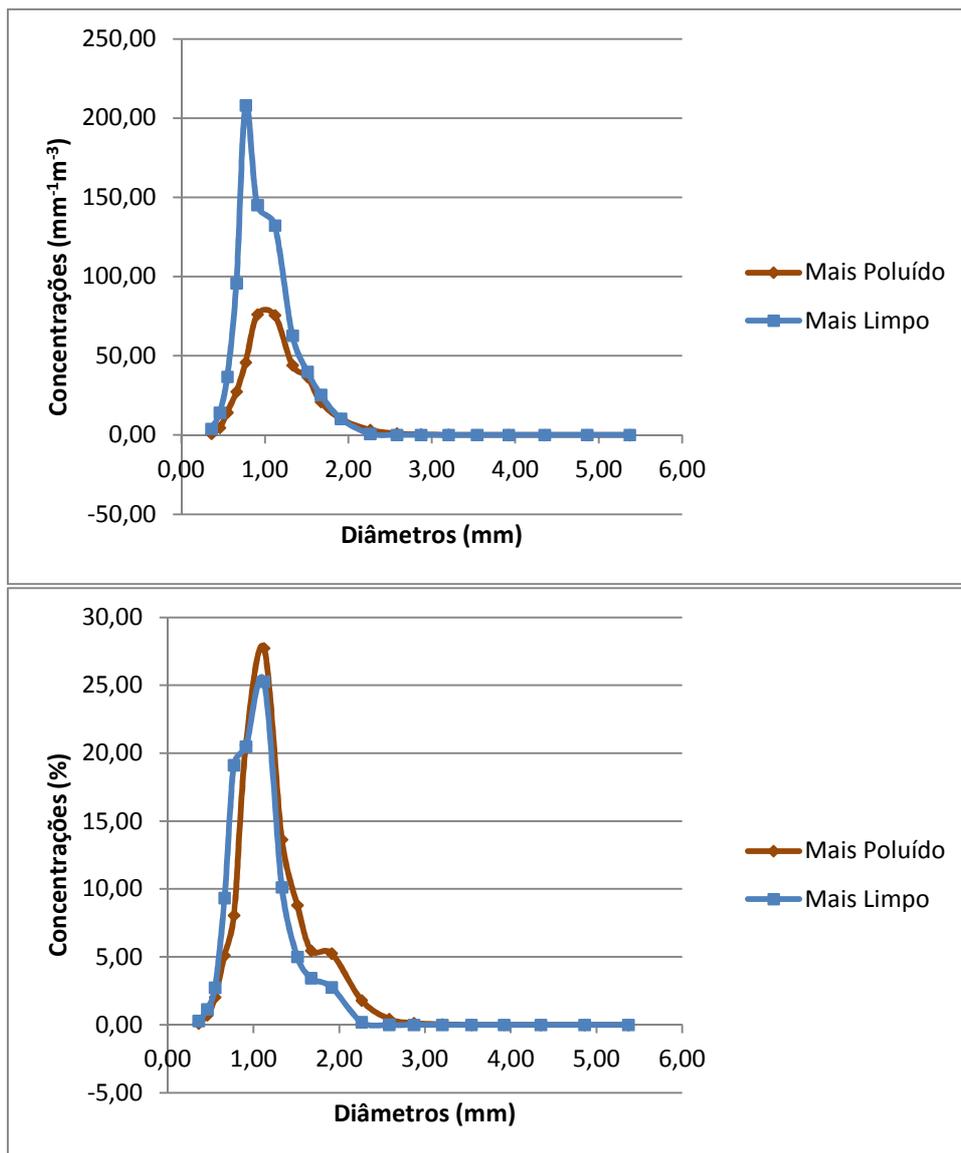


Figura 4.26 – DSD associadas às maiores e menores concentrações medidas de CCN. Acima, DSD em concentrações; Abaixo, DSD normalizadas pelas respectivas integrais.

A fim de separar em eventos de precipitação, os dados filtrados e parametrizados do instrumento Joss foram ordenados cronologicamente e determinou-se que cada evento tinha início quando o intervalo entre um dado e o seguinte era maior ou igual a 20 minutos. Desta maneira foram encontrados 75 eventos no total e a cada um foi associado uma classificação diária dentre Convecção Local, Convecção Organizada e Chuva Estratiforme descritas na seção 4.2.1. Eventos diferentes que ocorreram no mesmo dia foram

associados à mesma classificação diária e os eventos que perduraram na passagem de um dia para o outro foram associados ao dia de seu início. As concentrações de CCN (a 1% de supersaturação) e PT relacionadas a cada evento foram calculadas como médias de 2 horas de dados, 30 minutos antes do início da precipitação, com o intuito de eliminar o efeito das chuvas sobre as concentrações de particulado (*rainout/washout*). Mesmo com este procedimento, ainda foram observados os efeitos de *rainout* ou *washout* nos eventos que não foram os primeiros a ocorrer no dia. Estes eventos foram eliminados das análises, assim como os de duração inferior a 10 minutos e os sem dados de CCN associados, restando 16 para as comparações.

Com a separação descrita acima foi possível realizar comparações entre eventos sujeitos a diferentes níveis de concentrações de aerossóis. Algumas características destes eventos são mostradas na Tabela 4.6. É mostrada também a divisão realizada entre os eventos em função da carga de aerossóis, onde os chamados “Mais Poluídos” estiveram sujeitos às maiores concentrações de CCN associadas, os “Mais Limpos” às menores e os “Intermediários” apresentaram concentrações de CCN entre estes extremos. Nota-se maior presença de eventos com classificações convectivas entre os casos mais poluídos, enquanto que eventos mais estratiformes estiveram associados, de modo geral, a ambientes com menores concentrações de aerossóis. Este resultado mostra que a simples comparação das chuvas relacionadas a ambientes mais poluídos e mais limpos é insuficiente para a observação dos efeitos dos aerossóis nos eventos. Desta maneira, foram comparados, em função das diferenças nas concentrações de CCN, somente os eventos com mesma classificação diária. Todas as DSD de eventos com mesma classificação diária e mesma classificação em termos de concentrações de CCN foram acumuladas e divididas pelo número de dados com o intuito de obter uma única DSD com a característica média do evento. Assim, foram obtidas três DSD para os eventos com classificação Convecção Local, uma associada aos eventos “Mais Poluídos”, outra aos “Intermediários” e uma terceira aos “Mais Limpos”. O mesmo foi obtido para os eventos de Chuva Estratiforme (apenas duas DSD pois não foram observados na classe “Mais

Poluídos”) e Convecção Organizada. A análise das diferenças entre as propriedades dos eventos sujeitos a diferentes concentrações de CCN será submetida ao teste de significância *t-student*, o qual é capaz de identificar se dois conjuntos de dados são significativamente diferentes entre si. Esta análise é conduzida ao calcular a média e desvio padrão de  $N_0$ ,  $m$ ,  $\Lambda$ ,  $RI$ ,  $D_m$  e  $CTG$ , que são aplicadas à seguinte equação:

$$t = \frac{\bar{x}_1 - \bar{x}_2}{S_{\bar{x}_1 - \bar{x}_2}} \quad \text{Equação 4.4.1}$$

Onde  $\bar{x}_1$  e  $\bar{x}_2$  representam a média de duas variáveis genéricas (podendo ser quaisquer dos parâmetros de interesse) e  $S_{\bar{x}_1 - \bar{x}_2}$  é o desvio padrão combinado, dado pela relação:

$$S_{\bar{x}_1 - \bar{x}_2} = \sqrt{\frac{S_1^2}{n_1} + \frac{S_2^2}{n_2}} \quad \text{Equação 4.4.2}$$

Onde  $n_1$  e  $n_2$  correspondem à quantidade de dados utilizados para o cálculo das médias de cada parâmetro (no caso, a quantidade de DSD medidas em cada evento separadamente). O valor de  $t$  obtido deve ser comparado a valores críticos tabelados, que variam em função do tamanho da série de dados a ser utilizada. No caso onde são comparadas duas séries diferentes, a quantidade de dados (graus de liberdade) a ser utilizada é calculada por:

$$N = \frac{\left( \frac{S_1^2}{n_1} + \frac{S_2^2}{n_2} \right)^2}{\frac{\left( \frac{S_1^2}{n_1} \right)^2}{n_1 - 1} + \frac{\left( \frac{S_2^2}{n_2} \right)^2}{n_2 - 1}} \quad \text{Equação 4.4.3}$$

Caso o valor de  $t$  obtido seja superior ao valor crítico associado a  $N$ , então as variáveis são ditas significativamente diferentes entre si, com dado intervalo de confiança. Nos parâmetros a serem analisados, observou-se que os valores críticos de  $t$  variaram em torno de 1,65 a 1,68 para o intervalo de confiança de 95%. Para facilitar, fixou-se este valor em 1,70 e todos os valores de  $t$  obtido

serão comparados a este número e, caso sejam superiores a ele, o resultado será dito significativo com pelo menos 95% de confiança.

Tabela 4.6 – Características gerais dos eventos selecionados para as análises.

|                | Classificação Diária | Início                 | CCN     | PT       | CCN/PT | RI    |
|----------------|----------------------|------------------------|---------|----------|--------|-------|
| Mais Poluídos  | Convecção Organizada | 07/12/2011<br>16:48:00 | 6703.04 | 17892.35 | 0.37   | 2.49  |
|                | Convecção Local      | 07/01/2012<br>17:09:00 | 4390.64 | 16516.95 | 0.27   | 5.01  |
|                | Convecção Local      | 08/01/2012<br>15:07:00 | 3921.35 | 11994.05 | 0.33   | 18.81 |
|                | Convecção Local      | 06/01/2012<br>17:10:00 | 3757.71 | 12769.44 | 0.29   | 25.90 |
|                | Convecção Organizada | 18/12/2011<br>15:30:00 | 3091.11 | 18075.65 | 0.17   | 9.09  |
| Intermediários | Convecção Local      | 20/12/2011<br>18:52:00 | 2902.65 | -        | -      | 12.44 |
|                | Convecção Organizada | 24/12/2011<br>21:17:00 | 2788.94 | 10877.18 | 0.26   | 2.82  |
|                | Chuva Estratiforme   | 02/12/2011<br>02:08:00 | 2269.05 | -        | -      | 1.81  |
|                | Convecção Local      | 08/12/2011<br>14:18:00 | 2212.06 | 14423.05 | 0.15   | 5.71  |
|                | Convecção Organizada | 09/12/2011<br>07:17:00 | 2082.99 | 14201.76 | 0.15   | 1.33  |
|                | Chuva Estratiforme   | 10/12/2011<br>03:34:00 | 1755.60 | 7323.78  | 0.24   | 1.74  |
| Mais Limpos    | Chuva Estratiforme   | 15/12/2011<br>03:47:00 | 1634.01 | -        | -      | 2.03  |
|                | Convecção Local      | 28/11/2011<br>17:19:00 | 1486.06 | 5446.79  | 0.27   | 3.68  |
|                | Convecção Organizada | 01/12/2011<br>17:21:00 | 1395.78 | -        | -      | 2.99  |
|                | Chuva Estratiforme   | 27/11/2011<br>15:41:00 | 973.28  | 6272.14  | 0.16   | 1.33  |
|                | Chuva Estratiforme   | 26/12/2011<br>14:34:00 | 362.02  | 3549.33  | 0.10   | 2.45  |

A Figura 4.27 mostra as DSD relativas aos eventos de Convecção Local em função da carga de aerossóis. Os valores entre parênteses na legenda correspondem ao número de eventos. Nota-se que o formato e posicionamento

das DSD foram semelhantes, com picos de concentrações de gotas ao redor de 1 mm de diâmetro. No entanto, as taxas de precipitação associadas a cada uma foram significativamente diferentes, com valores de 22,64, 26,26 e 10,90 mm/h para os casos Mais Poluídos, Intermediários e Mais Limpos, respectivamente. Observa-se que as taxas de precipitação não foram diretamente proporcionais às concentrações de CCN, mas a intensidade do evento mais limpo foi significativamente inferior à dos mais poluídos (52%) e dos intermediários (58%), enquanto que RI variou 16% entre estes dois últimos. Ao analisar as DSD percentuais, nota-se que conforme aumentam as concentrações de CCN, aumentam as participações de gotas maiores (em torno de 2 mm) e diminuem as das menores. Estes resultados indicam que os aerossóis afetaram as propriedades físicas das chuvas da região, mesmo que de maneira não expressiva (as diferenças entre as DSD percentuais não ultrapassam 3%, aproximadamente), de modo a favorecer o crescimento das gotas. As taxas de precipitação se mostraram sensíveis também à concentração total de gotas nesses casos, fator dependente da disponibilidade de supersaturação no interior das nuvens, que é influenciado pelas velocidades verticais associadas aos sistemas de precipitação. O diâmetro médio ponderado pela massa,  $D_m$ , variou de modo proporcional às taxas de precipitação, com valores de 2,19, 2,69 e 2,59 para os casos Mais Limpos, Intermediários e Mais Poluídos, respectivamente. Ou seja, embora tenha havido aumento de  $D_m$  nos dois primeiros, este mostrou diminuição entre os casos Intermediários e Mais Poluídos, mostrando que os efeitos dos CCN neste parâmetro não são diretos, assim como no caso de RI. A concentração total de gotas de chuva (integral das DSD - CTG) variou de 171 para 231 e 208  $m^{-3}$  no sentido de aumento na carga de CCN, fator também não proporcional à carga de particulado. Estes três fatores ( $D_m$ , RI e CTG) possuem relação com a intensidade dos movimentos verticais nos sistemas, responsáveis pela geração de ambientes supersaturados no interior das nuvens necessários para a formação e crescimento de gotas, além de interferirem nos mecanismos de colisão e coalescência. Da maneira como foi conduzida a análise dos casos de Convecção Local até o momento, as variações nas intensidades de convecção

não foram levadas em consideração e serão tratadas mais adiantes no estudo de casos individuais. A significância das diferenças entre as DSD dos eventos de Convecção Local podem ser analisadas na Tabela 4.7. Como pode ser observado, não é possível afirmar com 95% de confiança que os parâmetros dos eventos de Convecção Local Mais Poluídos e Intermediários são significativamente diferentes. Ou seja, as diferenças entre as DSD destes eventos estão dentro do intervalo de desvios padrão das medidas e não podem ser associadas diretamente à ação dos aerossóis. No entanto, ao comparar os eventos Mais Poluídos com os Mais Limpos, notam-se que os valores de  $t$  são superiores a 1,70 para todos os parâmetros das DSD, com exceção de CTG, indicando que estes eventos são significativamente diferentes entre si. O valor da significância do parâmetro CTG neste caso está próximo do intervalo de 95% de confiança, mas mesmo assim fora dele. No entanto, está bem acima do intervalo de 90% que é representado por valor crítico de 1,30 em  $t$ . A diferença entre as significâncias em CTG e  $D_m$  ressalta que os efeitos dos aerossóis nas nuvens convectivas foi mais significativo, de modo geral, no crescimento das gotas do que no aumento de suas concentrações numéricas. Na comparação entre os eventos Intermediários e Mais Limpos, observa-se que as diferenças foram significativas no intervalo de 95% de confiança apenas nos parâmetros  $\Lambda$ , RI e  $D_m$ , novamente indicando que o aumento de RI associado ao aumento nas concentrações de CCN foi devido principalmente ao aumento das gotas e alargamento da DSD e não ao aumento nas concentrações numéricas totais de gotas de chuva.

