



Universidade de São Paulo
Pós-Graduação em Meteorologia
Instituto de Astronomia, Geofísica e Ciências Atmosféricas
Departamento de Ciências Atmosféricas

MARIANA PALAGANO RAMALHO SILVA

Orientador: Prof. Dr. Fábio Luiz Teixeira Gonçalves

Modelagem numérica dos processos de remoção úmida de poluentes atmosféricos: estudo de caso para a região amazônica (Rondônia)

São Paulo

2006

Livros Grátis

<http://www.livrosgratis.com.br>

Milhares de livros grátis para download.

MARIANA PALAGANO RAMALHO SILVA

Modelagem numérica dos processos de remoção úmida de poluentes atmosféricos: estudo de caso para a região amazônica (Rondônia)

Dissertação desenvolvida como parte dos requisitos para a obtenção do Título de Mestre em Meteorologia junto ao Departamento de Ciências Atmosféricas do Instituto de Astronomia, Geofísica e Ciências Atmosféricas da Universidade de São Paulo.

Orientador: Prof. Dr. Fábio Luiz Teixeira Gonçalves

São Paulo

2006

AGRADECIMENTOS

Ao meu orientador, Professor Fábio L. T. Gonçalves por toda a paciência, confiança e dedicação durante a realização deste trabalho.

A todos os professores e funcionários do DCA/USP por todo apoio e incentivo.

A todos os amigos (das mais diversas partes do Brasil) que conquistei em São Paulo durante esses dois anos de mestrado, sem os quais não teria conseguido chegar ao fim. Em especial, agradeço ao quarteto, Maria Cristina, Ricardo, Jônatan e Igor, amigos especiais que enfrentaram comigo todas as dificuldades (e não foram poucas) que apareceram durante o percurso, e tornaram-se verdadeiros irmãos.

Agradeço a todos os meus amigos cariocas, em especial, Chica, Márcia, Dani e Anne pela amizade, mesmo que à distância.

Agradeço ao Jorge Alberto pelo carinho, paciência e apoio nas horas de desespero.

Agradeço ao Ricardo Marcelo da Silva, por tudo! Sempre!

Agradeço aos meus pais pelo carinho e apoio incondicional em todas as minhas decisões.

Ao CNPQ, pelo apoio financeiro.

RESUMO

Os processos de remoção de espécies químicas da atmosfera têm sido estudados atualmente utilizando modelos numéricos, na tentativa de compreender melhor, os processos de transferências de gases e material particulado (sejam elas naturais ou antropogênicas) intra-reservatórios na atmosfera e seus efeitos na dinâmica do tempo e clima. Neste estudo, foi utilizado o “*Regional Atmospheric Modeling System*” (RAMS) para simular a estrutura vertical das nuvens que se desenvolvem na região amazônica, em conjunto ao modelo de remoção B. V. 2, para os processos de remoção úmida que ocorrem tanto dentro quanto abaixo da nuvem, além das condições atmosféricas locais da região da Bacia Amazônica para, assim, simular a transferência das espécies químicas da atmosfera para a hidrosfera dentro do escopo do projeto “*Large-Scale Biosphere Atmosphere Experiment in Amazonia*” (LBA). Dentro deste projeto, foram realizadas campanhas intensivas de medições, como a LBA/DRY-TO-WET e LBA/SMOCC (setembro a novembro de 2002) na região de Rondônia. No período das campanhas, foram realizadas medições das concentrações dos gases amônia, ácido nítrico e dióxido de enxofre, além das espécies inorgânicas solúveis em água, como amônio, nitrato e sulfato, entre outros. Estas concentrações de gases e partículas, bem como os parâmetros meteorológicos obtidos durante as campanhas, realizadas durante o período de transição entre as estações seca e chuvosa na região, foram utilizados como dados de entrada para ambos os modelos, onde foram escolhidos alguns eventos específicos. Com intuito de melhor representar o espectro de gotículas de nuvens no modelo de remoção, foram utilizadas a função de distribuição

de Levine & Schwartz, 1982 e funções gama ajustadas aos dados observados em distribuição de gotículas de nuvem obtidas em vôos efetuados durante o experimento. Conseqüentemente, este trabalho visou à simulação da concentração na água de chuva de três espécies químicas (SO_4^{2-} , NO_3^- e NH_4^+) removidas da atmosfera pelo evento de precipitação, comparando-as às composições químicas da água de chuva observadas experimentalmente, em dois eventos selecionados (9 e 10 de outubro de 2002). Simulações atmosféricas com o RAMS apresentaram resultados bastante satisfatórios conseguindo representar aspectos microfísicos das nuvens que se desenvolvem na região amazônica com bastante fidelidade. Os resultados da modelagem dos processos de remoção mostraram uma boa concordância com os observados, principalmente para o sulfato (que em alguns casos a quantidade encontrada na água de chuva pela simulação foi 97% da observada) em ambos os eventos, quando a altura da nuvem foi considerada mais realista para região (16 km). Além disso, observou-se que o espectro de gotículas de nuvem utilizado foi um parâmetro importante nos resultados. Os resultados mostraram ainda, uma predominância dos processos que ocorrem dentro da nuvem, sendo estes responsáveis por cerca de 80% a 97% da concentração da espécie química encontrada na água de chuva, corroborando a literatura. Com isso, ficou evidente a complexidade das interações e transferências entre os reservatórios atmosfera / hidrosfera através dos processos de remoção de poluentes, ressaltando assim, a importância dos estudos sobre este assunto.

ABSTRACT

The scavenging processes of chemical species have been studied using numerical modeling in order to understand the gases and particulate matter intra-reservoir transferences (natural or anthropogenic) which affect weather and climate. In this study “*Regional Atmospheric Modeling System*” (RAMS) model was used in turn to simulate cloud vertical structure formed over Amazonian area working together to B.V.2 scavenging model. The last model was used to simulate the in- and below-cloud scavenging processes, besides the local atmospheric conditions within the “*Large-Scale Biosphere Atmosphere Experiment in Amazonia*” (LBA) Project. In this Project, there were evaluated many measurements of LBA/DRY-TO-WET and LBA/SMOCC (September to November) Campaigns at Rondonia State. During the Campaigns, ammonia, nitric acid and sulfur dioxide gases were evaluated and their respective particulate matter, ammonium, nitrate and sulfate, among others, as well as rainwater chemistry. These concentrations and meteorological parameters were also obtained, during the transition from dry to wet season, and used as input data to the both modeling, where some events were chosen. With the intention of modeling improvement, cloud droplet spectra were used from Levine & Schwartz, 1982 and gamma functions, according to each case and based on the droplet distribution obtained from flight collected data during the field Campaign. Consequently, this work simulated the rainwater concentrations of three chemical species (SO_4^{2-} , NO_3^- e NH_4^+) scavenged from atmosphere by the precipitation event and compared to the observed data of two selected events (9 and 10 October 2002). RAMS atmospheric simulations presented

satisfactory results which showed detailed cloud microphysics processes of Amazonian region. The modeling results show good agreement of observed data, mainly to sulfate, reaching 97% of the observed sulfate for both events, when the cloud height was considered more realistic for the region (16 km). Besides, the cloud droplet spectra were an important parameter to the modeling. The results also showed that the in-cloud process is responsible by 80% to 97% of the chemical species found in rainwater. Additionally, it was clear that the complexity of the interaction and intra-reservoir transferences through the scavenging processes and their importance.

LISTA DE FIGURAS

Figura 2-1 Modelo conceitual dos processos de remoção úmida. Adaptada de Seinfeld & Pandis (1998).	10
Figura 3-1 Localização das estações de dados do Projeto LBA/DRY-TO-WET, onde a FNS pode ser observada na indicação em vermelho acima do Radar. Fonte: MASTER/LBA	34
Figura 3-2 Concentração ($\mu\text{eq/L}$) de nitrato, sulfato e amônia extraídos da água de chuva em Rondônia de 12 de setembro de 2002 a 14 de novembro de 2002 durante a campanha LBA – SMOCC.	37
Figura 3-3 Razão de mistura em partes por bilhão (ppb) de ácido nítrico, dióxido de enxofre e amônia coletados da atmosfera durante o período da campanha LBA – SMOCC.	39
Figura 3-4 Razão de mistura em partes por bilhão (ppb) de nitrato, sulfato e amônio coletados da atmosfera durante o período da campanha LBA – SMOCC.	39
Figura 3-5 Localização espacial das 4 grades utilizadas nas simulações atmosféricas com o modelo RAMS: (a) aninhamento entre as grades de 64 Km e 16 Km de resolução espacial, (b) aninhamento entre as grades de 16 Km e 4 Km de resolução espacial e (c) aninhamento entre as grades de 4 Km e 1 Km de resolução espacial.	44

Figura 3-6 Distribuição de massa dos aerossóis segundo a distribuição proposta por Whitby (1978).....	47
Figura 3-7 Ajuste da função gama com parâmetro de forma 5 ao espectro de gotículas de nuvem observado, no sítio experimental de FNS para o vôo ocorrido no dia 09/10/2002.....	55
Figura 3-8 Representação do espectro de gotículas de nuvem através de uma função gama com parâmetro de forma 5 e a função exponencial de Levine & Schwartz (1982).....	55
Figura 4-1 Razão de mistura de água líquida e gelo (g/kg) em 2,9 Km de altura simulada pelo modelo para o dia 10/10/2002 às 19:00 h UTC. A cruz laranja no campo simulado pelo modelo representa a localização do sítio experimental de FNS.	59
Figura 4-2 Imagem CAPPI de radar para a região de Rondônia para o dia 10/10/2002 às 19:00 h UTC. Fonte: MASTER/LBA.....	60
Figura 4-3 Razão de mistura de água de chuva (g/Kg) para as 20:00 h UTC (grade 3)	61
Figura 4-4 Perfil vertical de razão de mistura de água de nuvem para lat =11,4° S e lon = 61,8° W às 20h UTC (g/kg).....	62
Figura 4-5 Perfis verticais de conteúdo de água líquida de nuvem (g/cm ³) modelado para o dia 10/10/2002 para lat=11,4° S e lon= 61,8° W e observado através do vôo sobre o sítio de FNS.	64