Tabela 4.7: Valores de  $t$  relativos às diferenças entre as DSD dos eventos de Convecção Local, em função da carga de CCN.

| Parâmetro | Mais Poluídos       | Intermediários   | Mais Poluídos    |
|-----------|---------------------|------------------|------------------|
|           | X<br>Intermediários | X<br>Mais Limpos | X<br>Mais Limpos |
| $N_0$     | 1,35                | 1,35             | 2,15             |
| $m$       | 1,07                | 0,34             | 1,85             |
| $\Lambda$ | 1,22                | 1,81             | 3,57             |
| RI        | 0,82                | 3,36             | 3,81             |
| $D_m$     | 0,24                | 4,97             | 5,83             |
| CTG       | 0,31                | 1,52             | 1,64             |

As diferenças entre os eventos podem ser vistas também através das participações dos *clusters*. Para cada evento individual foram calculadas as frequências de ocorrência de cada *cluster* e foram realizadas médias desses valores para os eventos Mais Poluídos, Mais Limpos e Intermediários que apresentam as mesmas classificações diárias. A Figura 4.28 mostra os resultados obtidos.

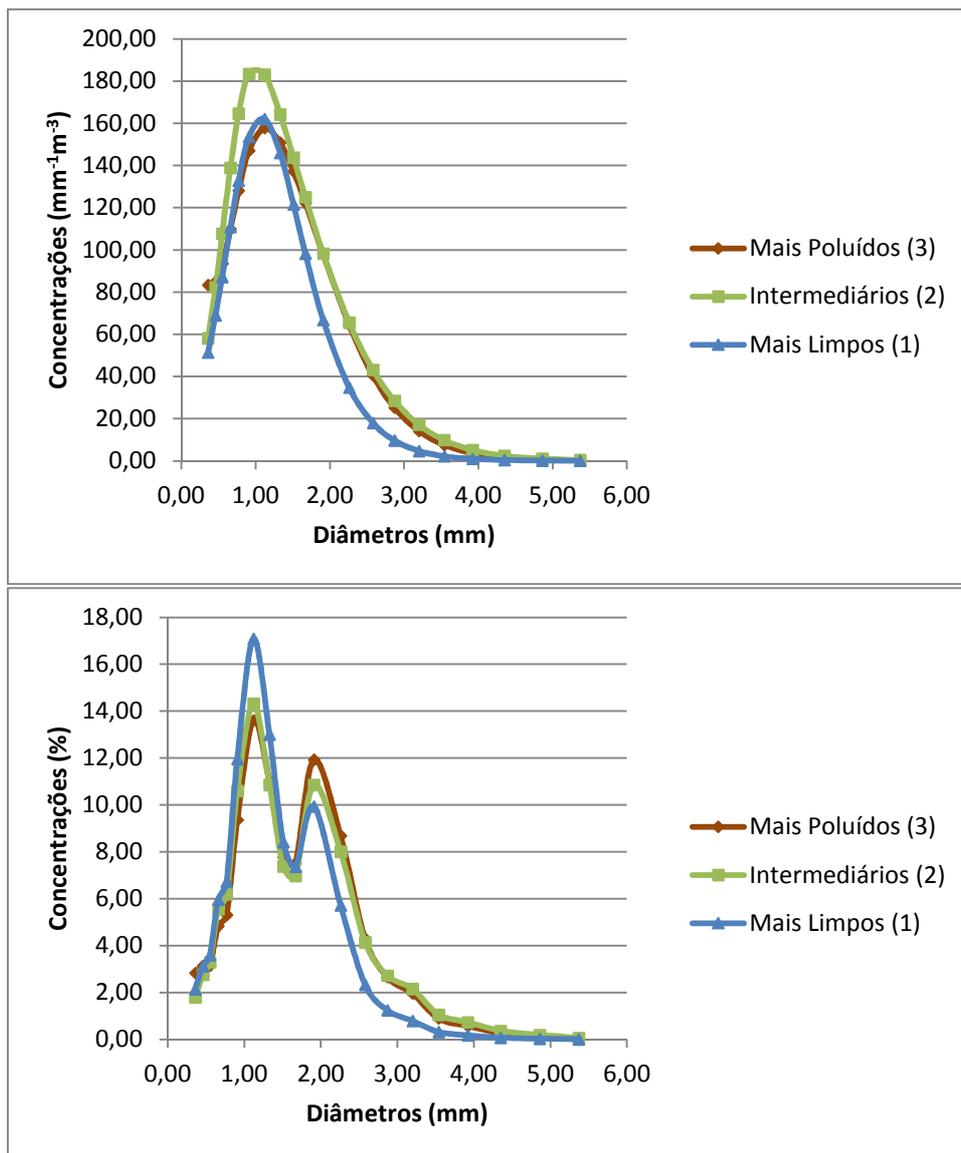


Figura 4.27 – DSD representativas dos eventos de Convecção Local para os casos Mais Poluídos, Mais Limpos e Intermediários.

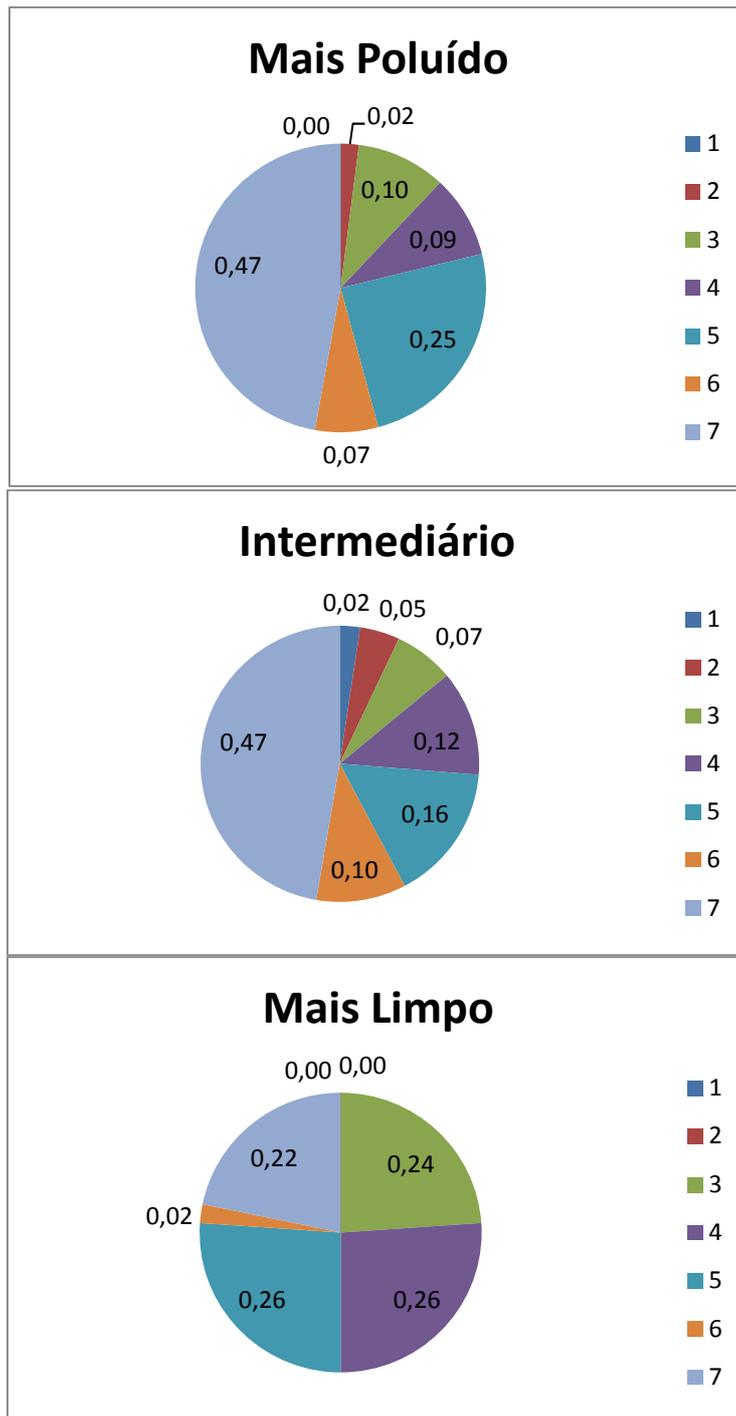


Figura 4.28 – Frequências de ocorrência dos *clusters* nos eventos com padrão Convecção Local sujeitos a diferentes cargas de CCN. Os números nas legendas se referem ao número dos *clusters*.

A Figura 4.28 mostra que os eventos com padrão Convecção Local mais poluídos e intermediários apresentaram participações semelhantes dos *clusters*. Nota-se dominância do *cluster 7*, associado a chuvas mais intensas,

relativamente pouca participação dos três primeiros *clusters* e a segunda maior participação foi do subconjunto 5 de DSD. É interessante notar que a soma das frequências dos *clusters* 5 e 7, que apresentaram as maiores taxas de precipitação em seus centroides, é maior no caso mais poluído. No entanto, a maior intensidade de chuva foi observada para o caso intermediário, em função da maior concentração total de gotas. O caso mais limpo com padrão Convecção Local foi caracterizado praticamente por apenas quatro *clusters* (3, 4, 5 e 7), com menor participação dos associados a precipitações intensas. Nota-se também a menor frequência de ocorrência do *cluster* 6, relacionado a gotas grandes. Ao somar as participações dos *clusters* associados a chuvas intensas (5, 6 e 7) e fracas (1, 2 e 3), vemos uma tendência geral de aumento do primeiro e diminuição do segundo conforme aumenta a carga de CCN nos sistemas. Ou seja, estes resultados indicam favorecimento dos mecanismos de precipitação pelos aerossóis em sistemas com padrão Convecção Local, mas caracterizam fator secundário para a modulação da intensidade de precipitação do sistema. Notam-se diferenças maiores entre o caso mais limpo e os intermediários do que destes com relação aos mais poluídos, mostrando a não linearidade das relações entre aerossóis e eventos precipitantes.

Os eventos caracterizados por padrão Chuva Estratiforme também foram comparados em função das variações nas concentrações de CCN. Uma vez que as chuvas mais estratiformes estiveram associadas a relativamente baixas concentrações de particulado, não foram observados eventos na classe denominada Mais Poluídos. A Figura 4.29 mostra as DSD dos eventos sujeitos a diferentes cargas de aerossóis, onde os cálculos foram realizados da mesma maneira dos mostrados na Figura 4.27.

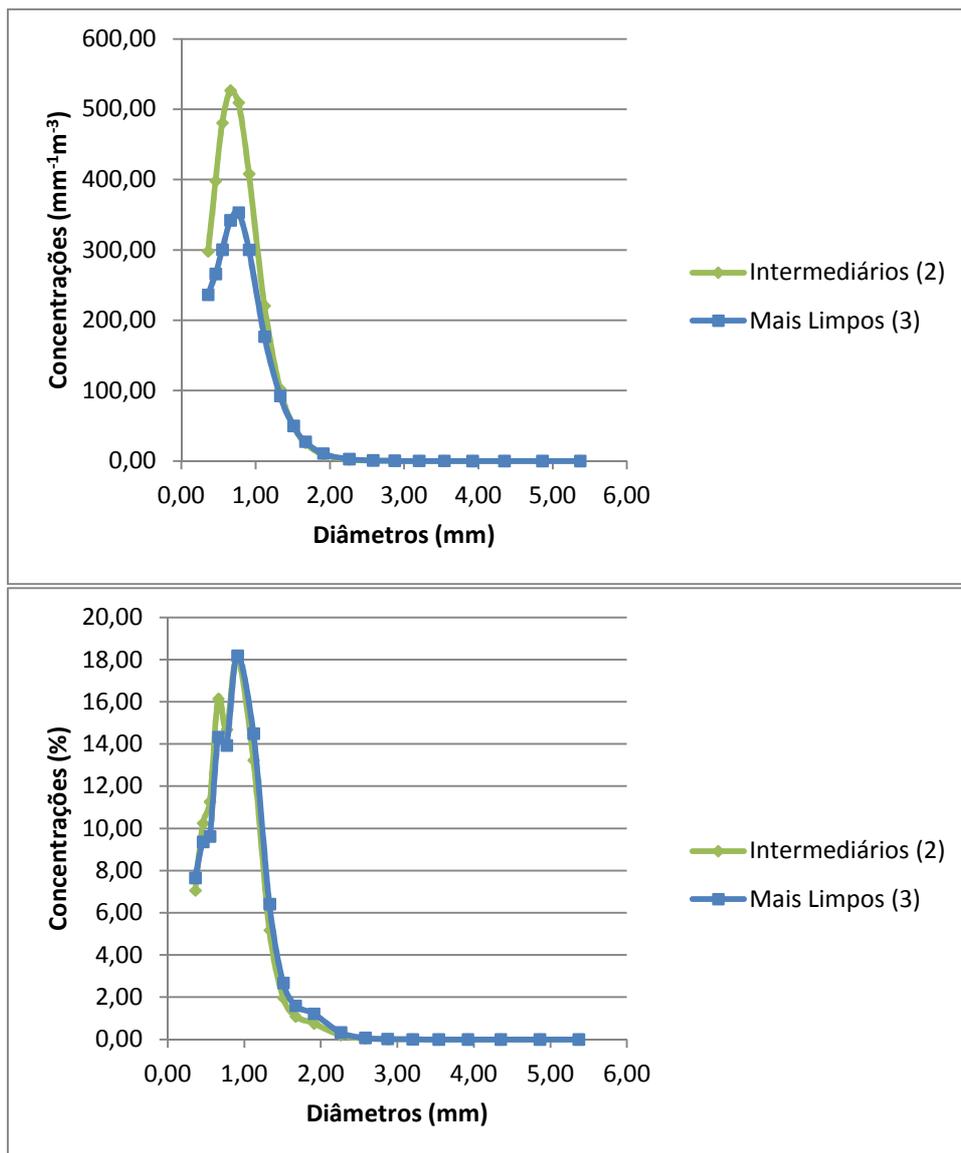


Figura 4.29 – DSD representativas dos eventos de Chuva Estratiforme para os casos Mais Limpos e Intermediários.

Como pode ser observado na Figura 4.29, as maiores diferenças entre as DSD dos casos mostrados se apresentaram nas concentrações de gotas pequenas, ao redor de 1 mm. No caso onde as concentrações de aerossóis foram maiores, também o foram as concentrações dessas gotas. No entanto, em termos de concentrações percentuais, normalizadas pelas integrais das DSD, as DSD dos casos intermediários e mais limpos foram semelhantes, com diferenças em torno de 1% nos *bins*. No entanto, observa-se uma tendência geral de maiores participações de gotas abaixo de 1 mm nos eventos

Intermediários (com exceção das de 0,36 mm) e menores para gotas acima deste diâmetro. Ou seja, embora o aumento de CCN não esteja associado a diferenças estruturais significativas nas propriedades físicas dos eventos, os resultados mostram que o particulado desfavoreceu levemente o crescimento das gotas ao permitir a formação de maior número destas e aumentar a competição por vapor de água no interior das nuvens. Ao calcular o diâmetro médio ponderado pela massa,  $D_m$  na Equação 3.2.2.5, notou-se variação de 1,31 para 1,22 dos casos Mais Limpos para os intermediários (diminuição de aproximadamente 6,5%), mostrando que a maior parte da massa de água se concentrou em gotas com menores diâmetros nos casos Intermediários se comparados aos Mais Limpos. A concentração total de gotas aumentou de 284 para 388  $m^{-3}$ , ou 37% aproximadamente, com o aumento nas concentrações de CCN. Em termos de taxas de precipitação, os resultados indicam que os CCN contribuem de duas maneiras opostas. Ao desfavorecerem o crescimento das gotas, possuem impacto negativo na intensidade das chuvas, enquanto que favorecem as taxas de precipitação ao aumentar as concentrações totais de gotas. No caso dos eventos observados e sintetizados na Figura 4.29, os que estiveram associados a maiores concentrações de CCN apresentaram taxa de precipitação levemente superior aos mais limpos (2,65 mm/h e 2,39 mm/h, respectivamente). Ou seja, mesmo com DSD mais estreitas e com maior participação de gotas pequenas, os eventos de Chuva Estratiforme Intermediários apresentaram maior taxa de precipitação do que os Mais Limpos pela desproporcionalidade dos efeitos do particulado nas características dos eventos. A Tabela 4.8 ilustra este fator, mostrando os aumentos/decréscimos percentuais nos parâmetros dos eventos (no sentido de aumento dos CCN). Nota-se diminuição do parâmetro  $m$  com o aumento nas concentrações de CCN e aumento em  $\Lambda$ , fatores associados à tendência mencionada de maior participação de gotas pequenas e estreitamento da DSD nos casos Intermediários em relação aos Mais Limpos. No entanto, o parâmetro  $N_0$  se mostrou mais sensível à variação na carga de particulado, aumentando desproporcionalmente com relação aos outros parâmetros, resultando no aumento de aproximadamente 11% na taxa de precipitação. A análise de

significância estatística dos resultados mostrou que os parâmetros significativamente diferentes entre os casos Intermediários e Mais Limpos de chuvas estratiformes foram  $N_0$ , CTG e RI. Ou seja, isto mostra que os aerossóis afetam mais significativamente as concentrações numéricas das gotas em nuvens estratiformes e não o crescimento destas. O crescimento na taxa de precipitação, embora pequeno numericamente, foi significativo uma vez que o desvio padrão da taxa de precipitação em chuvas estratiformes é pequeno.

Tabela 4.8 – Diferenças percentuais nos parâmetros dos eventos com padrão Chuva Estratiforme Intermediários e Mais Limpos. Os valores foram obtidos no sentido de aumento de concentrações de CCN, ou seja, valores positivos indicam crescimento do parâmetro de modo proporcional ao aumento nos CCN e vice-versa.

| $N_0$ (%) | $m$ (%) | $\Lambda$ (%) | RI (%) |
|-----------|---------|---------------|--------|
| 54,49     | -6,88   | 3,97          | 10,61  |

A Figura 4.30 mostra as diferenças nas frequências de ocorrência dos *clusters* entre os eventos Intermediários e Mais Limpos. Nota-se a ausência do *cluster* 6 em ambos os casos, coerente com a falta de observação de gotas grandes como as presentes em casos convectivos. Embora no caso de concentrações intermediárias de CCN os eventos tenham apresentado frequência de ocorrência levemente superior do *cluster* 7, a soma dos *cluster* 4, 5 e 7 foi inferior à dos casos Mais Limpos. Além disto, a participação dos *clusters* associados a chuvas mais fracas (1, 2 e 3) foi maior com o aumento nas concentrações de CCN. Ou seja, com o aumento da carga de CCN houve tendência geral de favorecimento dos *clusters* associados a chuvas mais fracas e desfavorecimento dos *clusters* associados às chuvas intensas, embora tenha havido leve aumento na taxa de precipitação. Ou seja, mesmo alterando significativamente as características físicas das chuvas estratiformes, as variações nas concentrações de particulado não se mostraram como fator determinante para a intensidade de precipitação dos eventos, ao menos da maneira como esta foi calculada nesta análise.

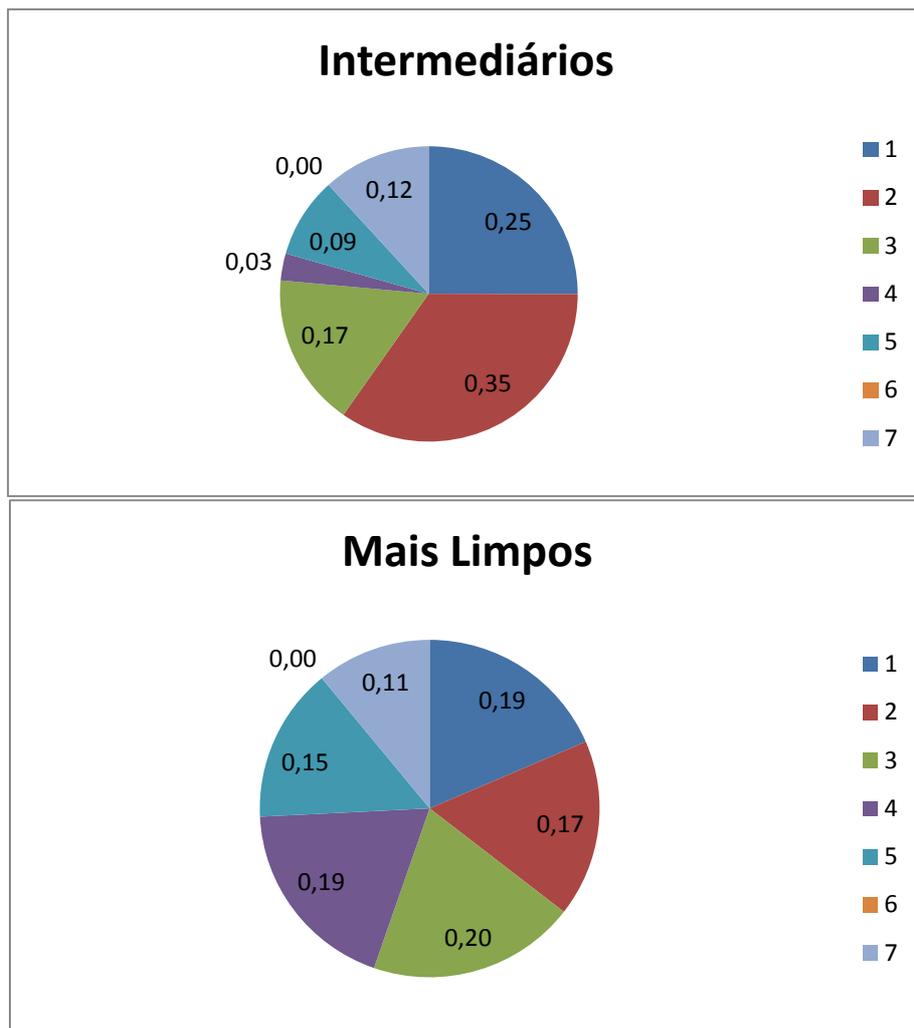


Figura 4.30 – Frequências de ocorrência dos *clusters* nos eventos com padrão Chuva Estratiforme sujeitos a diferentes cargas de CCN. Os números nas legendas se referem ao número dos *clusters*.

A análise dos eventos com padrão Convecção Organizada se tornou inconclusiva pela natureza dos eventos selecionados na metodologia utilizada. Estes eventos apresentaram características não uniformes, alguns com propriedades semelhantes a eventos com padrão Chuva Estratiforme e outros com maiores similaridades aos de Convecção Local. A justificativa para essa observação é maneira como foram selecionados os eventos, separando os com grandes durações e/ou fortes intensidades de chuvas. A Figura 4.31 mostra as DSD normalizadas dos casos Mais Poluídos, Mais Limpos e Intermediários para os eventos de Convecção Organizada, onde é possível

observar as diferenças mencionadas. Nota-se que os eventos Mais Poluídos e Mais Limpos apresentaram DSD com formas semelhantes às dos casos de Convecção Local (Figura 4.27), enquanto que os casos Intermediários se assemelham aos eventos de Chuva Estratiforme. Ou seja, com esta análise não foi possível isolar os efeitos dos aerossóis sobre esses sistemas e as diferenças mostradas na Figura 4.31 não foram atribuídas a diferenças nas concentrações de CCN.

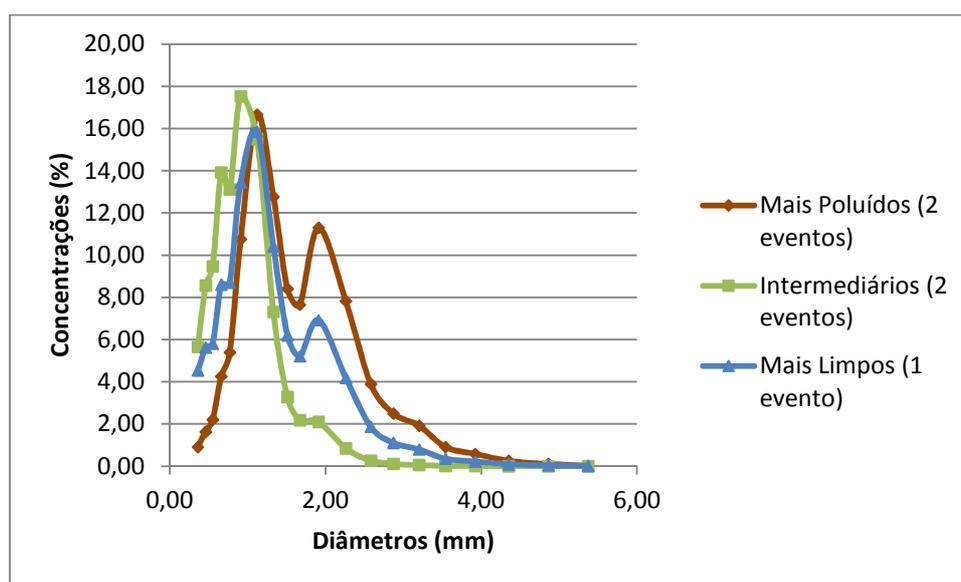


Figura 4.31 – DSD representativas dos eventos de Convecção Organizada para os casos Mais Poluídos, Mais Limpos e Intermediários.

#### 4.4.1. Estudo de casos individuais

A análise estatística geral dos eventos mostrou indícios dos impactos dos CCN sobre os sistemas precipitantes, no entanto também é interessante análise caso a caso para aferir a coerência destes efeitos. Para cada evento foram calculadas as DSD medianas com o intuito de obter boa representatividade destes e realizar as comparações. Os parâmetros  $N_0$ ,  $m$ ,  $\Lambda$  e  $RI$  foram obtidos a partir destas DSD e o acumulado total do evento a partir de todas as DSD observadas em cada caso.

#### 4.4.1.1. Eventos com padrão Chuva Estratiforme

Dentre os eventos com padrão Chuva Estratiforme, os que estavam sujeitos à maior e à menor concentração de CCN são os com as características resumidas na Tabela 4.9. Daqui em diante, ao comparar dois ou mais eventos, os sujeitos às maiores concentrações relativas de CCN serão referidos como “mais poluídos”, enquanto que os associados a menores concentrações relativas de CCN serão os “mais limpos”.