Figura 4-6	Imagens CAPPI de radar para a região de Rondônia, dia 10/10/2002, nos horários de (a) 19:00 h UTC, (b) 19:10 h UTC, (c) 19:20 h UTC e (d) 23:22 h UTC. Fonte: MASTER/LBA.	67
Figura 4-7	Razão de mistura de água líquida e gelo (g/kg) em 2,9 Km de altura simulada pelo modelo para o dia 10/10/2002 nos horários de (a) 18:00 h UTC, (b) 19:00 h UTC, (c) 21:00 h UTC e (d) 23:00 h UTC.	68
Figura 4-8	Quantidade de precipitação simulada pelo RAMS em 1 hora (mm) para as 23:00 h UTC do dia 10/10/2002.	69
Figura 4-9	Perfil vertical conteúdo de água líquida de nuvem para a FNS às 23:00 h UTC (g/cm ³).	70
Figura 4-10	Imagens de satélite para a região de Rondônia no dia 10/10/2002 para os horários de (a) 19:15 h UTC, (b) 20:15 h UTC, (c) 20:45 h UTC, (d) 21:15 h UTC, (e) 21:45 h UTC e (f) 23:15 h UTC. Fonte: MASTER/LBA.	73
Figura 4-11	Razão de mistura de água líquida e gelo (g/kg) em 2,9 Km de altura simulada pelo modelo para o dia 09/10/2002 nos horários de (a) 20:00 h UTC, (b) 21:00 h UTC e (c) 22:00 h UTC.	74
Figura 4-12	Quantidade de precipitação simulada pelo RAMS em 1 hora (mm) para os horários de (a) 20:00 h UTC, (b) 21:00 h UTC, (c) 22:00 h UTC e (d) 23:00 h UTC do dia 09/10/2002.	75
Figura 4-13	Evolução temporal do perfil vertical de razão de mistura de água líquida de nuvem e gelo para o ponto de LAT: 10,7° S e LON: 62,2° W (g/kg).	76

Figura 4-14 Perfil vertical conteúdo de água líquida de nuvem para o ponto de lat: 10,7° S e lon 62,2° W às 20:00 h UTC (g/cm ³).	77
Figura 4-15 Perfis verticais das concentrações de SO ₂ , SO ₄ ²⁻ , HNO ₃ e NO ₃ ⁻ iniciais para dia 10/10/2002 utilizados nas modelagens.	80
Figura 4-16 Comparação dos resultados obtidos pelo modelo de remoção para cada etapa (nucleação de gotas, processos dentro da nuvem e abaixo dela) utilizando representação do espectro de gotículas de nuvem pela função gama com parâmetro de forma 5 e pela função exponencial proposta por Levine & Schwartz (1982) para os dois horários selecionados para estudo: 20:00 h UTC e 23:00 h UTC, com a concentração total de sulfato observada na água de chuva.	83
Figura 4-17 Comparação dos resultados obtidos pelo modelo de remoção para os horários de 20:00 h UTC e 23:00 h UTC com a concentração total de sulfato encontrada na água de chuva, utilizando a quantidade de precipitação observada no sítio experimental da FNS.	85
Figura 4-18 Perfis verticais de refletividade do radar médios para as nuvens que ocorreram durante o período de transição entre as estações seca e chuvosa na região amazônica, para eventos que duraram entre 30 e 60 minutos, 60 a 120 minutos e acima de 120 minutos.....	86
Figura 4-19 Comparação dos resultados obtidos pelo modelo de remoção para os horários de 20:00 h UTC e 23:00 h UTC com a concentração total de sulfato encontrada na água de chuva, utilizando a quantidade de	

precipitação simulada pelo RAMS e com extensão vertical da nuvem observada.	87
Figura 4-20 Comparação dos resultados obtidos pelo modelo de remoção para os horários de 20:00 h UTC e 23:00 h UTC com a concentração total de sulfato encontrada na água de chuva, utilizando a quantidade de precipitação e extensão vertical da nuvem observadas.....	88
Figura 4-21 Comparação dos resultados obtidos pelo modelo de remoção para o NO_3^- e HNO_3 utilizando as condições iniciais simuladas pelo modelo atmosférico RAMS (2 horários selecionados para estudo) para evento do dia 10/10/2002.	93
Figura 4-22 Comparação dos resultados obtidos pelo modelo de remoção para o NO_3^- e HNO_3 para os horários de 20:00 h UTC e 23:00 h UTC com a concentração total de nitrato observada na água de chuva, utilizando a quantidade de precipitação observada na FNS.....	94
Figura 4-23 Comparação dos resultados obtidos pelo modelo de remoção para os horários de 20:00 h UTC e 23:00 h UTC com a concentração total de nitrato encontrada na água de chuva, utilizando a quantidade de precipitação simulada pelo RAMS e com extensão vertical da nuvem observada.	95
Figura 4-24 Comparação dos resultados obtidos pelo modelo de remoção para os horários de 20:00 h UTC e 23:00 h UTC com a concentração total de	

nitrato encontrada na água de chuva, utilizando a quantidade de precipitação e extensão vertical da nuvem observadas.....	96
Figura 4-25 Evolução temporal da concentração de dióxido de enxofre durante o período das campanhas LBA-DRY-TO-WET e LBA-SMOCC.	100
Figura 4-26 Ampliação da evolução temporal da concentração de SO ₂ para o período de interesse.....	100
Figura 4-27 Perfis verticais das concentrações de nitrato, ácido nítrico, amônio e amônia iniciais para dia 09/10/2002 utilizados nas modelagens da remoção.	102
Figura 4-28 Perfis verticais das concentrações de SO ₂ (estimado através da média móvel e utilizando o ponto imediatamente antes do evento) e SO ₄ ²⁻ iniciais para dia 09/10/2002 utilizados nas modelagens de remoção.	103
Figura 4-29 Comparação dos resultados obtidos pelo modelo de remoção para o horário de 20:00 h UTC utilizando as duas metodologias de estimativa do dióxido de enxofre, com a concentração de sulfato encontrada na água de chuva observada, utilizando a quantidade de precipitação simulada pelo RAMS.	104
Figura 4-30 Comparação dos resultados obtidos pelo modelo de remoção para o horário de 20:00 h UTC utilizando as duas metodologias para a estimativa do SO ₂ com a concentração total de sulfato encontrada na água de chuva, utilizando a quantidade de precipitação simulada pelo RAMS e com extensão vertical da nuvem observada.....	106

Figura 4-31 Comparação dos resultados obtidos pelo modelo de remoção para o horário de 20:00 h UTC utilizando as duas metodologias para a estimativa do SO ₂ com a concentração total de sulfato encontrada na água de chuva, utilizando a quantidade de precipitação e extensão vertical da nuvem observadas.	107
Figura 4-32 Comparação dos resultados para a remoção do NO ₃ ⁻ e HNO ₃ utilizando a precipitação observada e a simulada pelo RAMS para o evento do dia 09/10/2002.	110
Figura 4-33 Comparação dos resultados para a remoção do NO ₃ ⁻ e HNO ₃ utilizando a extensão vertical da nuvem observada (14 Km) e precipitações observada e simulada pelo RAMS, para evento do dia 09/10/2002.	111
Figura 4-34 Comparação dos resultados para a remoção do NH ₄ ⁺ e NH ₃ utilizando a precipitação observada e a simulada pelo RAMS para o evento do dia 09/10/2002.	114
Figura 4-35 Comparação dos resultados para a remoção do NH ₄ ⁺ e NH ₃ utilizando a extensão vertical da nuvem observada (14 Km) e precipitações observada e simulada pelo RAMS, para evento do dia 09/10/2002.	115

LISTA DE TABELAS

Tabela 3-1	Resumo das características gerais das simulações atmosféricas para os eventos selecionados.....	43
Tabela 4-1	Variáveis de entrada para o modelo de remoção, extraídas da grade 3 (com 4 Km de resolução espacial) da “Simulação 1” com o RAMS, para o evento do dia 10/10/2002, às 20:00 h UTC. Base da nuvem à 1856 m....	64
Tabela 4-2	Variáveis de entrada para o modelo de remoção extraídas da grade de 1 Km de resolução da “Simulação 2” para o evento do dia 10/10/2002 às 23:00 h UTC. Base da nuvem à 2325,2 m.	70
Tabela 4-3	Variáveis de entrada para o modelo de remoção extraídas da grade de 1 Km de resolução da simulação atmosférica para evento do dia 09/10/2002 às 20:00 h UTC. Base da nuvem à 1856 m.....	77
Tabela 4-4	Concentrações iniciais médias dos poluentes na camada entre a superfície e a base da nuvem utilizadas como dados de entrada do modelo de remoção para evento do dia 10/10/2002	79
Tabela 4-5	Concentrações médias dos poluentes na camada entre a base e o topo da nuvem utilizadas como dados de entrada para evento do dia 10/10/2002.	80
Tabela 4-6	Resumo dos resultados das simulações realizadas para a remoção do sulfato e do dióxido de enxofre, para o dia 10/10/2002, que utilizaram a	

	precipitação simulada pelo RAMS como dado de entrada, em concentração de sulfato encontrada na água de chuva ($\mu\text{g/L}$).....	90
Tabela 4-7	Resumo dos resultados das simulações realizadas para a remoção do sulfato e do dióxido de enxofre, para o dia 10/10/2002, que utilizaram a precipitação simulada pelo RAMS como dado de entrada em porcentagem de contribuição de cada etapa do processo de remoção (nucleação de gotas, dentro da nuvem e abaixo da nuvem) (%).	90
Tabela 4-8	Resumo dos resultados das simulações realizadas para a remoção do sulfato e do dióxido de enxofre, para o dia 10/10/2002, que utilizaram a precipitação observada como dado de entrada, em concentração de sulfato encontrada na água de chuva ($\mu\text{g/L}$).....	91
Tabela 4-9	Resumo dos resultados das simulações realizadas para a remoção do sulfato e do dióxido de enxofre, para o dia 10/10/2002, que utilizaram a precipitação observada como dado de entrada, em porcentagem de contribuição de cada etapa do processo de remoção (nucleação de gotas, dentro da nuvem e abaixo da nuvem) (%).	91
Tabela 4-10	Resumo dos resultados das simulações realizadas para a remoção do nitrato e ácido nítrico, para o dia 10/10/2002, em concentração de nitrato encontrada na água de chuva ($\mu\text{g/L}$).	97
Tabela 4-11	Resumo dos resultados das simulações realizadas para a remoção do nitrato e do ácido nítrico, para o dia 10/10/2002, em porcentagem de	