Tabela 4.9 – Características do evento mais poluído e do mais limpo dentre os dias com padrão Chuva Estratiforme.

| Evento       | Início                 | Fim                    | $N_0$    | $m$   | $\Lambda$ | RI<br>(mm/h) |
|--------------|------------------------|------------------------|----------|-------|-----------|--------------|
| Mais poluído | 02/12/2011<br>02:08:00 | 02/12/2011<br>02:33:00 | 3.68E+11 | 16.28 | 20.55     | 1.81         |
| Mais limpo   | 26/12/2011<br>14:34:00 | 26/12/2011<br>15:21:00 | 1.46E+05 | 4.54  | 6.45      | 2.45         |

A Tabela 4.9 mostra uma diferença significativa entre os eventos relacionados à maior e à menor concentração de CCN. O evento mais limpo apresentou valores significativamente menores dos três parâmetros do ajuste gamma, que está associado a um aumento na taxa de precipitação representativa dos eventos. Ou seja, o aumento na concentração de CCN pode ter impactado nos sistemas estratiformes de maneira a dificultar os processos de formação de precipitação. A Figura 4.32 mostra as DSD dos dois eventos, bem como as concentrações de CCN relativas. Esta figura mostra que o evento relacionado à maior concentração de CCN apresentou aumento na concentração total de gotas, bem como maior participação relativa de gotas pequenas (em torno de 0,5 mm). Este efeito foi bem pronunciado, uma vez que o evento mais poluído apresentou concentração de CCN mais de 6 vezes superior à do mais limpo. O teste *t*-student mostrou que não só a CTG mas também  $D_m$  dos dois eventos foram significativamente diferentes, no entanto o mesmo não pode ser dito para

a taxa de precipitação. Parte das diferenças observadas entre os dois eventos mostrados pode ainda ser devida ao ciclo diurno das propriedades atmosféricas locais e por isso decidiu-se fazer uma nova separação dos eventos levando este fator em consideração (nota-se que o evento mais poluído ocorreu de madrugada, enquanto que o mais limpo atuou na parte da tarde). Os dias foram subdivididos em 6 períodos, nos intervalos entre 00:00 e 03:59, 04:00 e 07:59 e assim por diante até o período de 20:00 a 23:59. Esses períodos serão referidos como, em ordem: madrugada, começo da manhã, final da manhã, tarde, final de tarde e noite. Com esta separação foi possível selecionar eventos que não somente ocorreram em dias com o mesmo padrão, mas também em horários semelhantes e isolar ainda mais os efeitos dos aerossóis sobre as propriedades das chuvas.

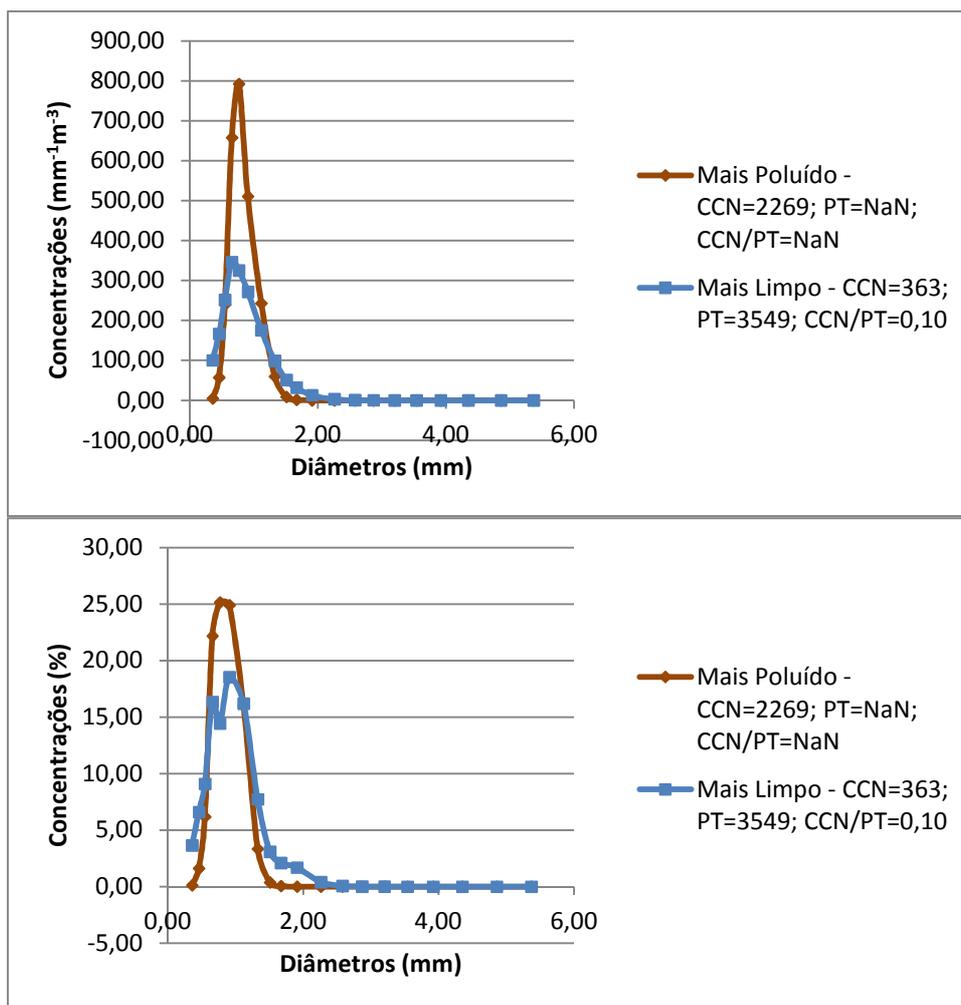


Figura 4.32 – DSD do evento mais poluído e do mais limpo dentre os com padrão Chuva Estratiforme. Acima: em concentrações de gotas por mm e por m<sup>3</sup>; Abaixo: concentrações normalizadas pela integral da DSD. As concentrações de CCN e PT são mostradas em cm<sup>-3</sup> na legenda.

Para o caso de dias com o padrão Chuva Estratiforme foram encontrados 3 eventos que ocorreram de madrugada, nos dias 02, 10 e 15 de Dezembro de 2011. As características desses eventos são mostradas na Tabela 4.10. As unidades das concentrações de CCN e PT serão sempre mostradas em cm<sup>-3</sup> o acumulado em mm e RI em mm/h e serão omitidas daqui em diante por simplicidade.

Tabela 4.10 – Eventos com o padrão Chuva Estratiforme que ocorreram de madrugada.

| Início                 | CCN  | PT   | CCN/PT | Acumulado | N0       | m     | $\Lambda$ | RI   |
|------------------------|------|------|--------|-----------|----------|-------|-----------|------|
| 02/12/2011<br>02:08:00 | 2269 | -    | -      | 0.46      | 3.68E+11 | 16.28 | 20.55     | 1.81 |
| 10/12/2011<br>03:34:00 | 1756 | 7324 | 0.24   | 0.73      | 1.05E+05 | 3.50  | 6.26      | 1.74 |
| 15/12/2011<br>03:47:00 | 1634 | -    | -      | 0.39      | 2.27E+05 | 4.87  | 6.97      | 2.03 |

Pela Tabela 4.10 é possível perceber que o evento mais poluído que ocorreu na madrugada foi o mesmo mostrado na Figura 4.32, onde foram considerados todos os eventos com padrão Chuva Estratiforme. Percebe-se que os outros dois eventos na Tabela 4.10 apresentam concentrações de CCN relativamente semelhante e aproximadamente 500 a 600  $\text{cm}^{-3}$  menor do que a do evento mais poluído. Nota-se que os parâmetros do evento mais limpo e do intermediário foram numericamente semelhantes, com RI levemente superior no evento com menor concentração de CCN. A taxa de precipitação do evento mais poluído foi ligeiramente superior à do evento intermediário, contrário ao observado na Figura 4.32, onde o evento mais poluído gerou chuvas menos intensas. Este efeito possivelmente está relacionado aos dois efeitos dos CCN nas chuvas estratiformes mencionados anteriormente, nomeadamente a diminuição no diâmetro médio das gotas e o aumento em suas concentrações. Analisando somente a Tabela 4.10 fica difícil de observar o efeito da carga de aerossóis nos sistemas precipitantes, mas estudando a Figura 4.33 este efeito se torna mais aparente. Nesta figura nota-se que, conforme aumentam as concentrações de CCN, maiores são as concentrações numéricas totais de gotas das DSD mas menores são as participações relativas de gotas com diâmetros em torno ou maior que 1,5 mm. Estes efeitos resultaram em diminuições do diâmetro médio ponderado pela massa das gotas de chuva em 22% do caso mais poluído para o mais limpo. A concentração total de gotas,

por outro lado, aumentou em 55%. Estes dois efeitos foram significativos com intervalo de 95% de confiança, de acordo com o método de *t-student*.

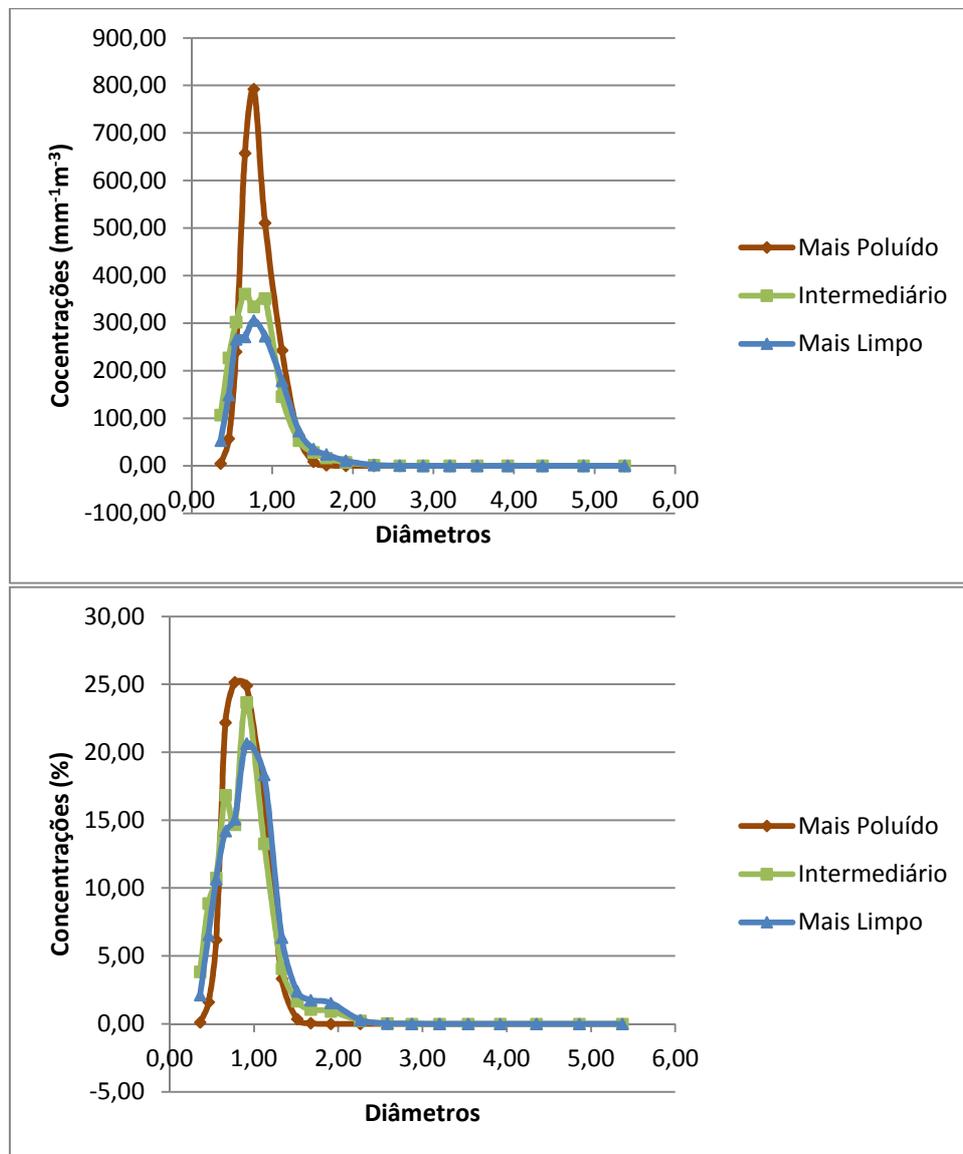


Figura 4.33 – DSD representativas dos eventos com padrão Chuva Estratiforme que ocorreram durante a madrugada. Acima: DSD em concentrações de gotas por m<sup>3</sup> de ar e por mm de intervalo de diâmetro; Abaixo: concentrações normalizadas pela integral.

De modo análogo à análise feita para os eventos que ocorreram de madrugada, foram estudados outros dois eventos com atuação no período do começo da tarde. Como foram observados apenas cinco dias com padrão Chuva Estratiforme, estes eventos fecham o estudo de dias com essas

características. O evento mais poluído e o mais limpo ocorreram, respectivamente, nos dias 27/11 e 26/12 de 2012, com concentrações de CCN de 973 e 362  $\text{cm}^{-3}$ . Entre estes dois eventos houve queda de 63% nas concentrações de CCN entre o mais poluído e o mais limpo, com diminuições de  $m$  e  $\Lambda$  associadas de 79% e 77%, respectivamente. O parâmetro  $N_0$  sofreu diminuição de  $3,70 \times 10^{14}$  para  $1,46 \times 10^5$ , enquanto que a taxa de precipitação aumentou de 1,33 para 2,45 (83% de aumento).  $D_m$  foi superior em 30% no caso mais limpo, com CTG 24% menor. Ou seja, novamente foram observados os efeitos de diminuição do diâmetro médio das gotas e aumento nas concentrações totais com o aumento de CCN sendo que, neste caso, foi observado aumento na taxa precipitação. No entanto, o aumento de CTG associado ao aumento de CCN não obteve significância no teste de *t-student*, mas os parâmetros  $R_l$  e  $D_m$  sim. Ao calcular a frequência relativa de ocorrência dos 7 *clusters* para cada evento, foi observado forte diferença entre eles, como mostra a Figura 4.34. No evento mais poluído foi observada participação dominante do *cluster* 1, relativo a chuvas fracas, o qual não foi observado no evento mais limpo. Este, por sua vez, apresentou frequência significativa de ocorrência do *cluster* 7 e 5, relacionados a taxas de precipitação maiores. Nota-se a ausência do *cluster* 6 em ambos os eventos, devido à ausência de gotas grandes como as presentes em eventos mais convectivos.