contribuição de cada etapa do processo de remoção (nucleação de gotas, dentro da nuvem e abaixo da nuvem) (%).....	98
Tabela 4-12 Concentrações iniciais médias dos poluentes na camada entre a superfície e a base da nuvem utilizadas como dados de entrada do modelo de remoção para evento do dia 09/10/2002	99
Tabela 4-13 Concentrações dos poluentes médias na camada entre a base e o topo da nuvem para evento do dia 09/10/2002.....	101
Tabela 4-14 Resumo dos resultados das simulações realizadas para a remoção do sulfato e do dióxido de enxofre, para o dia 09/10/2002, em concentração de sulfato encontrado na água de chuva (µg/L).	108
Tabela 4-15 Resumo dos resultados das simulações realizadas para a remoção do sulfato e do dióxido de enxofre, para o dia 09/10/2002, em porcentagem de contribuição de cada etapa do processo de remoção (nucleação de gotas, dentro da nuvem e abaixo da nuvem) (%).....	108
Tabela 4-16 Resumo dos resultados das simulações realizadas para a remoção do nitrato e do ácido nítrico, para o dia 09/10/2002, em concentração de nitrato encontrada na água de chuva (µg/L).	112
Tabela 4-17 Resumo dos resultados das simulações realizadas para a remoção do nitrato e do ácido nítrico, para o dia 09/10/2002, em porcentagem de contribuição de cada etapa do processo de remoção (nucleação de gotas, abaixo da nuvem e dentro da nuvem) (%).	112

Tabela 4-18	Resumo dos resultados das simulações realizadas para a remoção do amônio e da amônia, para o evento do dia 09/10/2002, em concentração de amônio encontrada na água de chuva ($\mu\text{g/L}$).....	116
Tabela 4-19	Resumo dos resultados das simulações realizadas para a remoção do amônio e da amônia, para o evento do dia 09/10/2002, em porcentagem de contribuição de cada etapa do processo de remoção (nucleação de gotas, dentro da nuvem e abaixo da nuvem) (%).....	116

SUMÁRIO

1 INTRODUÇÃO	1
2 PROCESSOS DE REMOÇÃO ATMOSFÉRICA.....	10
2.1 Remoção úmida do material particulado.....	12
2.1.1 Remoção por nucleação do material particulado em nuvens.....	13
2.1.2 Remoção do aerossol intersticial por gotículas de nuvem	16
2.1.3 Remoção do material particulado por gotículas de nuvem e gotas de chuva.....	18
2.1.3.1 O coeficiente de remoção do material particulado	20
2.1.3.2 Eficiência de coleta (E) (gota de chuva / aerossol)	22
2.2 Remoção dos gases por gotículas de nuvem e gotas de chuva.....	24
2.2.1 O equilíbrio entre as fases aquosa e gasosa	25
2.2.2 Transferência de massa e de gases para gotículas de nuvem e gotas de chuva.....	26
2.2.2.1 O coeficiente de remoção dos gases	28
3 MATERIAIS E MÉTODOS	32
3.1 Campanhas experimentais	32
3.1.1 LBA - DRY TO WET e LBA– SMOCC.....	32

3.1.2 Sítio experimental.....	33
3.2 Dados utilizados	35
3.3 Eventos e poluentes estudados.....	36
3.4 Modelagem dos processos de remoção	40
3.4.1 Modelagem dos processos de remoção abaixo da nuvem	41
3.4.2 Modelagem dos processos de remoção dentro da nuvem.....	49
3.4.3 Integração da remoção dentro com a remoção abaixo da nuvem	57
4 RESULTADOS E DISCUSSÕES.....	58
4.1 Resultados das simulações atmosféricas	58
4.1.1 Evento dia 10/10/2002	58
4.1.2 Evento dia 09/10/2002	71
4.2 Resultados do modelo de remoção B. V. 2.....	78
4.2.1 Simulações realizadas	78
4.2.2 Evento dia 10/10/2002	79
4.2.2.1 Dados de entrada.....	79
4.2.2.2 Sulfato particulado e dióxido de enxofre gás.....	81
4.2.2.3 Nitrato particulado e ácido nítrico gás	92
4.2.3 Evento dia 09/10/2002	98

4.2.3.1	Dados de entrada.....	98
4.2.3.2	Sulfato particulado e dióxido de enxofre gás.....	103
4.2.3.3	Nitrato particulado e ácido nítrico gás	109
4.2.3.4	Amônio particulado e amônia gás	113
5	CONCLUSÕES	117
6	REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	123

1 INTRODUÇÃO

Nos últimos anos, principalmente após o período da revolução industrial, a proliferação desta atividade em todo o globo proporcionou mudanças bruscas no meio ambiente, principalmente devido a grande emissão de substâncias para a atmosfera, gerando assim, problemas ambientais graves como a chuva ácida, por exemplo. Em regiões remotas, como as antes tomadas por florestas, por exemplo, as queimadas (naturais e antropogênicas) também formam uma importante fonte de gases e material particulado (MP) para a atmosfera (Yamasoe *et al.* (2000)). Estas substâncias trazem diversas conseqüências sobre a dinâmica do tempo e clima, como o efeito estufa e alteração nos padrões do regime de precipitação. Observações diretas têm mostrado diferenças entre o padrão de formação de nuvens em regiões onde a cobertura vegetal já foi substituída e regiões onde esta se mantém intacta (Cutrim *et al.* (1995)).

Por outro lado, há evidências de que a formação de nuvens sobre a floresta amazônica possui certas características que a diferenciam das demais florestas tropicais do planeta, apresentando em determinados momentos aspectos presentes nos sistemas convectivos que se desenvolvem sobre os oceanos e, em outros momentos, aspectos característicos de regimes continentais (Mohr *et al.* (1999); Silva Dias *et al.* (2002)). É fundamental então, que se conheça o papel da floresta na formação das nuvens, até porque, estas, juntamente com a precipitação, promovem o mais eficiente mecanismo de remoção de poluentes da atmosfera.

Os poluentes podem ser encontrados na atmosfera, nos três estados fundamentais da matéria: sólido, líquido e gasoso, sendo os dois primeiros

denominados aerossol atmosférico e o último, gases traços. O termo aerossol é definido por Seinfeld & Pandis (1998) como qualquer substância, exceto a água pura, existente, seja no estado líquido ou sólido, na atmosfera sob condições normais, e tendo dimensões microscópicas ou sub-microscópicas, com dimensões maiores que as moleculares (de 2 Å), indo de dezenas de Å até centenas de µm.

Estes poluentes caracterizam-se por sua fonte, mecanismos de transporte mecânico, e suas variações, reações, inter-reações e por seus sumidouros. Com relação a sua origem, os aerossóis podem ser oriundos de fontes naturais, tais como o vento, no solo gerando poeira ou no mar, resultando no spray marinho, entre outros (Albuquerque (2005)). Sua composição e tamanho dependem das fontes de emissão e de processos físico-químicos que ocorrem na atmosfera (Hinds (1982)).

A despeito de todas as possíveis reações desenvolvidas, qualquer elemento químico que tenha sido emitido para a atmosfera deve somente ser removido através de deposição à superfície. A perda de poluentes para a estratosfera é praticamente desprezível em comparação ao total encontrado na troposfera, embora, altamente significativa para alguns gases e partículas.

Os mecanismos de remoção de poluentes na atmosfera (MP e gases) por sua vez, podem ser divididos em dois processos: deposição seca e úmida. A deposição seca é um processo em que gases e MP podem ser retirados da atmosfera através da absorção na superfície do solo, água ou vegetação, na ausência de precipitação. Já a deposição úmida refere-se a um processo natural em que os gases e/ou MP são removidos da atmosfera por hidrometeoros (gotículas de nuvem, gotas de chuva, cristais de gelo, neve, etc) para a superfície.

Do ponto de vista histórico Engelmann (1968), Schroder *et al.* (1989) definiram então, uma remoção úmida que ocorre no interior das nuvens (“*incloud*”, antigo “*rainout*”) por gotículas de nuvem e outra que ocorre entre a base da nuvem e a superfície (“*below-cloud*”, antigo “*washout*”), ambos ocorrendo continuamente durante o evento de precipitação, proporcionando variações na concentração dos poluentes atmosféricos.

Em Hobbs *et al.* (1974), os autores classificam os processos de remoção dos aerossóis por precipitação como um dos mais importantes, pois estes podem agir como núcleo de condensação de nuvem (CCN) e/ou de gelo (IN) além do material gasoso poder ser dissolvido nas gotas de nuvem. Os autores apontam ainda que o processo de remoção de poluentes da atmosfera por hidrometeoros é responsável por 80-90% da “limpeza da atmosfera”.

Segundo Marsh (1978) e Kleinman (1984), no caso da deposição úmida, o aerossol é mais rapidamente removido por processos de remoção no interior das nuvens, como nucleação, do que abaixo dela, por arraste durante a queda das gotas. Levine & Schwartz (1982) observaram ainda que a remoção dos gases por gotículas de nuvem depende dos fluxos destes gases no interior da nuvem, do movimento relativo das mesmas, da condensação e evaporação das gotas, bem como da dissolução e possível re-evaporação do soluto gasoso.

Segundo Pruppacher & Klett (1997), sobre superfícies continentais, os íons predominantes encontrados na água de chuva são NH_4^+ , SO_4^{2-} e NO_3^- , enquanto que sobre o oceano, as espécies predominantes são Na^+ , Cl^- e Mg^{2+} . No entanto, a atmosfera não é composta apenas por material particulado, mas também por diversos

gases considerados como traço. Segundo os mesmos autores, os gases que contribuem para a remoção são aqueles quimicamente reativos, como por exemplo, SO₂, NH₃, HNO₃, CO₂, NO₂, HCl, H₂O₂, O₃ e os aldeídos (formaldeídos). Além disso, estes gases não são removidos apenas por gotas de chuva e gotículas de nuvem, mas também por adsorção em cristais de neve.