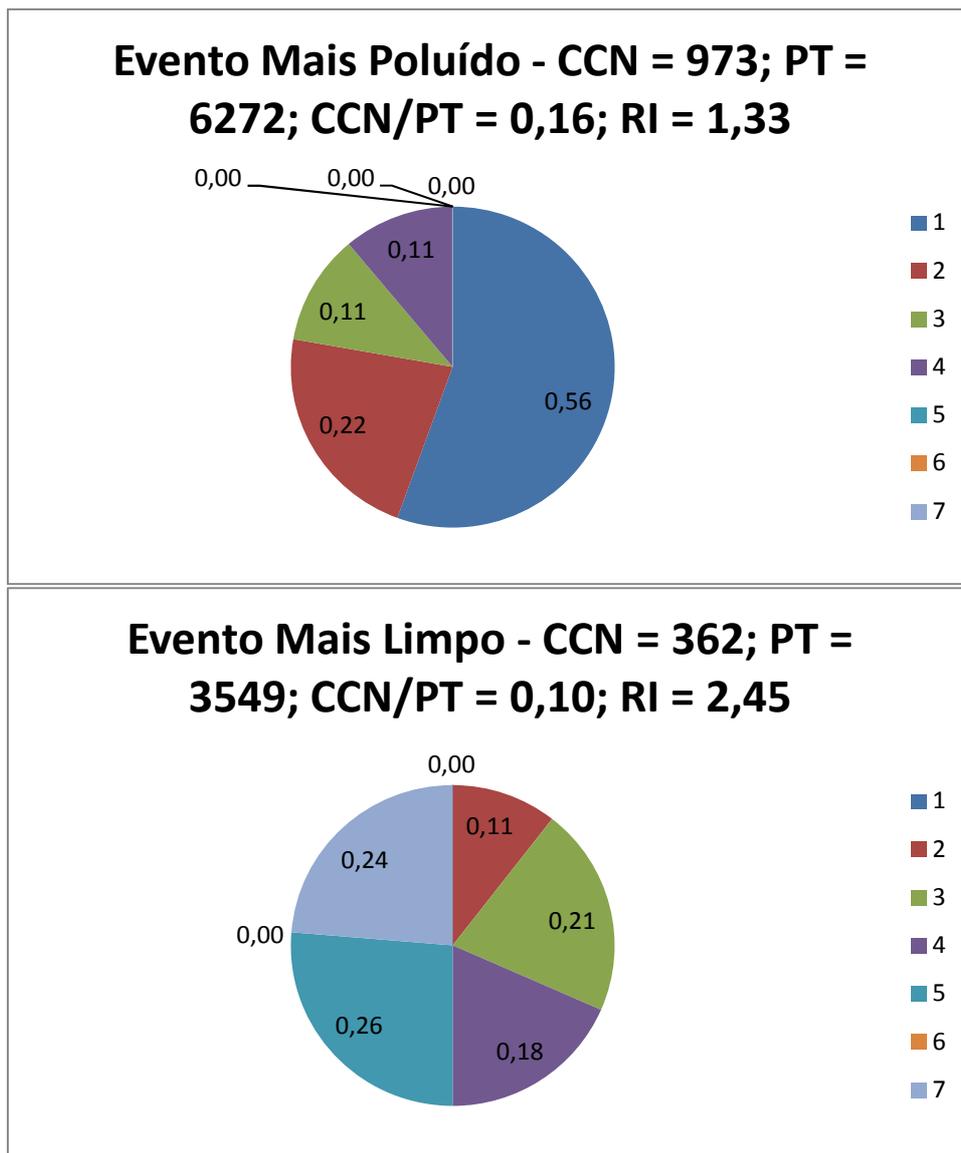


Figura 4.34 – Frequências relativas de ocorrência dos *clusters* nos eventos com padrão Chuva Estratiforme que ocorreram no início da tarde.

#### 4.4.2. Eventos com padrão Convecção Local

Embora tenham sido observados 7 dias com padrão Convecção Local, foram selecionados apenas 6 eventos, uma vez que o dia 04/12/2011 apresentou apenas eventos com durações inferiores a 10 minutos. Para o estudo desses casos foi necessária a introdução da variável CAPE (*Convective Available Potential Energy*, ou Energia Potencial Disponível para Convecção em tradução livre) nas comparações para fornecer um indicativo das magnitudes

relativas dos movimentos verticais entre os eventos. Os valores de CAPE foram calculados a partir de dados das radiossondagens que foram lançadas dentro do escopo do projeto CHUVA, a partir do Instituto de Aeronáutica e Espaço (São José dos Campos). No entanto, os lançamentos foram encerrados no dia 22/12/2011 e os valores de CAPE relativo aos eventos ocorridos no mês de Janeiro de 2012 foram obtidos a partir das radiossondagens lançadas operacionalmente a partir do aeroporto de Campo de Marte, em São Paulo. A Tabela 4.11 mostra as características dos eventos a serem analisados, ordenados pelas concentrações de CCN.

Tabela 4.11 – Características dos eventos selecionados que ocorreram em dias com padrão Convecção Local. \* Estes valores de CAPE foram obtidos a partir de radiossondagens realizadas no aeroporto de Campo de Marte em São Paulo. \*\* Sem radiossondagem disponível para o horário das 12:00Z.

| Início                 | Duração | CAPE (J) | Horário Radiossonda (Z) | CCN     | PT       | CCN/PT | RI    |
|------------------------|---------|----------|-------------------------|---------|----------|--------|-------|
| 07/01/2012<br>17:09:00 | 61      | 23*      | 00:00**                 | 4390.64 | 16516.95 | 0.27   | 5.01  |
| 08/01/2012<br>15:07:00 | 50      | 837*     | 12:00                   | 3921.35 | 11994.05 | 0.33   | 18.81 |
| 06/01/2012<br>17:10:00 | 38      | 1438*    | 12:00                   | 3757.71 | 12769.44 | 0.29   | 25.90 |
| 20/12/2011<br>18:52:00 | 40      | 1432     | 12:00                   | 2902.65 | -        | -      | 12.44 |
| 08/12/2011<br>14:18:00 | 70      | 854      | 12:00                   | 2212.06 | 14423.05 | 0.15   | 5.71  |
| 28/11/2011<br>17:19:00 | 57      | 372      | 12:00                   | 1486.06 | 5446.79  | 0.27   | 3.68  |

Em primeira análise, analisando somente os eventos que ocorreram em Janeiro de 2012, observa-se um aumento de RI com aumento de CAPE, o mesmo ocorrendo para os outros três eventos. No entanto, ao analisar os seis eventos como um todo, esta relação de proporcionalidade entre RI e CAPE não é observada e será mostrado que este fator pode estar relacionado às concentrações de aerossóis representativas dos eventos. Nota-se que os

eventos dos dias 06/01/2012 e 20/12/2012 foram representados por CAPE semelhante e ocorreram em horários semelhantes, levando em consideração os períodos de 4 horas definidos anteriormente. O mesmo ocorre para os eventos dos dias 08/01/2012 e 08/12/2011. O evento do dia 07/01/2012 apresentou CAPE de apenas 23 J, mas ressalta-se que este dado é relativo ao horário de 00:00Z. Em teoria, o valor de CAPE às 12:00Z deve ser superior ao das 00:00Z do mesmo dia, uma vez que o primeiro horário se encontra no período diurno e o segundo no noturno. Como o valor de CAPE do evento do dia 07/01/2012 foi relativamente pequeno às 00:00Z, este evento será comparado com o do dia 28/11/2011 que também apresentou CAPE relativamente pequeno para o horário de 12:00Z. As Figuras 4.35, 4.36 e 4.37 mostram as comparações das DSD desses três pares de eventos.

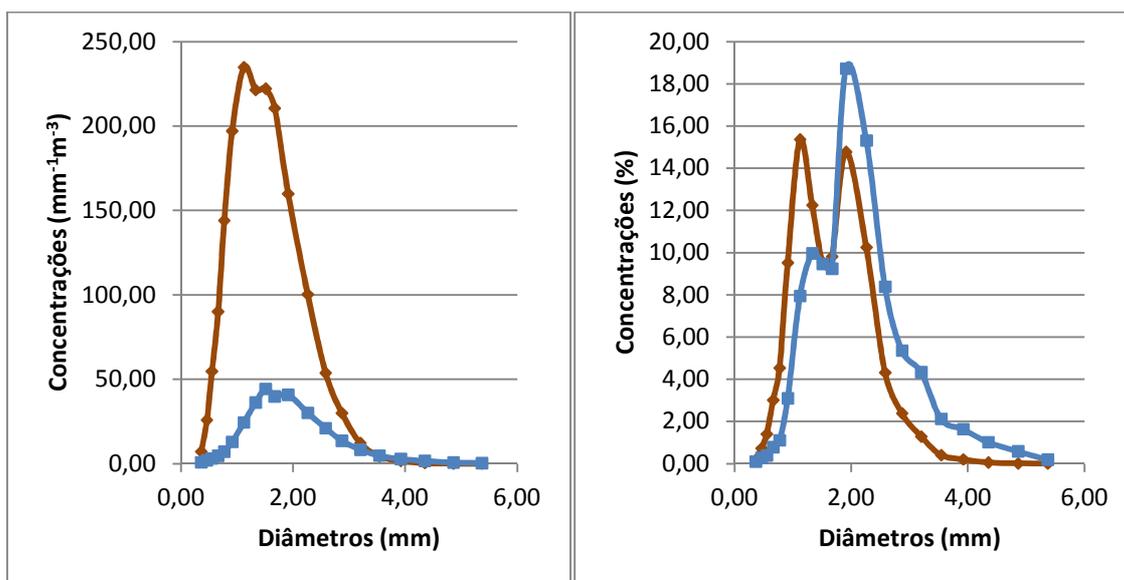


Figura 4.35 – Comparação entre as DSD dos eventos dos dias 06/01/2012 (mais poluído – em marrom) e 20/12/2011 (mais limpo – em azul). À esquerda: concentrações em  $\text{mm}^{-1}\text{m}^{-3}$ ; à direita: concentrações normalizadas pela integral.

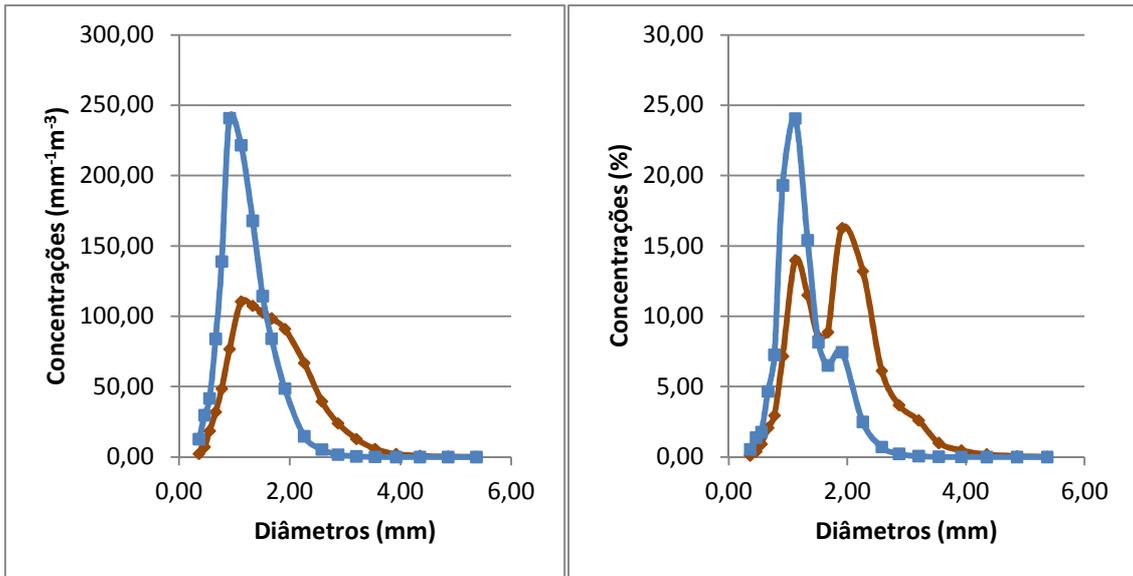


Figura 4.36 – Comparação entre as DSD dos eventos dos dias 08/01/2012 (mais poluído – em marrom) e 08/12/2011 (mais limpo – em azul). À esquerda: concentrações em  $\text{mm}^{-1}\text{m}^{-3}$ ; à direita: concentrações normalizadas pela integral.

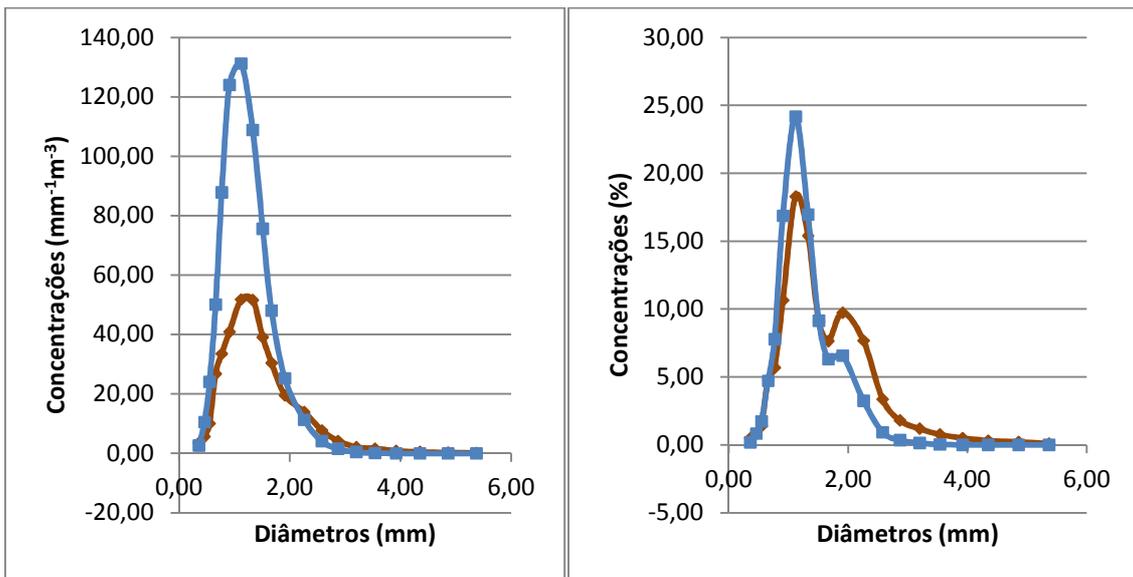


Figura 4.37 – Comparação entre as DSD dos eventos dos dias 07/01/2012 (mais poluído – em marrom) e 28/11/2011 (mais limpo – em azul). À esquerda: concentrações em  $\text{mm}^{-1}\text{m}^{-3}$ ; à direita: concentrações normalizadas pela integral.