Existem na literatura, diversos trabalhos realizados pelo mundo enfatizando os processos de remoção de substâncias da atmosfera através de hidrometeoros. Estes trabalhos utilizam essencialmente, técnicas de análise química de água de chuva, em geral, em amostradores seqüenciais, fazendo assim, a distinção da sua composição e relacionando com as possíveis fontes emissoras (Pruppacher *et al.* (1983), Frank *et al.* (1990), Naik *et al.* (1994)).

Caro *et al.* (2004), trataram da modelagem dos processos de remoção de poluentes por impactação e nucleação, bem como dos outros processos microfísicos em nuvens quentes, utilizando um modelo bidimensional. Neste esquema, foi realizada uma representação quase-espectral da distribuição de partículas, gotas de nuvem e gotas de chuva. Com base nesta representação, foram simuladas a razão de mistura e a concentração final para cada categoria explícita e independentemente, com o objetivo de observar a contribuição de cada uma delas. Testes realizados mostraram grande sensibilidade do modelo às características iniciais do espectro de aerossol, no entanto, mostraram ainda a capacidade do modelo de representar de maneira adequada a remoção destes pelos processos físicos considerados.

Zhang *et al.* (2004) realizaram um estudo da remoção de aerossóis atmosféricos utilizando um modelo de nuvens quentes unidimensional, com detalhamento

microfísico. Os autores sugerem que os processos de remoção abaixo da nuvem estão relacionados diretamente com a concentração e distribuição de tamanho de aerossol, intensidade da precipitação e espectro de gota. Um resultado importante detectado foi que chuva fraca é capaz de remover uma quantidade bem mais significativa de aerossóis (tanto em massa quanto em número), pois a área final da superfície do total de gotas será maior.

No Brasil, alguns trabalhos foram realizados a fim de estudar aspectos físicos relacionados com a deposição úmida de poluentes atmosféricos na região de São Paulo e na região amazônica (Amapá), utilizando o modelo de remoção B. V. 2 (Gonçalves (1997), Gonçalves *et al.* (2000), Gonçalves *et al.* (2002), Nakaema (2001), Ramos (2000)).

Em Gonçalves *et al.* (2000), foi realizada uma modelagem dos processos de remoção de poluentes (sulfato (SO_4^{2-}), nitrato (NO_3^-) e amônio (NH_4^+)) abaixo das nuvens na região paulista de Cubatão, região esta extremamente industrializada e desfavorável à dispersão de poluentes por ser atingida por situações meteorológicas adversas. O modelo unidimensional B. V. 2 utilizado, baseia-se nas equações propostas por Beheng & Herbert (1987) e inclui absorção gasosa e de partículas por difusão Browniana, efeitos foréticos e gravitacional. Os resultados mostram uma boa concordância entre os valores simulados e os dados observados na água de chuva, além da acentuada predominância da remoção ocorrida abaixo da nuvem para os eventos estudados. Os autores observaram ainda a importância da boa representação da distribuição de tamanho das gotas de chuva na física do modelo de remoção.

Nakaema (2001) realizou uma modelagem dos processos de deposição úmida na atmosfera nos meses de inverno na Região Metropolitana de São Paulo (RMSP). Foi utilizado o modelo atmosférico “*Regional Atmospheric Modeling System*” (RAMS) com a finalidade de simular as características atmosféricas dos eventos selecionados dentro e abaixo da nuvem e o modelo unidimensional B. V. 2 para simular a remoção de sulfato abaixo da nuvem. Foram realizados diversos testes utilizando espectros de aerossóis rural e urbano e diferentes métodos de estimativa do perfil vertical do poluente estudado. O autor encontrou resultados bastante coerentes com os encontrados tanto na literatura como em dados experimentais, mostrando um bom desempenho do modelo B. V. 2.

Para a região amazônica (Amapá), Gonçalves *et al.* (2003) simularam numericamente a composição química da água de chuva através da modelagem dos processos de remoção úmida dos poluentes atmosféricos utilizando os modelos RAMS e B. V. 2. Eles encontraram a predominância da remoção que ocorre dentro da nuvem quando comparada aquela que ocorre abaixo da mesma. Além disso, das espécies iônicas estudadas pelos autores, o sulfato foi a que os resultados da modelagem mais se ajustaram aos dados observados durante o experimento ocorrido na região da Serra do Navio, Amapá, entre maio de 1995 e junho de 1997.

A importância dos estudos sobre a Bacia Amazônica deve-se principalmente a suas características peculiares, tais como, grande fonte de umidade devido a sua vegetação abundante, características climáticas diferenciadas, entre outras.

A Bacia Amazônica é marcada por um ciclo anual de precipitação bem definido, com uma curta estação seca, uma longa estação chuvosa e um período de transição

entre elas. A estação seca e o período de transição são marcados pela intensa queima de biomassa, que desempenha um papel importante nos setores sul e leste da bacia, já que neste período observa-se um aumento das concentrações de aerossóis e CCN's em pelo menos uma ordem de grandeza (Williams *et al.* (2002)). Andreae *et al.* (2004) mostraram um grande impacto das partículas pirogênicas nas propriedades microfísicas das nuvens e da precipitação durante a estação seca e no período de transição. Durante este período, determinado por Sapucci *et al.* (2004) através da técnica de ondeletas como sendo o período compreendido entre 05 e 18 de outubro de 2002 e por Trebs *et al.* (2005) como o período entre 07 e 31 de outubro de 2002, foi realizada no sudoeste da Bacia Amazônica, a campanha *Dry-to-Wet* do “*Large Scale Biosphere Atmosphere Experiment in Amazonia*” (LBA) (de setembro a novembro de 2002), com medições intensivas de diversas variáveis meteorológicas, inclusive propriedades microfísicas de nuvens utilizando instrumentos a bordo de aviões (Silva Dias *et al.* (2004)).

Em paralelo a esta campanha, foi realizada também, a campanha “*Large Scale Biosphere Atmosphere Experiment in Amazonia - Smoke, Aerosols, clouds, rainfall and climate*” (LBA-SMOCC) que teve como proposta, detalhar características físicas e químicas dos aerossóis atmosféricos (Andreae *et al.* (2004)), onde medições de razão de mistura de amônia (NH_3), ácido nítrico (HNO_3), ácido nitroso (HONO), dióxido de enxofre (SO_2) e das espécies do aerossol inorgânico solúvel, como amônio (NH_4^+), nitrato (NO_3^-) e sulfato (SO_4^{2-}), foram realizadas (Trebs *et al.* (2004)). A determinação destes íons na água de chuva foi realizada através da técnica de cromatografia iônica (Lara *et al.* (2004)) e um resultado significativo encontrado foi a relevante deposição de

compostos de potássio, nitrogênio e ácidos orgânicos (Gouveia *et al.* (2004)). Segundo Roberts *et al.* (2002), embora estas espécies inorgânicas, principalmente NH_4^+ , Cl^- , NO_3^- , K^+ e SO_4^{2-} , representem apenas uma pequena fração da massa total do aerossol na Bacia (cerca de 10%), eles desempenham um papel fundamental na nucleação e crescimento das gotas, e contribuem também, para alterações nas propriedades ópticas da atmosfera devido a interações com a radiação (Pilinis *et al.* (1995)). Além disso, sabe-se ainda que uma consequência direta do desflorestamento é a alta deposição de compostos de nitrogênio na água de chuva, que se torna equivalente a de regiões altamente industrializadas (Lara *et al.* (2004)).

Dentro do contexto da Bacia Amazônica, suas peculiaridades com respeito a sazonalidade e período de queimada e do projeto LBA, ressalta-se a importância de se estudar os processos físicos de remoção úmida dos poluentes nesta região (Rondônia), através da modelagem numérica.

O objetivo principal deste trabalho então, é através de modelagem computacional, com o auxílio do modelo regional atmosférico RAMS na simulação de parâmetros atmosféricos de entrada para o modelo de remoção, calcular as concentrações das espécies químicas encontradas na água de chuva em Rondônia (SO_4^{2-} , NH_4^+ , NO_3^-) que foram removidas da atmosfera (sendo os gases: SO_2 , NH_3 , HNO_3 e os respectivos particulados: SO_4^{2-} , NH_4^+ , NO_3^-) através de deposição úmida e estudar os processos físicos envolvidos nesta remoção. Além disso, pretende-se fazer uma comparação dos resultados obtidos através das simulações com os dados coletados durante a campanha do LBA-SMOCC. Com isso, pretende-se ainda aprimorar o modelo de remoção de poluentes B. V. 2 para regiões tropicais utilizando funções matemáticas

que representem de maneira adequada os diversos espectros (gotículas de nuvem, gotas de chuva, aerossóis) parametrizados no código do modelo e ainda, avaliar a possibilidade de tornar o método operacional a fim de monitorar as concentrações de poluentes tanto na atmosfera quanto nas águas de chuva continuamente.

2 PROCESSOS DE REMOÇÃO ATMOSFÉRICA

Os processos de remoção de poluentes na atmosfera por hidrometeoros são constituídos por repetidas exposições do MP e gases às gotículas de nuvem ou de chuva, ambas atuando como coletoras das primeiras (Engelmann (1968)). Estes processos podem ser sintetizados na Figura 2-1.