Primeiramente, nota-se que nos três pares de eventos selecionados os casos relativamente mais poluídos apresentaram maior taxa de precipitação. Uma vez que foram realizados diversos procedimentos para a seleção de eventos a fim de isolar os efeitos dos aerossóis, conclui-se que este aumento foi, ao menos em parte, devido ao aumento nas concentrações de CCN. No entanto, devido à grande variabilidade nas taxas de precipitação dos eventos, a diferença entre os valores de RI entre os três pares escolhidos não obtiveram significância estatística no teste de *t*-student. Mas, por outro lado, os parâmetros  $D_m$  e CTG obtiveram significância (com exceção de CTG no Par 2) mostrando o impacto do aumento das concentrações de CCN no eventos. O favorecimento da intensidade dos eventos convectivos foi observado de duas maneiras diferentes, como mostra a Figura 4.35 em comparação com as Figuras 4.36 e 4.37. No primeiro caso o aumento nas concentrações de CCN favoreceu o desenvolvimento do sistema através de aumento na concentração total de gotas e não pelo aumento na taxa de crescimento, como foi o caso nos eventos mostrados nas Figuras 4.36 e 4.37. Esta diferença possivelmente está relacionada às diferenças nos valores de CAPE, associados à intensidade dos movimentos convectivos. Ou seja, o alto valor de CAPE observado nos eventos mostrados na Figura 4.35 indica que provavelmente os movimentos convectivos ascendentes das parcelas de ar foram muito intensos, resfriando-as rapidamente e garantindo alta supersaturação no interior das nuvens. Este cenário favorece o crescimento de gotas por condensação e, conforme aumenta a concentração de CCN, aumenta também o número de gotas em função da abundância de vapor de água disponível para a adsorção nas partículas. Os eventos mostrados nas Figuras 4.36 e 4.37, com menores valores de CAPE, apresentaram diminuições nas concentrações de gotas com o aumento nas concentrações de CCN, indicando que os movimentos ascendentes não foram fortes o suficiente para impedir a competição por vapor de água entre os aerossóis no interior das nuvens. No entanto, o aumento nas concentrações de CCN nesses casos ainda favoreceram os mecanismos de formação de precipitação, possivelmente favorecendo o crescimento de gotas

por coalisção e coalescência, e está associado a maior presença de gotas com diâmetros em torno de 2 mm ou superiores.

Com os resultados obtidos da análise dos eventos com padrão Convecção Local, foram calculados fatores indicativos da sensibilidade dos eventos aos aumentos nas concentrações de CCN. Para isto foram calculadas as razões entre o aumento percentual de CCN entre os pares mostrados nas Figuras 4.35, 4.36 e 4.37 e o aumento/queda nos parâmetros do ajuste gamma e intensidade de precipitação associados. Estes valores são mostrados na Tabela 4.12. Como foi calculado o aumento nas concentrações de CCN (e não diminuição), as suas variações percentuais são sempre positivas e o sinal dos valores mostrados na Tabela 4.12 é associado a aumento dos parâmetros caso seja positivo e queda caso negativo.

Tabela 4.12 – Resultados das razões entre as variações percentuais de CCN e das características dos eventos. Par 1 se refere aos eventos mostrados na Figura 4.35, Par 2 aos da Figura 4.36 e Par 3 aos da Figura 4.37.

| Eventos | (%CCN)/(%N0) | (%CCN)/(%m) | (%CCN)/(%Λ) | (%CCN)/(%RI) |
|---------|--------------|-------------|-------------|--------------|
| Par 1   | 0.01         | 0.89        | 0.54        | 0.27         |
| Par 2   | -0.81        | 20.14       | -2.48       | 0.34         |
| Par 3   | -1.99        | -2.85       | -3.29       | 5.42         |

A Tabela 4.11 mostra alguns aspectos interessantes da relação entre os aerossóis e os sistemas precipitantes. Primeiramente, nota-se que os impactos dos aumentos nas concentrações de CCN não ocorrem da mesma maneira em eventos com características distintas, mesmo que todos tenham sido classificados como convecção local, uma vez que se observam valores com sinais opostos nas razões mostradas na Tabela 4.11. Outro fator interessante é a magnitude destas razões e como variam entre os pares de eventos, mostrando as diferentes sensibilidades dos sistemas precipitantes ao aumento na carga de aerossóis. Valores absolutos menores do que a unidade na Tabela 4.11 indicam que a variação no parâmetro dos eventos foi superior,

percentualmente, à variação nas concentrações de CCN. Ou seja, pequenas variações nas concentrações de partículas podem ter impactos significativos nas propriedades das chuvas nesses casos. O oposto também é válido, onde valores absolutos maiores do que 1 indicam sistemas pouco sensíveis às concentrações ambientes de CCN. Uma tendência geral observada na Tabela 4.12 é a de diminuição dos valores absolutos das razões do Par 3 em direção ao Par 1, com exceção do parâmetro  $m$  no Par 2 que apresentou o maior valor desta. Analisando novamente a Tabela 4.11, observa-se que os eventos pertencentes ao Par 1 estão associados aos maiores valores de CAPE observados, o Par 2 com valores intermediários e o Par 3 com os menores valores de energia disponível para convecção. Ou seja, estes resultados indicam que convecções mais intensas, com maiores velocidades ascendentes, são mais sensíveis às variações nas concentrações de CCN e esta sensibilidade diminui conforme diminui a intensidade convectiva dos sistemas precipitantes (aqui representada pelo valor de CAPE). As diferenças nos efeitos dos aerossóis nos eventos ilustradas nas diferenças entre a Figura 4.35 e as Figuras 4.36 e 4.37 são representadas por sinais opostos nos valores das razões mostradas na Tabela 4.12. No caso dos eventos do Par 1, todos os valores são positivos, indicando aumento dos parâmetros. Nos pares 2 e 3, todas as razões relativas aos parâmetros do ajuste gamma são negativas, com exceção do parâmetro  $m$  no Par 2, indicando diminuição desses parâmetros. No entanto, em todos os casos foi observado aumento na taxa de precipitação, mostrando que os aumentos nas concentrações de CCN intensificaram os sistemas observados por dois mecanismos diferentes. Vale ressaltar, no entanto, que estes resultados são baseados na análise de apenas 6 eventos de precipitação e seria necessário grande ampliação deste estudo para fornecer escopo mais completo dos impactos dos aerossóis nos sistemas precipitantes convectivos.

#### **4.4.3. Eventos com padrão Convecção Organizada**

Foram observados 6 dias com o padrão Convecção Organizada, no entanto serão analisados apenas 5 eventos pois um deles não possui medidas de CCN

e PT associadas. A análise dos eventos com padrão Convecção Organizada é significativamente mais complexa do que nos outros casos pelas diferentes maneiras como se apresentam os sistemas. Por exemplo, foram observados dias com este padrão onde ocorreram três pancadas de chuva rápida e forte em sequência, enquanto que em outros dias ocorreram apenas uma pancada mais forte e rápida seguida logo de precipitação mais fraca ou, ainda, em um caso, houve chuva estratiforme mais fraca durante o dia, com presença de chuva persistente e intensa durante a noite, inclusive se prolongando para o dia seguinte. Com essas diferenças em mente, decidiu-se comparar os eventos com características semelhantes, em detrimento da seleção por períodos do ciclo diurno. A Tabela 4.13 mostra dois eventos selecionados, associados a sistemas de precipitação que causaram três pancadas seguidas de chuva. Os dois eventos selecionados foram as primeiras pancadas do dia. Os valores de CAPE foram calculados a partir das radiossondagens lançadas no IAE (Instituto de Aeronáutica e Espaço), às 12:00 UTC.

Tabela 4.13 – Eventos com padrão Convecção Organizada semelhantes, associados a sistemas que causaram três pancadas de chuva seguidas nos dias em que atuaram sobre a região de medidas.

| Início                 | CAPE (J) | Duração | CCN     | PT       | CCN/PT | RI   |
|------------------------|----------|---------|---------|----------|--------|------|
| 07/12/2011<br>16:48:00 | 387      | 34      | 6703,04 | 17892,35 | 0,37   | 2,49 |
| 18/12/2011<br>15:30:00 | 1005     | 38      | 3091,11 | 18075,65 | 0,17   | 9,09 |

Como pode ser observado na Tabela 4.13, o evento do dia 18/12/2011 foi associado a chuvas mais intensas, inclusive com maior presença de gotas acima de 2 mm e maior concentração total de gotas (não mostrado). Nota-se que este evento esteve associado a concentrações significativamente inferiores de CCN, no entanto estima-se que este não seja o principal fator que explique suas diferenças com relação ao evento do dia 07/12/2011. Nota-se que a diferença nos valores de CAPE foi significativa, mostrando que o evento do dia 18/12/2011 esteve associado a ambiente mais favorável à convecção e este é o principal fator que favoreceu o crescimento de suas gotas e aumento na taxa

de precipitação. Embora os aerossóis possam ter algum efeito sobre esses sistemas, não é possível caracterizá-lo ou quantificá-lo a partir da metodologia adotada.

Nos dias 01 e 24 de Dezembro de 2011 foram observados eventos de precipitação semelhantes, ambos com presença de rápida pancada de chuva intensa (cerca de 10 minutos de duração), logo seguida de chuva mais fraca e persistente. As características associadas a esses eventos são resumidas na Tabela 4.14.

Tabela 4.14 – Eventos com padrão Convecção Organizada semelhantes em função da característica de estarem associados a forte pancada rápida de chuva logo seguida de precipitação mais fraca e persistente. \* Este valor de CAPE foi obtido a partir de radiossondagem lançado no aeroporto Campo de Marte em São Paulo.

| Início                 | CAPE (J) | Duração | CCN     | PT       | CCN/PT | RI   |
|------------------------|----------|---------|---------|----------|--------|------|
| 24/12/2011<br>21:17:00 | 161*     | 100     | 2788.94 | 10877.18 | 0.26   | 2.82 |
| 01/12/2011<br>17:21:00 | 330      | 147     | 1395.78 | -        | -      | 2.99 |

Primeiramente, vale notar que, enquanto o valor de CAPE do evento do dia 24/12/2011 foi calculado a partir da radiossondagem lançada no aeroporto de Campo de Marte em São Paulo às 12:00 UTC do dia, o CAPE associado ao evento do dia 01/12/2011 foi obtido a partir da radiossondagem lançada no IAE às 12:00 UTC. A termos de comparação, o valor de CAPE em São Paulo para o dia 01/12/2011 foi de 461 J. Embora os valores de CAPE entre os dois evento seja significativamente diferente, ambos não são tão elevados quanto alguns observados nos dias com padrão Convecção Local que estiveram associados a chuvas intensas, onde CAPE atingiu valores superiores a 800 J. Além disto, a maior parte da precipitação dos eventos foi caracterizada por persistência característica de chuvas mais estratiformes. Ou seja, os eventos serão comparados apenas em termos das variações nas concentrações de CCN, considerando que os ambientes associados a eles foram relativamente

semelhantes com exceção à carga de aerossóis. A Figura 4.38 mostra as DSD representativas dos dois eventos.

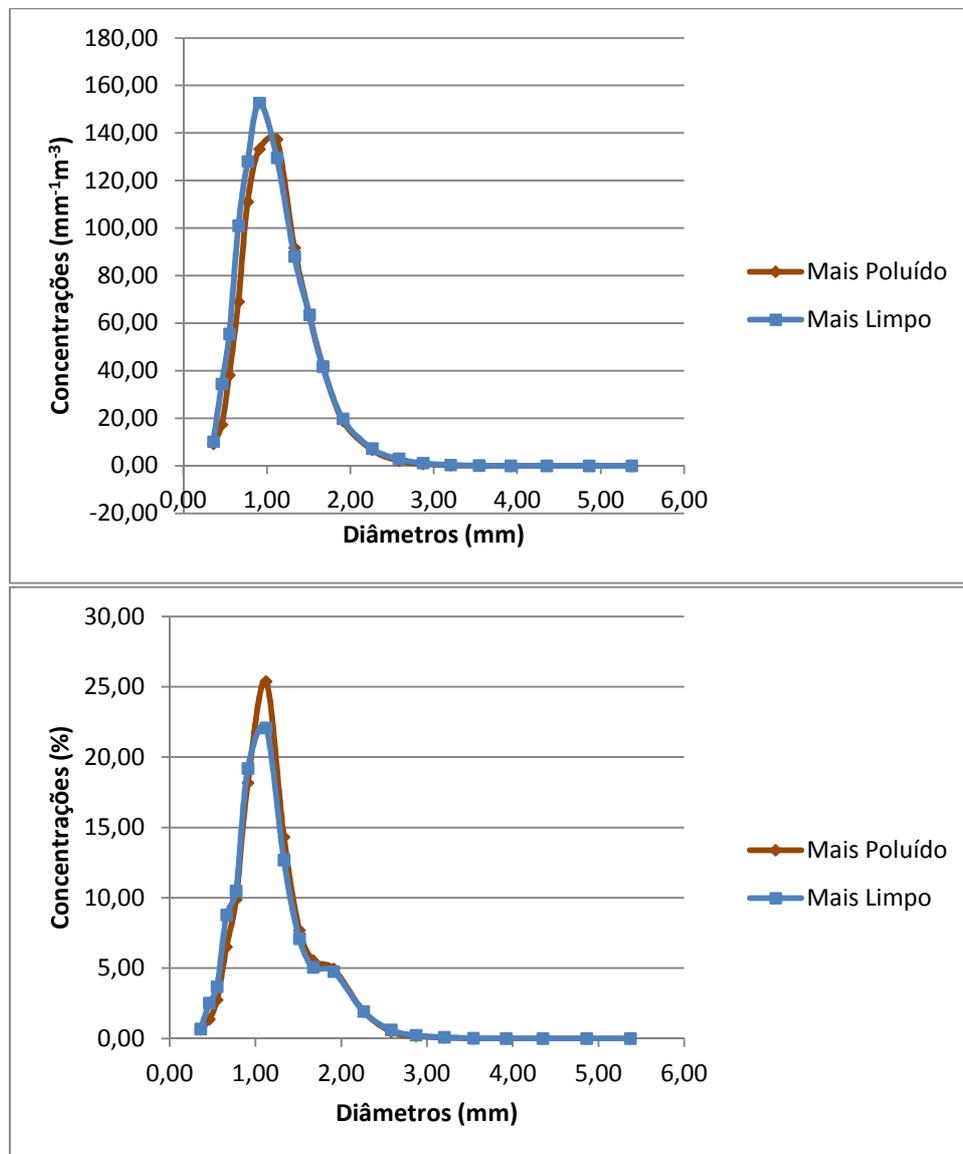


Figura 4.38 – DSD representativas dos eventos mostrados na Tabela 4.14. Acima: concentrações em  $\text{mm}^{-1}\text{m}^{-3}$ ; Abaixo: concentrações normalizadas pela integral.