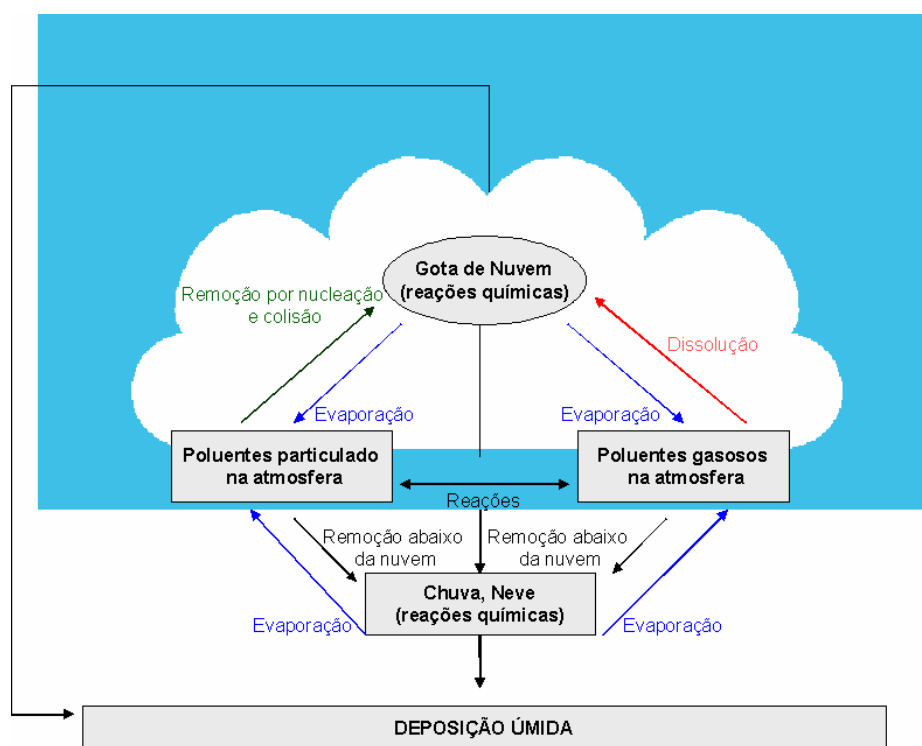


Figura 2-1 Modelo conceitual dos processos de remoção úmida. Adaptada de Seinfeld & Pandis (1998).

A complexidade do estudo dos processos de remoção úmida vem da dificuldade em quantificar as relações entre as concentrações das espécies em suspensão,

condições meteorológicas e taxas de remoção em poucos parâmetros (Seinfeld & Pandis (1998)).

A razão de transferência de um gás solúvel ou partícula, W_i , para o interior de gotas de chuva abaixo da nuvem pode ser aproximada pela equação 2.1 a seguir:

$$\begin{aligned} W_{\text{gas/chuva}} &= \Lambda_{ig} C_{i,\text{gas}} \\ W_{\text{part/chuva}} &= \Lambda_{ip} C_{i,\text{part}} \end{aligned} \quad (2.1)$$

Onde, Λ representa o coeficiente de remoção da espécie i . Os subscritos g e p referem-se aos gases e as partículas respectivamente, e C são as concentrações.

Destas relações e fazendo algumas considerações (não há emissão já que o processo dura pouco tempo (de minutos à algumas horas) e o gás pode ser considerado inerte) podemos derivar o decaimento temporal de níveis de concentração de poluentes (gasosos e particulados) que tomam o seguinte equacionamento (equações 2.2):

$$\begin{aligned} C &= C_0 \exp(-\beta t) \\ C &= C_0 \exp(-\Lambda t) \end{aligned} \quad (2.2)$$

Onde, C e C_0 representam as concentrações finais e iniciais de poluentes (gases e MP) e t é o tempo do evento de precipitação, β e Λ (também encontrados em Seinfeld &

Pandis (1998); Ramos (2000) e Nakaema (2001) como Λ^i e Λ^b) são os coeficientes de remoção de poluentes dentro e abaixo da nuvem, respectivamente, tanto para gases como para MP. A parametrização destes coeficientes é bastante complexa, pois são funções da altura, da difusividade do gás, do tamanho da gotícula de nuvem e da gota de chuva e do espectro do material particulado. Além disso, é necessário considerar diversos processos físicos que ocorrem no interior das nuvens e abaixo delas, como por exemplo, remoção de poluentes por nucleação de gotículas, difusão Browniana, interceptação, impactação inercial, efeitos foréticos e etc. (Seinfeld & Pandis (1998) e Pruppacher & Klett (1997)).

2.1 Remoção úmida do material particulado

A remoção úmida do MP pode ser dividida em remoção por nucleação de gotas, difusão browniana, efeitos turbulentos, efeitos foréticos e captura aerodinâmica.

O processo de nucleação é fundamental na física e química da atmosfera, não apenas na formação de alguns aerossóis (conversão gás - partícula), mas em uma das principais propriedades destes, que é a de atuarem como CCN's e núcleos de congelamento em nuvens. Este processo, em geral ativa uma fração da distribuição de aerossóis na atmosfera e, o resto permanece como aerossol intersticial.

Ocorrendo apenas este processo, se houver evaporação desta nuvem, a distribuição de aerossóis volta à forma original (processo reversível). Porém há uma série de processos adicionais que podem modificar a distribuição, incluindo reações

químicas, colisão entre aerossol intersticial e gotículas de nuvem e coalescência entre gotículas de nuvem. Se houver precipitação, há ainda a interação entre gotas e aerossol ao redor da nuvem.

Trataremos então, primeiramente da remoção por nucleação na seção 2.1.1, seguida da remoção do aerossol intersticial por gotículas de nuvem (seção 2.1.2) e do aerossol por gotículas de nuvem e gotas de chuva (seção 2.1.3).

2.1.1 Remoção por nucleação do material particulado em nuvens

Gotas estáveis são aquelas que excedem um certo valor de raio crítico. Este valor, é determinado pelo balanço entre as taxas de sumidouros e crescimento. Estas taxas dependem da forma em que a nucleação da gotícula ocorre na atmosfera.

No caso da nucleação da água pura, a taxa de crescimento depende da pressão parcial de vapor no ambiente, que determina assim, a taxa à qual as moléculas de água colidem na gotícula, além da taxa de evaporação. Estas taxas dependem ainda da temperatura e tensão superficial da gota.

Quando há equilíbrio entre as taxas de condensação e evaporação, a pressão de vapor é igual à pressão de vapor de saturação de equilíbrio que, na superfície da gota pode ser expressa pela relação de Kelvin (equação 2.3):

$$e_s(r) = e_s(\infty) \exp\left(\frac{2\sigma}{rR_v\rho_l T}\right) \quad (2.3)$$

Onde: $e_s(r)$ representa a pressão de vapor de saturação sobre a gota esférica de água pura e de raio (r), σ representa a tensão superficial da gota, ρ_l é a densidade da água líquida, T é a temperatura do ar, R_v é a constante universal do gás perfeito, $e_s(\infty)$ é a pressão de vapor de saturação sobre uma superfície plana de água pura.

Neste caso, a taxa de crescimento desta gotícula pode ser dada pela diferença entre e e e_s , sendo e a pressão de vapor do ambiente local. Assim, o raio crítico pode ser determinado, já que este é o tamanho da gotícula quando esta se encontra em situação de equilíbrio com o ambiente, ou seja, $e=e_s(r)$ e pode ser matematicamente calculado através da equação 2.4 a seguir:

$$R_c = \frac{2\sigma}{R_v\rho_l T \ln(S)} \quad (2.4)$$

Sendo $S = \frac{e}{e_s(\infty)}$, a razão de saturação.

Com isso, para que uma gotícula se torne estável, seu raio deve exceder R_c . No entanto, no caso da nucleação homogênea, para que isto ocorra, é necessária uma umidade relativa da ordem de 400%, o que praticamente não ocorre na atmosfera (Rogers (1989)).

A presença de um soluto dissolvido na água tende a diminuir a pressão de vapor de equilíbrio sobre uma gota e, nesse caso, a supersaturação necessária para o seu crescimento é bem menor do que para uma gota de água pura do mesmo tamanho. Assim, a taxa de saturação sobre uma gotícula na presença de soluto pode ser escrita de acordo com a equação de Köhler apresentada na equação 2.5.

$$\frac{e}{e_s} = 1 + \frac{a}{r} - \frac{b}{r^3} \quad (2.5)$$

Onde: r é o raio da gotícula, $a = \frac{2\sigma}{\rho_l R_v T}$ e $\frac{a}{r}$ representa o termo de curvatura que expressa o aumento da saturação sobre uma gota comparado à uma superfície plana, $b = \frac{3im_v m_s}{4\pi\rho_l M_s}$ (onde i representa o grau de dissociação iônica, m_v a massa do vapor, m_s a massa de soluto e M_s a massa molecular do soluto) e $\frac{b}{r^3}$ é o termo da solução, que representa o decréscimo da pressão de vapor de saturação da gota devido a presença do soluto.

Em termos do aerossol, discutido acima como soluto, a remoção por nucleação em nuvens refere-se à ativação seguida do crescimento de uma fração da população destes aerossóis para gotículas de nuvem. Sendo $C_{i,0}$ a concentração (Kg/m^3) de uma espécie de aerossol, em céu claro, na base da nuvem e $C_{i,nuv}$ e $C_{i,int}$ as concentrações

na fase aquosa e do aerossol intersticial, a taxa de remoção de massa na nuvem é dada pela equação 2.6.

$$F_i = \frac{C_{i,0} - C_{int}}{C_{i,0}} \quad (2.6)$$

Se não há produção ou remoção de i na nuvem, então, $C_{i,0} = C_{i,int} + C_{i,nuv}$, e a taxa de remoção do número (F_n) pode ser definida como (equação 2.7):

$$F_n = \frac{N_0 - N_{int}}{N_0} \quad (2.7)$$

Onde: N_0 é a concentração em número de aerossol antes da formação da nuvem e N_{int} é a concentração em número de aerossol intersticial, cuja remoção será abordada na próxima seção.