Como pode ser observado na Figura 4.38, as DSD representativas dos dois eventos selecionados foram muito semelhantes, onde as ligeiras diferenças nas concentrações de gotas com diâmetros de aproximadamente 1 mm, mesmo obtendo significância estatística ao calcular  $D_m$  e aplicar o método s-

*student*, podem ser consideradas insignificantes em termos físicos, assim como a diferença na taxa de precipitação. Observando a Tabela 4.14, observa-se que os dois eventos estavam sujeitos a concentrações de CCN significativamente diferentes, com variação de aproximadamente  $1400 \text{ cm}^{-3}$  entre eles. Ou seja, este resultado indica que a variação na carga de aerossóis, mesmo sendo significativa, não alterou as características dos eventos em questão. Este fator mostra que eventos com propriedades distintas respondem de maneira diferente às variações nas concentrações de CCN. Possivelmente a falta de sensibilidade destes eventos às concentrações de CCN se deve à característica da convecção, associada a sistemas mais organizados. Desta maneira, observa-se que as variações nas concentrações de CCN podem ter efeito irrisório em sistemas com ciclo de vida associado a fenômenos de escala maior do que a local, onde os efeitos de dinâmica da atmosfera são mais determinantes do que os processos micro físicos para a formação e evolução do sistema. Estes resultados, no entanto, foram baseados na comparação entre apenas dois eventos e devem ser considerados como apenas indicação de um possível processo envolvendo os CCN e os sistemas de convecção organizada e estudos envolvendo maior número de eventos devem ser realizados para a quantificação e melhor descrição dos fenômenos envolvidos.

## 5 CONCLUSÕES

Este trabalho teve como objetivo aprofundar o estudo sobre alguns aspectos da relação entre as concentrações de aerossóis e os sistemas precipitantes da região do Vale do Paraíba, no período de verão. Para isto foram estudadas medidas relativas aos aerossóis e aos sistemas precipitantes para cada dia no período de 22/11/2011 a 10/01/2012. Os aerossóis e os eventos de precipitação foram primeiramente caracterizados individualmente e em seguida foi feita análise comparativa entre os resultados obtidos das medidas dos aerossóis e das propriedades das chuvas.

Os aerossóis da região apresentaram grandes variações em suas concentrações e, também, na capacidade de ativação de gotas de nuvens. As concentrações de CCN variaram desde valores em torno de  $100 \text{ cm}^{-3}$  até a índices superiores à dezena de milhares por centímetro cúbico, na supersaturação de 1%. A quantidade total de partículas no ar apresentou variação ainda maior, atingindo valores tão altos quanto  $70.000 \text{ cm}^{-3}$ . As concentrações médias de CCN e PT foram de, respectivamente, aproximadamente  $2.000 \text{ cm}^{-3}$  a 1% de supersaturação e  $8.400 \text{ cm}^{-3}$ , valores representativo de região urbanizada mas afastada de grandes centros populacionais. A eficiência de ativação das partículas foi medida através da razão entre as concentrações de CCN e as concentrações totais de particulado. A média desta razão aumenta conforme a supersaturação, com valor de 0,19 para 0,2% de supersaturação e 0,42 para 1%. Estes dados mostram que o particulado local é relativamente ineficiente em ativar gotas de nuvens, uma vez que nem metade (em média) das partículas condensariam em gotículas de nuvens se sujeitas a supersaturações de até 1%. As concentrações de CCN apresentaram ciclo diurno relativamente bem definido (ao menos na ausência de precipitação), com maiores valores no período da tarde. O ciclo diurno das concentrações totais de partículas sugeriu impactos da circulação local de carros sobre as medidas, com máximo local próximo ao horário de entrada dos trabalhadores do IEAv. Em termos de composição química, os aerossóis locais foram caracterizados por grande concentração de

carbono elementar (BC – *Black Carbon*, na sigla em inglês), representando cerca de 25% da massa do particulado. Outros compostos observados na região com relativa abundância foram o Enxofre, o Silício e o Sódio, associados, respectivamente, a ambientes urbanizados, a poeira do solo e ao sal marinho. As propriedades dos aerossóis mostraram relação com o regime de circulação local, com as menores concentrações e maiores eficiências de ativação relacionados a ventos de Sul e Sudeste. Esta direção de ventos está associada à direção de entrada da brisa marítima na região e mostra que, de modo geral, esta está associada a massa de ar mais limpa e com particulado mais eficiente para formação de nuvens. A Sul e a Sudeste do local de medidas também há menor presença de centros urbanos e maior concentração de vegetação, e ventos destas direções também podem ter trazido aerossóis biogênicos, que geralmente apresentam também concentrações numéricas relativamente baixas. As maiores concentrações de CCN e PT e menores razões entre essas concentrações foram associadas a ventos do quadrante NO (entre as direções de SO e NE), onde há presença da cidade de São José dos Campos. Com este resultado é possível perceber que provavelmente os aerossóis urbanos trazidos por esses ventos são menores do que os relativos aos ventos de S e SE, assim como é citado na literatura sobre o assunto. Estes resultados mostram que o local de medidas é ideal para o estudo dos impactos dos aerossóis nas nuvens, uma vez que há grandes variações nas suas propriedades e concentrações, possibilitando a comparação com propriedades dos eventos chuvosos.

Os dados analisados relativos aos eventos de precipitação foram as medidas feitas pelo disdrômetro tipo Joss. Estas medidas foram parametrizadas pelo Método dos Momentos, que se mostrou eficiente ao representa-las, com distribuições de tamanho de gotas de chuva (DSD) parametrizadas semelhantes às medidas. A taxa de precipitação (RI) obtida a partir das DSD parametrizadas foi muito próxima da medida, com índice de correlação linear entre elas de 0,9996. O ajuste pelo Método dos Momentos (ou ajuste da função gamma) forneceu três parâmetros ( $N_0$ ,  $m$  e  $\Lambda$ ) a partir dos quais foi possível a obtenção da curva gamma que melhor representa cada DSD medida. Estes

valores estão associados, respectivamente, à concentração total de gotas, ao diâmetro modal delas e à largura da DSD. As chuvas mais fracas (RI entre 1 e 2 mm/h) apresentaram valores relativamente altos de  $N_0$ , frequentemente na ordem de  $10^5 \text{ mm}^{-1} m^{-3}$ , com medianas de  $m$  e  $\Lambda$  em torno de, respectivamente, 6,4 (adimensional) e 7,2 ( $\text{mm}^{-1}$ ). Os valores dos parâmetros representativos das chuvas mais intensas (RI  $\geq 20$  mm/h) foram de  $4,2 \times 10^4$ , 8,2 e 6,6 para, respectivamente,  $N_0$ ,  $m$  e  $\Lambda$ . Ou seja, de modo geral, as chuvas mais intensas apresentaram menores concentrações totais de gotas, com DSD deslocadas para diâmetros maiores no intervalo de *bins* utilizado no Joss e mais alargadas. No entanto, não foi observada relação de proporcionalidade direta entre as intensidades de precipitação e os parâmetros do ajuste gamma. Estes parâmetros foram dispostos em espaço tridimensional, onde cada dimensão era representada por um parâmetro. Foi aplicado algoritmo de análise de *clusters* de modo supervisionado para separar os dados em subconjuntos baseado nas distâncias euclidianas entre os pontos no espaço definido. Sete subconjuntos foram obtidos, representando relativamente bem todos os tipos de DSD parametrizados, desde chuvas fracas com dominância de gotas pequenas a DSD associadas a chuvas convectivas intensas. Este procedimento se mostrou útil para a caracterização dos eventos de precipitação, onde as frequências de ocorrências dos *clusters* esteve associada ao tipo de precipitação. Foi realizada tentativa de parametrização dos parâmetros do ajuste gamma através de relações estatísticas entre eles. Observou-se que este procedimento, embora tenham sido observadas correlações estatísticas significativas entre os parâmetros, não se mostrou adequado para o cálculo dos parâmetros, uma vez que pequenos erros nas estimativas resultam em grandes erros nas taxas de precipitação calculadas.

A análise dos impactos dos aerossóis na dinâmica de nuvens e precipitação se mostrou complexa e os resultados sensíveis às maneiras como pode ser conduzida. Caso sejam analisadas diretamente as relações entre as concentrações de particulado e as propriedades das chuvas, os resultados serão insatisfatórios uma vez que apresentarão tendências associadas aos eventos de precipitação em si e não mostrarão os efeitos dos aerossóis. No

entanto, ao realizar procedimentos para a seleção de cenários semelhantes, os efeitos dos particulados sobre os sistemas precipitantes se torna mais aparente. Neste trabalho foi realizada primeiramente análise das características gerais dos dias de medidas, onde estes foram classificados com base nas amplitudes de temperatura e concentrações de CCN e acumulados, durações e intensidades das chuvas. Assim, sugeriram-se três tipos de padrão diário onde foi observada presença de chuva, chamados de Chuva Estratiforme, Convecção Local e Convecção Organizada. Dentre os dias com estas classificações foram analisados eventos sujeitos a diferentes concentrações de CCN, as quais foram obtidas com 30 minutos de antecedência às chuvas para a eliminação dos efeitos de *rainout* e *washout*. A análise estatística dos eventos com padrão Chuva Estratiforme mostrou que estes eventos apresentaram diminuição do diâmetro médio ponderado pela massa ( $D_m$ ) e aumento na concentração total de gotas (CTG) com o aumento na carga de CCN, no entanto apenas o último obteve significância estatística num intervalo de 95% de confiança. Observou-se aumento de CTG em 37% com aumento de 103% nas concentrações médias de CCN. O efeito de aumento de CTG foi refletido em aumento, de modo geral, na taxa de precipitação em eventos estratiformes. Analisando casos individuais, onde em alguns casos foram observadas reduções estatisticamente significativas em  $D_m$  com aumento de CCN, no entanto, foram observados casos em que a intensidade de precipitação foi desfavorecida com a maior presença de particulado, sugerindo que o balanço entre os efeitos de diminuição de  $D_m$  e aumento de CTG pode apresentar diferentes tendências, impactando de formas opostas a taxa de precipitação. Uma sugestão para estudos futuros seria a análise mais aprofundada sobre estes dois efeitos a fim de obter modelo conceitual que descreva como eles ocorrem e em quais circunstâncias um deles é dominante. Assim, seria possível a determinação, por exemplo, de parametrizações que representassem aumento ou queda nas taxas de precipitação estratiforme baseado em informações sobre as concentrações de CCN e propriedades físicas das chuvas.

Analisando os eventos com padrão Convecção Local não foi observado relação de proporcionalidade entre as concentrações de CCN e as propriedades dos eventos como no caso de chuvas estratiformes. No entanto, conclusões interessantes foram possíveis. Os eventos foram separados entre os casos mais limpos, mais poluídos e intermediários, com as respectivas propriedades médias. Observou-se que o caso mais limpo apresentou os menores valores de  $D_m$  e CTG (2,19 mm e 220 m<sup>-3</sup> respectivamente), os quais aumentaram em 23% e 35% na comparação com os casos intermediários. No entanto, ao comparar os casos mais poluídos com os intermediários, notou-se queda de 4% em  $D_m$  e de 9% em CTG, juntamente com queda de 14% em RI. Ao analisar os resultados do teste *t-student*, notou-se que os eventos mais poluídos e intermediários de convecção local não mostraram diferenças significativas estatisticamente em nenhum parâmetro. Ou seja, estes eventos podem ser considerados iguais em termos estatísticos e comparados em conjunto com os eventos mais limpos. Comparando os eventos mais poluídos aos mais limpos, notou-se aumento em RI,  $D_m$  e CTG, no entanto apenas os dois primeiros obtiveram significância estatística no intervalo de 95%. Estes resultados indicam que os efeitos dos aerossóis em sistemas convectivos são mais pronunciados no aumento da taxa de crescimento das gotas do que no aumento de suas concentrações numéricas. Para aprofundar o estudo da relação entre CCN e as chuvas convectivas, estes eventos foram analisados individualmente, incluindo o valor de CAPE associado a cada um na análise. Isto foi feito pois as velocidades ascendentes no interior das nuvens impactam a supersaturação, influenciando a formação de gotas e possivelmente afetam a relação entre os aerossóis e as propriedades das chuvas. Foram encontrados três pares de eventos onde os valores de CAPE foram próximos e as chuvas ocorreram em horários semelhantes. Os valores de CAPE variaram significativamente entre os pares, assim como as taxas de precipitação, e aqui os eventos associados aos maiores valores serão referenciados como os mais intensos, seguidos dos moderados e mais fracos na ordem decrescente de CAPE. Em todos os três pares foi observado aumento significativo da taxa de precipitação, com percentuais de 36% (3,68 para 5,01 mm/h), 229% (5,71 para

18,81 mm/h) e 108% (12,44 para 25,90 mm/h) dos mais fracos para os mais intensos. No entanto, estes resultados não apresentaram significância estatística no intervalo de 95% de confiança, uma vez que há grande variação na taxa de precipitação durante um evento convectivo. Mas o efeito dos aerossóis no favorecimento das chuvas convectivas foi observado nos parâmetros  $D_m$  e CTG. De modo geral, notou-se intensificação da convecção com o aumento de CCN, no entanto de maneira diferente entre os pares de eventos selecionados. No primeiro caso, foi observado forte aumento de CTG (398%) e diminuição de  $D_m$  (24%), enquanto que nos outros o efeito foi oposto (diminuição de 14% em CTG e aumento de 49% em  $D_m$  nos eventos moderados e 48% e 50%, respectivamente, para os eventos mais fracos). Esta diferença foi entendida como resultados das diferenças das intensidades convectivas dos eventos, embora o resultado em CTG dos eventos moderados não tenha obtido significância estatística. Nos eventos mais intensos, as maiores velocidades ascendentes garantem abundância de supersaturação no interior das nuvens e aumentos nas concentrações de CCN são refletidos em aumentos em CTG. Já em eventos menos intensos aumentos nas concentrações de CCN apresentaram tendência de diminuição de CTG, favorecendo, por outro lado, o aparecimento de gotas maiores possivelmente ao intensificarem os processos de coalescência e coalescência. Um exemplo de como esta intensificação poderia ocorrer se dá seguindo a lógica: aumento nas concentrações de CCN favorece aumento nas concentrações de gotas pequenas de nuvens; maior número de gotas nas nuvens aumenta a taxa de coleta por gotas maiores; maior taxa de coleta induz formação de gotas de chuva maiores mas com menores concentrações numéricas.