2.1.2 Remoção do aerossol intersticial por gotículas de nuvem

Partículas de aerossol intersticial colidem com gotículas de nuvem e são removidas por estas. Para quantificar a taxa efetiva desta remoção, pode ser utilizada a teoria da coagulação. Se $n(D_p, t)$ é a distribuição em número de aerossol por intervalo

de classe no tempo t e $n_d(D_g, t)$ a distribuição do tamanho da gotícula no tempo t , a taxa de perda de partículas de aerossol por volume de unidade de ar devido à remoção por gotícula de nuvem pode ser descrita pela equação 2.8:

$$-\frac{\partial n(D_p, t)}{\partial t} = n(D_p, t) \int_0^{\infty} K(D_p, d_g) n_d(d_g, t) dD_g \quad (2.8)$$

Onde $K(D_p, d_g)$ é a eficiência de coleta por colisão entre uma partícula de aerossol intersticial (D_p) e uma gota de diâmetro (D_g). Definindo o coeficiente de remoção $\beta(D_p, t)$ para uma população de gotas de acordo com a equação 2.9, temos:

$$\beta(D_p, t) = -\frac{1}{n(D_p, t)} \cdot \frac{\partial n(D_p, t)}{\partial t} = \int_0^{\infty} K(D_p, d_g) n_d(D_g, t) dD_g \quad (2.9)$$

Considerando que β não varia com o tempo, temos a distribuição de número dada pela equação 2.10:

$$n(D_p, t) = n(D_p, 0) \exp(-\beta(D_p) t) \quad (2.10)$$

Supondo que as gotículas de nuvem estão em estado estacionário e que são capturadas por difusão browniana, pode-se estimar o $K(D_p, D_g)$ utilizando dados de tempo de vida tabelados (Seinfeld & Pandis (1998)) e fazendo algumas considerações:

- 1) o conteúdo de água líquida e nuvem pode ser estimado em $0,5 \text{ g/m}^3$;
- 2) todas as partículas possuem diâmetro de $10\mu\text{m}$ e,
- 3) o número total de partículas estimado em $N_d = 955\text{cm}^{-3}$. Assim, podemos expressar $K(D_p, D_g)$ de acordo com a equação 2.11 a seguir:

$$\beta(D_p) = N_d K(D_p, 10\mu\text{m}) \quad (2.11)$$

2.1.3 Remoção do material particulado por gotículas de nuvem e gotas de chuva

De acordo com Pruppacher & Klett (1997), Seinfeld & Pandis (1998) e Volken (1994), as principais forças no sistema gota - partícula responsáveis pela coleta de partícula pela gota precipitante são, resumidamente, os seguintes:

1- **Difusão Browniana:** partículas em suspensão num fluido são constantemente bombardeadas por moléculas deste fluido que estão nas suas vizinhanças. Este constante bombardeamento resulta do movimento aleatório das partículas e é conhecido como movimento Browniano. Este movimento, do ponto de vista

macroscópico pode ser visto como um processo de difusão, cujo equacionamento baseia-se na lei de Fick.

2 – **Efeitos turbulentos**: é a constituição de todos os movimentos caóticos em uma larga escala, tanto espacial como temporal. Interfere no fluxo básico e pode ser descrito somente do ponto de vista estocástico.

3 – **Forças eletrostáticas**: podem influenciar nos processos de remoção de partículas, pois afetam diretamente o movimento das partículas da nuvem se eletricamente carregadas.

4 – **Termoforese**: força que atua contra o gradiente de temperatura para que o fluido permaneça em estado estacionário, impondo assim, uma direção preferencial no movimento devido à difusão Browniana.

5 – **Difusoforese**: ocorre devido a diferenças de concentrações locais dos gases. Gera um movimento contrário ao gradiente de concentração.

6 – **Captura aerodinâmica**: a colisão ocorre quando uma partícula, movendo-se em direção à gota, e devido a sua inércia e dimensões finitas, acaba por se chocar com esta. Esta colisão, também chamada de colisão aerodinâmica pode ser dividida em dois mecanismos distintos, a interceptação e a impactação inercial. A) Interceptação: é definida como a coleta de partículas sem inércia pelas gotas. Nesse caso, a partícula é perfeitamente capaz de seguir as linhas de corrente ao redor da gotícula, mas ao entrar em contato com a superfície desta, passa a ficar incorporada a esta gota, pois a hipótese é baseada na premissa de que a partícula possui tamanho, mas não massa. B) Impactação inercial: hipótese baseada na premissa de que a partícula possui

massa, mas não tamanho, o que faz com que a mesma tenha momento de inércia. Neste caso, a partícula não pode se desvencilhar do choque eminente.

Estes processos são parametrizados nos cálculos dos coeficientes de remoção (Δ e β), através da eficiência de coleta ($E(D_p, D_g)$) para gota de chuva e ($K(D_p, d_g)$) para gotículas de nuvem e sua formulação geral pode ser observada na seção 2.1.3.2.

2.1.3.1 O coeficiente de remoção do material particulado

Uma gota de água líquida ao cair através do ar termina por coletar parte das partículas que encontra no seu caminho, logo, a concentração do poluente na atmosfera dentro da nuvem decresce com o tempo devido à remoção pelas gotículas e gotas.

O número de partículas de diâmetro D_p coletadas no tempo dt é então o produto do volume de colisão e o número de partículas existente ($n(D_g)dD_g$). No entanto, devido ao fluxo aerodinâmico, algumas partículas, ao penetrar nele não colidem com a gota precipitante. A colisão depende de vários fatores, como, tamanhos das gotas e partículas, velocidade terminal de queda de ambas e suas massas. Considerando que a velocidade terminal da gota coletora é muito maior do que a da gota coletada ou partícula, o número de colisões por unidade de tempo entre as partículas e as gotas pode ser expresso pela equação 2.12 mostrada a seguir:

$$\eta_c = \frac{\pi}{4} (D_g + D_p)^2 (V_T(D_p)) E(D_g, D_p) n(D_g) dD_g \quad (2.12)$$

Segundo Seinfeld & Pandis (1998), considerando que os diâmetros das partículas e suas respectivas velocidades terminais são bem menores que as das gotas de chuva, os coeficientes de remoção $\Lambda(D_p)$ e $\beta(D_p)$, em s^{-1} são dados pelas equações 2.13 e 2.14:

$$\Lambda(D_p) = \int \frac{\pi}{4} D_g^2 V_t E(D_p, D_g) n(D_g) dD_g \quad (2.13)$$

$$\beta(D_p) = \int \frac{\pi}{4} D_p^2 v_t K(D_p, d_g) n(d_g) dd_g \quad (2.14)$$

Onde: $D_p \rightarrow$ diâmetro da partícula;

$D_g \rightarrow$ diâmetro da gota;

$d_g \rightarrow$ diâmetro da gotícula;

$V_t \rightarrow$ velocidade terminal da gota;

$v_t \rightarrow$ velocidade terminal da gotícula;

$E(D_p, D_g) \rightarrow$ eficiência de coleta das gotas;

$K(D_p, d_g) \rightarrow$ eficiência de coleta das gotículas;

$n(D_g)dD_g \rightarrow$ função de distribuição de tamanho de gotas coletadas por intervalo de tamanho;

$n(d_g)dd_g \rightarrow$ função de distribuição de tamanho de gotículas coletadas por intervalo de tamanho.

Na eficiência de coleta dentro da nuvem, $K(D_p, d_g)$ e seu espectro correspondente de gotículas, considera todos os processos físicos envolvidos, ou seja, difusão browniana, interceptação e impactação, enquanto que a eficiência abaixo da nuvem, $E(D_p, D_g)$, o seu espectro correspondente de gotas, considera apenas o processo de difusão browniana.

2.1.3.2 Eficiência de coleta (E) (gota de chuva / aerossol)

Seinfeld & Pandis (1998) definem a eficiência de coleta $E(D_g, D_p)$ igual à razão entre o número de colisões ocorridas entre as gotas e as partículas e o número total de partículas na área equivalente à área da seção transversal efetiva da gotícula.

Quando $E=1$, todas as partículas são capturadas pela gota em queda, com oito variáveis correlacionadas:

$D_g \rightarrow$ diâmetro da gota;

V_t e $v_t \rightarrow$ velocidade terminal da gota e da partícula respectivamente;

μ_a e $\mu_w \rightarrow$ viscosidade do ar e da água respectivamente;

$D \rightarrow$ coeficiente de difusão de partícula;

ρ e $\rho_p \rightarrow$ densidade do ar e do aerossol (1g/cm^3)

Onde estas variáveis possuem três dimensões básicas. Pelo teorema de π (pi) Buckingham, há então cinco grupos independentes adimensionais relacionados à eficiência de coleta, são eles:

$$\text{Número de Reynolds} \rightarrow (R_e) = \frac{D_g V_t \rho}{2\mu_a}$$

$$\text{Número de Stokes} \rightarrow (S_t) = 2 \frac{\tau(V_t - v_t)}{D_p}; \tau = \frac{D_p^2 \rho_p}{18\mu_{ar}}$$

$$\text{Número de Schmidt} \rightarrow (S_c) = \frac{\mu_a}{\rho_a D}$$

$$\text{Razão entre diâmetros} \rightarrow \chi = \frac{D_g}{D_p}$$

$$\text{Razão entre viscosidade do ar e da água} \rightarrow \omega = \frac{\mu_w}{\mu_a}$$

Com base nestes grupos, a eficiência de coleta considerando todos os mecanismos físicos descritos anteriormente pode então, de uma maneira geral, ser escrita segundo Seinfeld & Pandis (1998) através da equação 2.15:

$$E = \frac{4}{S_c R_e} (1 + 0,4 R_e^{\frac{1}{2}} S_c^{\frac{1}{3}} + 0,16 R_e^{\frac{1}{2}} S_c^{\frac{1}{2}}) + 4\chi(\omega^{-1} + (1 + 2R_e^{\frac{1}{2}})\chi) + \left(\frac{S_t - S^*}{S_t - S^* + \frac{2}{3}} \right)^{\frac{3}{2}} \quad (2.15)$$

Onde:

$$S^* = \frac{1,2 + \left(\frac{1}{12}\right) \ln(1 + R_e)}{1 + \ln(1 + R_e)} \quad (2.16)$$

Na equação 2.15, o primeiro termo provém da difusão browniana, dominante em partículas muito pequenas ($d \leq 0,1 \mu\text{m}$), o segundo, devido à interceptação ($d < 2\mu\text{m}$) e o terceiro devido a impactação, dominante em partículas grandes ($d \gg 2\mu\text{m}$). Assim, esta equação pode ser então, adaptada para o uso e estudo do processo pretendido.