O estudo dos eventos com padrão Convecção Organizada foi inconclusivo, uma vez que os eventos ocorridos nestes dias apresentaram características tanto estratiformes quanto convectivas. Dadas as diferenças dos efeitos dos aerossóis sobre os eventos convectivos e estratiformes, a análise dos eventos de Convecção Organizada se mostrou impraticável. No entanto, ao analisar dois eventos individuais semelhantes, foi observado que as diferenças nas concentrações de CCN praticamente não surtiram efeitos nas propriedades

físicas destes eventos. Este resultado sugere que os efeitos das variações das concentrações de particulado podem ser irrisórios em sistemas de convecção mais organizada, embora sejam necessários estudos mais extensos e específicos para compreender esta relação.

Os resultados obtidos neste trabalho mostram a complexidade das relações entre particulados e os espectros de gotas de chuva. Embora este trabalho tenha permitido colocar em evidência uma série de processos físicos que governam essa interação, fica claro que o número de eventos é restrito para obter uma população estatística significativa que permita selecionar diversos subconjuntos com propriedades físicas comparáveis. Em 2014 será realizado o experimento GoAmazon, onde serão realizadas diversas medidas tanto *in situ* quanto por meio de instrumentos a bordo de aviões das propriedades dos sistemas precipitantes e dos aerossóis da região. Espera-se que este seja o cenário ideal para que as análises possam levar ao desenvolvimento de parametrizações que aprimorem a descrição da complexa relação entre aerossóis e DSD.



## REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- ALBRECHT, B. A.: Aerosols, Cloud Microphysics, and Fractional Cloudiness, **Science**, 245, 1227–1230, 1989.
- ANDREAE, M. O.; ROSENFELD, D.; P. ARTAXO, P.; COSTA, A. A.; FRANK, G. P.; LONGO, K. M.; SILVA DIAS, M. A. F. Smoking rain clouds over the Amazon. **Science**, v.303, p.1342-1345, 2004.
- ARTAXO, P., OLIVEIRA, P.H., LARA, L.L., PAULIQUEVIS, T.M., RIZZO, L.V., PIRES JUNIOR, C., PAIXÃO, M.A.. Efeitos climáticos de partículas de aerossóis biogênicos e emitidos em queimadas na Amazônia. **Revista Brasileira de Meteorologia**, 21(3):168-189, 2006
- BEARD, K.V.. Terminal velocity and shape of clouds and precipitation drops aloft. **Journal of Atmospheric Science**. 33, 851-864, 1976
- BELLOUIN, B., BOUCHER, O., HAYWOOD, J., AND REDDY, M. S.: Global estimates of aerosol direct radiative forcing from satellite measurements, **Nature**, 438, 1138–1140, 2005. doi:10.1038/nature04348
- FABRY, F., I. ZAWADZKI: Long-term radar observations of the melting layer of precipitation and their interpretation. **J. Atmos. Sci.**, v. 52, p. 838–851, 1995
- FOLTZ, G. R., MCPHADEN, M. J.: Impact of Saharan Dust on Tropical North Atlantic SST\*. **J. Climate**, v. 21, p. 5048–5060, 2008
- GOURLEY, J. J.; CALVERT, C. M.: Automated detection of the bright band using WSR-88D radar data. **Wea. Forecasting**, v. 18, p. 585–599, 2003
- HAYWOOD, J. M.; BOUCHER, O.: Estimates of the direct and indirect radiative forcing due to tropospheric aerosols: a review, **Rev. Geophys.**, v. 38, p. 513–543, 2000.
- Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC): **Climate change-2007**. Fourth Assessment Report, Scientific Basis.
- KANUNGO, T.; MOUNT, D.M.; NETANYAHU, N.S.; PIATKO, C.D.; SILVERMAN, R.; WU, A.Y.: An efficient k-means clustering algorithm: analysis and implementation, **Pattern Analysis and Machine Intelligence, IEEE Transactions on** , v. 24, n. 7, p. 881-892, Jul 2002.  
doi: 10.1109/TPAMI.2002.1017616.  
URL: <http://ieeexplore.ieee.org/stamp/stamp.jsp?tp=&arnumber=1017616&isnumber=21893>

KHAIN, A. P.; ROSENFELD, D.; POKROVSKY, A.: Simulating convective clouds with sustained supercooled liquid water down to -37.5°C using a spectral microphysics model, **Geophys. Res. Lett.**, v. 28, p. 3887-3890, 2001.

KHAIN, A. P.; POKROVSKY, A.; PINSKY, M.; SEIFERT, A.; PHILLIPS, V.: Simulation of effects of atmospheric aerosols on deep turbulent convective using a spectral microphysics mixed-phase cumulus cloud model. Part I: model description and possible applications, **J. Aerosol Sci.**, v. 61, p. 2963-2982, 2004.

KLAASSEN, W.: Radar observations and simulation of the melting layer of precipitation. **Journal of the Atmospheric Sciences**, v. 45, p. 3741-3753, 1988

KÖHLER, K.: The nucleus in and the growth of hygroscopic droplets. **Trans. Faraday Soc.**, v. 32, p. 1152 - 1161, 1936.

LAU, K. M.; WU, H. T.: Warm rain processes over tropical oceans and climate implications, **Geophys. Res. Lett.**, v. 30, 2003. doi: 10.1029/2003GL018567, 2003.

LAU, K. M.; KIM, J. M.: How nature foiled the 2006 hurricane forecasts. **Eos, Transa Trans** v. 88, n. 9, p. 105-107, Febr 2006.

LEVIN, Z.; COTTON, W. R: Aerosol pollution impact on precipitation - a scientific review. **Springer**, 2009. ISBN: 1402086903, 9781402086908.

LIBBRECHT, K. G.: The physics of snow crystals, **Rep. Prog. Phys.**, v. 68, p. 855-895, [doi:10.1088/0034-4885/68/4/R03](https://doi.org/10.1088/0034-4885/68/4/R03).

LOHMANN, U.: Can anthropogenic aerosols decrease the snowfall rate? **J. Atmos. Sci.**, v. 61, p. 2457-2468, 2004.

LOHMANN, U; FEICHTER, J.: Global indirect aerosol effects: a review, **Atmos. Chem. Phys.**, v. 5, p. 715-737, 2005. doi:10.5194/acp-5-715-2005.

MASON, B. J.: The physics of clouds. **Oxford: Clarendon Press**, 1971. 671 p.

MCCORMICK, R.; LUDWIG, J. H.: Climate modification by atmospheric aerosols, **Science**, v. 156, p. 1358–1359, 1967.

MCDONALD, J. E.: The physics of cloud modification. **Advances in Geophysics**, v. 5, p. 223-303, 1958.

MCFIGGANS, G.; ARTAXO, P.; BALTENSPERGER, U.; COE, H.; FACCHINI, M. C.; FEINGOLD, G.; FUZZI, S.; Gysel, M.; LAAKSONEN, A.; LOHMANN, U.; MENTEL, T. F.; MURPHY, D. M.; O'DOWD, C. D.; SNIDER, J. R.;

WEINGARTNER, E.: The effect of physical and chemical aerosol properties on warm cloud droplet activation. **Atmos. Chem. Phys**, v. 6, p. 2593–2649, 2006.

MENON, S.: Current uncertainties in assessing aerosol effects on climate. **Annu. Rev. Environ. Resour.**, v. 29, p. 1-30, 2004.

MIRANDA, R. M.; ANDRADE, F. M.; FORNARO, A.; ASTOLFO, R.; ANDRE, P. A.; SALDIVA, P.: Urbana air pollution: a representative survey of PM<sub>2.5</sub> mass concentrations in six Brazilian cities. **Air Qual Atmos Health**, v. 5, p. 63-77, 2012.

NOBER, F. J.; GRAF, H.-F.; ROSENFELD, D.: Sensitivity of the global circulation to the suppression of precipitation by anthropogenic aerosols, **Global Planetary Change**, v. 37, p. 57-80, 2003.

PETTERS, M. D.; KREIDENWEIS, S. M.: A single parameter representation of hygroscopic growth and cloud condensation nucleus activity, **Atmos. Chem. Phys.**, v. 7, p. 1961–1971, 2007.

PRUPPACHER, H.R.; KLETT, E. J. D.: Microphysics of clouds and precipitation, **Boston: D. Reidel Publishing Company**, 1980. 714 p.

ROGERS, R.R.; YAU, M.K: A short course in cloud physics. 3 ed., **Butterworth-Heinemann**, 1989. 308p.

ROSE, D.; NOWAK, A.; ACHTERT, P.; WIEDENSOHLER, A.; HU, M.; SHAO, M.; ZHANG, Y.; ANDREAE, M. O.; PÖSCHL, U.: Cloud condensation nuclei in polluted air and biomass burning smoke near the mega-city Guangzhou, China – Part 1: Size-resolved measurements and implications for the modeling of aerosol particle hygroscopicity and CCN activity. **Atmos. Chem. Phys. Discuss.**, v. 8, p. 17343-17392, 2008.

ROSENFELD, D.; WOODLEY, W. L.: Deep convective clouds with sustained supercooled liquid water down to -37.5°C. **Nature**, v. 405, p. 440-442, 2000.

\_\_\_\_\_: Suppression of rain and snow by urban and industrial air pollution, **Science**, v. 287, p. 1793-1796, 2000.

SEIFERT, A.; BEHENG, K. D.: A two-moment cloud microphysics parameterization for mixed-phase clouds. Part II: Maritime vs. continental deep convective storms. **Meteor. And Atmos. Phys.**, 2005. In press

SEINFELD, J. H.; PANDIS, S. N.: Atmospheric chemistry and physics - from air pollution to climate change. 2 ed. **John Wiley & Sons**, 2006. Disponível em: [http://www.knovel.com/web/portal/browse/display?EXT\\_KNOVEL\\_DISPLAY\\_bookid=2126&VerticalID=0](http://www.knovel.com/web/portal/browse/display?EXT_KNOVEL_DISPLAY_bookid=2126&VerticalID=0)

SWAP, R.; GARSTANG, M.; GRECO, S.; TALBOT, R.; KÅLLBERG, P.: Saharan dust in the Amazon Basin. **Tellus B**, v. 44, p. 133–149, 1992. doi: 10.1034/j.1600-0889.1992.t01-1-00005.x.

TOKAY, A.; SHORT, D. A.: Evidence from tropical raindrop spectra of the origin of rain from stratiform versus convective clouds. **J. Appl. Meteor.**, v. 35, p. 355–371, 1996.

TOKAY, A.; KRUGER, A.; KRAJEWSKI, W.: Comparison of drop-size distribution measurements by impact and optical disdrometers. **J. Appl. Meteorol.**, v. 40, p. 2083 – 2097, 2001.

TWOMEY, S. A.: The nuclei of natural cloud formation. Part II: the supersaturation in natural clouds and the variation of cloud droplet concentrations. **Geofis. Pure Appl.**, v. 43, p. 227-242, 1959.

\_\_\_\_\_: Pollution and planetary albedo. **Atmos. Environ.**, v. 8, p. 1251–1256, 1974.

WALLACE, J. M.; HOBBS, P. V.: Atmospheric science: an introductory survey. 2 ed. Academic Press, Elsevier Inc., 483 p. **International Geophysics Series**.

WARNER, J.: A reduction of rain associated with smoke from sugarcane fires—an inadvertent weather modification. **J. Appl. Meteorol.**, v. 7, p. 247–251, 1968.

WHITBY, K. T.; CANTRELL, B.: Pine particles. In: INTERNATIONAL CONFERENCE ON ENVIRONMENTAL SENSING AND ASSESSMENT, 1976, Las Vegas, NV. Institute of Electrical and Electronic Engineers.

YAMASOE, M. A.; ARTAXO, P.; MIGUEL, A. H.; ALLEN, A. G.: Chemical composition of aerosol particles from direct emissions of biomass burning in the Amazon Basin: water-soluble species and trace elements. **Atmospheric Environment**, v.34, p.1641-1653, 2000.

YU, H.; DICKINSON, R. E.; CHIN, M.; KAUFMAN, Y. J.; ZHOU, M.; ZHOU, L.; TIAN, Y.; DUBOVIK, O.; HOLBEN, B. N.: The direct radiative effect of aerosols as determined from a combination of MODIS retrievals and GOCART simulations. **J. Geophys. Res.**, v. 109, 2004. D03206, doi:10.1029/2003JD003914.

YU, H.; KAUFMAN, Y. J.; CHIN, M.; FEINGOLD, G.; REMER, L. A.; ANDERSON, T. L.; BALKANSKI, Y.; BELLOUIN, N.; BOUCHER, O.; CHRISTOPHER, S.; DECOLA, P.; KAHN, R.; KOCH, D.; LOEB, N.; REDDY, M. S.; SCHULZ, M.; TAKEMURA, T.; ZHOU, M.: A review of measurement-based

assessments of the aerosol direct radiative effect and forcing. **Atmos. Chem. Phys.**, v. 6, p. 613–666, 2006.

ZHANG, J.; LOHMANN, U.; SITER, P.: A microphysical parameterization for convective clouds in the ECHAM5 climate model: 1. Single column results evaluated at the Oklahoma ARM site. **J. Geophys. Res.**, v. 110, 2005. D15S01, doi:10.1029/2005JD005923.

ZHU, Y.; HINDS, W. C.; KIM, S.; SHEN, S.; SIOUTAS, C.: Study of ultrafine particles near a major highway with heavy-duty diesel traffic. **Atmos. Environ.**, v. 36, p. 4323-4335, 2002.