Para estas equações, o cálculo das velocidades terminais, tanto das gotas de chuva e gotículas de nuvem quanto das partículas podem ser calculadas através do equacionamento descrito em Gonçalves *et al.* (1997) e proposto por Volken (1994), Pruppacher & Klett (1997) e Seinfeld & Pandis (1998).

2.2 Remoção dos gases por gotículas de nuvem e gotas de chuva

A remoção dos gases traço na atmosfera é altamente dependente da composição química dos mesmos, pois alguns gases como HNO_3 , são altamente solúveis em água e podem ser absorvidos por gotas de chuva bem como por gotículas de nuvem (Naik *et al.* (1994) e Gonçalves *et al.* (1996)).

2.2.1 O equilíbrio entre as fases aquosa e gasosa

Considera-se um sistema com uma reserva limitada de gás sobre uma superfície de água pura e plana. Este sistema é uma razoável aproximação para uma gota (ou gotícula) na atmosfera. Isto significa que a incorporação do gás pela gota não afeta a concentração total deste no ar e o fator de curvatura da gota diante da molécula do gás é desprezível (Pruppacher & Klett (1978)) – para todo componente X ou C_g de uma mistura gasosa com concentração $[X(g)]$ ou C_{gw} , correspondente às concentrações de equilíbrio $[X(aq)]$ na fase líquida, segundo Volken (1994), leva a equação 2.17.

$$[X(g)] = H_c [X(aq)] \quad (2.17)$$

Onde H_c é o coeficiente adimensional de Henry, que depende da temperatura dada na equação 2.18 de Vant'Hoff:

$$\frac{d}{dT} (\ln H_c) = \frac{\Delta H^h}{RT^2} \quad (2.18)$$

Onde ΔH^h é a mudança na entalpia, R é a constante universal dos gases e T é a temperatura em graus Kelvin (K).

O equilíbrio de Henry está relacionado exclusivamente à física de duas fases do mesmo componente, não considerando possíveis transformações dos compostos químicos no interior da gota (Gonçalves *et al.* (1996)).

2.2.2 Transferência de massa e de gases para gotículas de nuvem e gotas de chuva

A absorção dos gases pelas gotículas é resultado de quatro diferentes etapas: transporte do gás na interface gota/ar, dissolução e dissociação do gás na mesma interface e a mistura do gás dissolvido na água.

Seinfeld & Pandis (1998) mostraram essas quatro etapas da seguinte maneira:

1ª) A difusão do gás para gota é função basicamente do tamanho da gota e da difusividade molecular (D^*) de modo que, quanto maior a difusividade, mais rápido irá ocorrer o transporte;

2ª) A dissolução do gás na superfície da gota é o processo que leva eventualmente a um equilíbrio de Henry na camada limite acima da superfície da gota;

3ª) A dissociação do gás depende das taxas de reversibilidade e da acidez da solução;

4ª) A mistura do gás dissolvido é resultado da difusão e convecção na circulação interna da gota. Em gotículas de nuvem, difusão, e em gotas grandes, convecção.

Segundo Chamberlain (1960) e Junge (1993), a remoção de gases por gotas de chuva é prognosticada com base na difusão da gota de acordo com a pressão de vapor, solubilidade e gases coletados, e o processo de transferência do gás para a gota pode ser parametrizado utilizando a lei de Fick apresentada na equação 2.19:

$$\frac{d}{dt}[X(aq)] = 6 \frac{K_g}{D_g} \{ [X_{(g)}] - H_c [X_{(aq)}] \} \quad (2.19)$$

Onde K_g é o coeficiente de transferência de massa que pode ser expresso pela equação 2.20:

$$K_g = \frac{D^* N_{sh}}{D_g} \quad (2.20)$$

Onde D^* é a difusividade molecular e tem seus valores tabelados de acordo com a espécie química (Volken (1994)). N_{sh} é o número adimensional denominado de Sherwood e relaciona os números de Reynolds e de Schmidt e pode ser escrito segundo a equação 2.21 mostrada a seguir:

$$N_{sh} = 2 + 0,6 R_e^{\frac{1}{2}} S_c^{\frac{1}{3}} \quad (2.21)$$

2.2.2.1 O coeficiente de remoção dos gases

Segundo Levine & Schwartz (1982), a razão de captação de um gás por gotículas de nuvem ou de chuva pode ser expressa pela equação de transferência de massa dada pela equação 2.22 (equivalente à descrição de Seinfeld & Pandis (1998)):

$$F = K_g(C_g - C_g^*) \quad (2.22)$$

Onde:

F = fluxo do gás para as gotas ($\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$);

K_g = coeficiente de transferência de massa (cms^{-1});

C_g = concentração do gás no ar (moles cm^{-3});

C_g^* = concentração do gás em equilíbrio com a concentração aquosa do gás dissolvido na superfície da gota (moles cm^{-3})

O coeficiente de transferência de massa pode ser estimado por uma combinação das equações 2.20 e 2.21 como (equação 2.23):

$$K_g = \frac{D^*}{D_g} \left[2 + 0,6 \frac{(D_g V_t (D_g))^{1/2}}{v_a} \left(\frac{v_a}{D^*} \right)^{1/3} \right] = \frac{D^*}{D_g} \left[2 + 0,6 (R_e)^{1/2} (S_c)^{1/3} \right] \quad (2.23)$$

Onde:

R_e e S_c são respectivamente, os números de Reynolds e Schmidt, já apresentados anteriormente,

D^* → difusividade do gás no ar (cm^2s^{-1});

ν_a → viscosidade cinemática do ar;

$V_t(D_g)$ → velocidade terminal das gotas ($\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$);

D_g → diâmetro da gota (cm).

Para uma gota caindo com $V_t(D_g)$ através de uma camada atmosférica uniformemente misturada e estática, a mudança na concentração com a altitude é dada pela equação 2.24:

$$d \frac{C_{(aq)}}{dz} = \frac{dt}{dz} \frac{dC_{(aq)}}{dt} = \frac{1}{V_t(D_g)} d \frac{C_{(aq)}}{dt} \quad (2.24)$$

Onde Z é a altura da queda. Se a concentração for constante, a quantidade dissolvida é tanto maior quanto maior for à distância de queda da gota.

Então, os coeficientes de remoção dos gases por gotículas de nuvem e de chuva em função do tamanho de gotas, tipo de nuvem e altura de queda podem ser expressos pelas equações 2.25 e 2.26:

$$\Lambda_c(D_g) = K_g \pi D_g^2 N(D_g) \quad (2.25)$$

$$\beta_c(d_g) = K_g \pi d_g^2 N(d_g) \quad (2.26)$$

Onde: D_g é o diâmetro das gotas de chuva, d_g é o diâmetro das gotículas de nuvem, $N(D_g)$ é a distribuição de tamanho de gotas de chuva por intervalo de classe; $N(d_{got})$ é a distribuição de tamanho de gotículas de nuvem por intervalo de classe que, segundo Levine & Schwartz (1982), pode ser expresso pela equação 2.27:

$$N(d_g) = A \exp(-Bd_g) \quad (2.27)$$

Onde A e B , são valores constantes para diferentes distribuições de tamanho de gotas em função do tipo de nuvem como pode ser observado em Ramos (2000).

Já no caso da distribuição de gotas de chuva, em geral a distribuição é dada pela clássica função exponencial de Marshall e Palmer dada pela equação 2.28:

$$\frac{dN}{dD_g} = N_n(D_g) = 0,08 \exp[-41R^{-0,21} D_g] \quad (2.28)$$

Onde R é a taxa à precipitação em mm.h^{-1} , fator $41R^{-0,21}$ deve ser dada em cm^{-1} . No entanto, para a região tropical, Morales (1991) sugere uma função de distribuição

gama, utilizada também por Gonçalves *et al.* (2000) e Gonçalves *et al.* (2002), dada pela equação 2.29:

$$\frac{dN}{dD_g} = n_N(D_g) = 290,86R^{0,0524}D_g^2 \exp(-1,41R^{-0,287}D_g^2), \quad (2.29)$$

com R em mm.h^{-1} e D_g em mm .

3 MATERIAIS E MÉTODOS

3.1 Campanhas experimentais

3.1.1 LBA - DRY TO WET e LBA– SMOCC

Durante o experimento LBA, foram realizadas diversas campanhas com medições intensivas com a finalidade de verificar propriedades particulares da região amazônica em diferentes épocas do ano. Durante o período de transição entre as estações seca e chuvosa em Rondônia, foi realizada no sudoeste da Bacia Amazônica a campanha LBA - DRY TO WET (setembro / novembro de 2002) com o intuito de estudar feições meteorológicas específicas deste período, onde a atividade de queima de biomassa ainda é bastante intensa (Andreae *et al.* (2004)). Nesta campanha, foram realizadas medições de diversas variáveis meteorológicas, com o lançamento de 4 a 6 radiossondagens por dia, monitoramento da região através de um radar meteorológico Doppler (banda S) e da rede de pluviômetros e de detectores de descargas elétricas, verificação das propriedades microfísicas das nuvens, como conteúdo de água líquida integrada, espectro de tamanho das gotículas de nuvem e de precipitação e distribuição de partículas de aerossóis e núcleos de condensação de nuvens (CCN), através de sondas instaladas à bordo do avião da Universidade Estadual do Ceará (UECE) (Silva Dias *et al.* (2004)).

No mesmo período, foi realizada também, a campanha LBA – SMOCC, a fim de detalhar as características físicas e químicas dos aerossóis atmosféricos produzidos devido à queima de biomassa. Neste caso, foram extraídos dados de análise de composição química de água de chuva através da técnica de cromatografia iônica (Lara *et al.* (2004)) e composição química da atmosfera através da coleta de gases e MP pela aeronave Bandeirante do Instituto Nacional de Pesquisas Espaciais (INPE). Esta aeronave foi equipada com diversos instrumentos de monitoramento e uma descrição detalhada destes pode ser encontrada em Guyon *et al.* (2005). Já a descrição completa do arranjo experimental utilizado nas análises químicas pode ser verificada em Trebs *et al.* (2004).

3.1.2 Sítio experimental

O sítio experimental de Fazenda Nossa Senhora Aparecida (FNS) localizado na latitude de 10°45'44" S e longitude de 62°21'27" W à 315m de altitude, está situado em uma região rural cuja vegetação predominante é pastagem (Trebs *et al.* (2004)). A localização dos principais sítios experimentais bem como dos pluviômetros e do radar meteorológico pode ser observado na Figura 3-1.

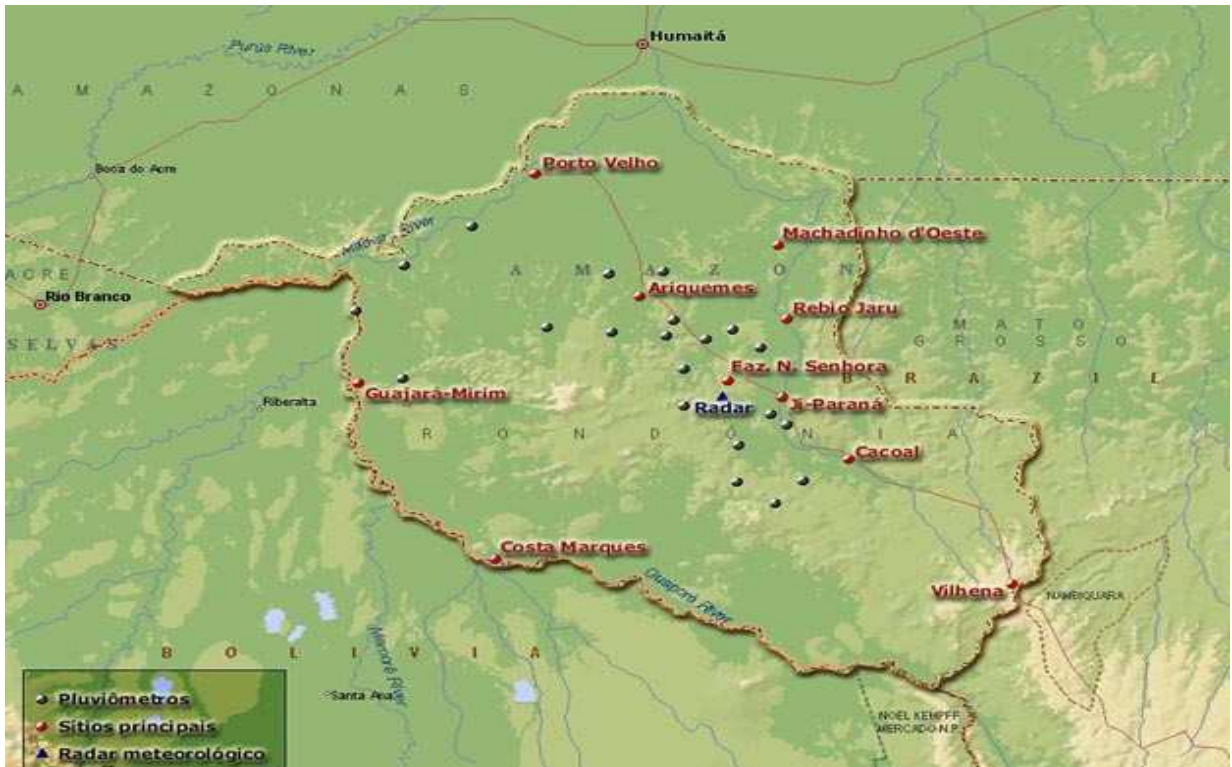


Figura 3-1 Localização das estações de dados do Projeto LBA/DRY-TO-WET, onde a FNS pode ser observada na indicação em vermelho acima do Radar. Fonte: MASTER/LBA

Este sítio é caracterizado por uma pequena variação sazonal de temperatura média diária, que se encontra entre 23°C e 24°C na estação chuvosa e entre 25°C e 26°C na estação seca. Os valores médios anuais de umidade relativa são relativamente altos, sendo aproximadamente 70% na estação seca e 80% na estação chuvosa. O regime de ventos é marcado por velocidades relativamente baixas, com médias durante o dia de aproximadamente 1,5 m/s, e com o máximo ocorrendo durante a noite. A precipitação nesta região mostra um ciclo sazonal bem definido, com baixos valores durante o mês de julho e altos entre os meses de novembro e abril (maiores que 200 mm por mês)(Andreae *et al.* (2002) e Trebs *et al.* (2004)).

3.2 Dados utilizados

Para a etapa das modelagens, foram utilizados o modelo atmosférico regional RAMS e o modelo de remoção úmida de poluentes atmosféricos B. V. 2.

Como dados de entrada para o modelo de remoção, foram utilizados dados de análise da composição química da água de chuva e dados de composição do MP e componentes gasosos presentes na atmosfera, cuja incerteza máxima associada às medidas foram geralmente menores que 15% (Trebs *et al.* (2004)). Em cima desses dados, foi realizado um rigoroso estudo estatístico, que revelou inclusive uma boa concordância nas razões entre as espécies inorgânicas dissolvidas na água (SO_4^{2-} , NO_3^- e NH_4^+) e a soma dos MP's e gases suspensos na atmosfera ($\text{SO}_4^{2-} + \text{SO}_2$, $\text{NO}_3^- + \text{HNO}_3$ e $\text{NH}_4^+ + \text{NH}_3$)(Trebs *et al.* (2005)). Além disso, para a comparação com os resultados das simulações atmosféricas, foram utilizadas as imagens do satélite GOES-8 no canal do infravermelho, CAPPI's do radar meteorológico a 3 Km de altura e dados dos pluviômetros. A fim de comparação com o perfil vertical de conteúdo de água líquida de nuvem (simulado pelo modelo atmosférico RAMS, com as características principais descritas na seção 3.4.1.1), foram utilizados dados de conteúdo de água líquida integrado em faixas de diâmetros, obtidos através das sondas instaladas a bordo do avião utilizado na campanha.

Como condição inicial para modelagem atmosférica com o RAMS, foram utilizados dados de variáveis atmosféricas extraídas das reanálises do NCEP, cuja resolução espacial e temporal é de $2,5^\circ \times 2,5^\circ$ e 6 horas respectivamente (Kalnay *et al.* (1996)).

3.3 Eventos e poluentes estudados

Após o tratamento dos dados referentes aos aerossóis atmosféricos e composição química da água de chuva durante as campanhas LBA-DRY TO WET e LBA-SMOCC no Estado de Rondônia, foram selecionados eventos de precipitação ocorridos durante o período de transição onde houvesse o maior número de registros disponíveis para a calibração da modelagem. Com base neste critério, foram selecionados dois eventos de precipitação, ocorridos nos dias: 09 e 10/10/2002 para serem estudados. A Figura 3-2 mostra uma série temporal da concentração de ânions e cátions presentes na água de chuva obtida durante o período da campanha. Nesta Figura, observa-se que as maiores concentrações ocorreram justamente durante o período de transição entre as estações seca e chuvosa, enquanto que as menores foram obtidas durante a estação chuvosa, concordando com o obtido por Trebs *et al.* (2004). Esta relação concorda com a obtida por Gonçalves *et al.* (2003) para a Serra do Navio – Amapá, e pode ainda ser explicada através do efeito de diluição promovido pelo excesso de precipitação, produzido pelos sistemas que atingem a região amazônica durante a estação chuvosa. (Junge (1963); Jaffrezo *et al.* (1990))

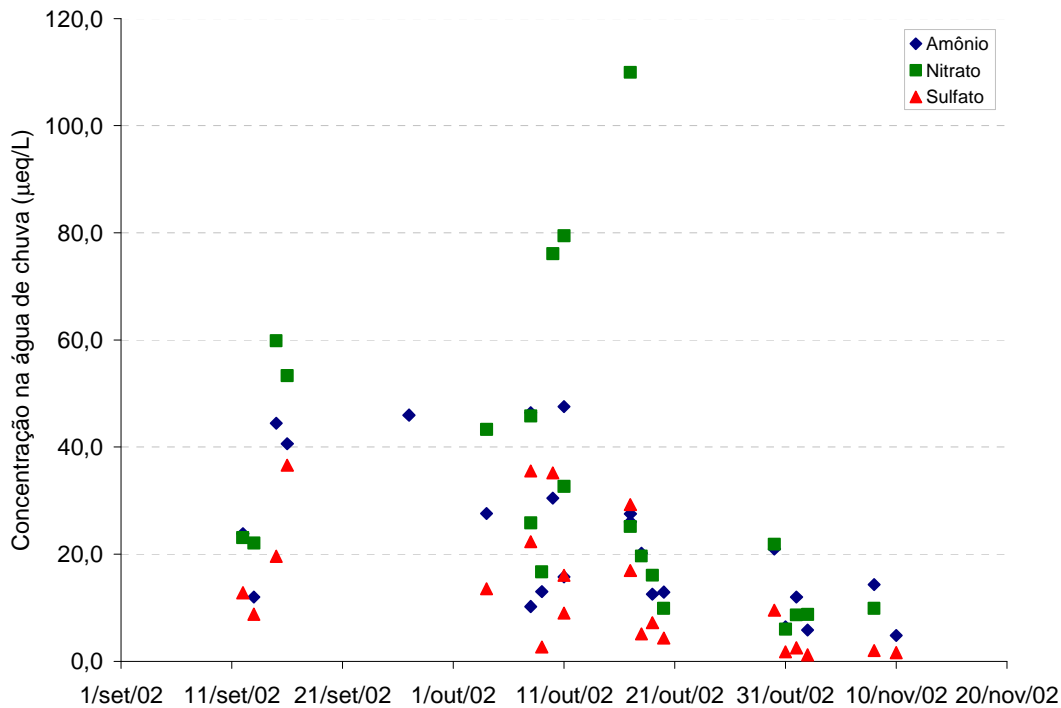


Figura 3-2 Concentração ($\mu\text{eq/L}$) de nitrato, sulfato e amônia extraídos da água de chuva em Rondônia de 12 de setembro de 2002 a 14 de novembro de 2002 durante a campanha LBA – SMOCC.

Nesse estudo, as espécies a serem simuladas em água de chuva são: sulfato (SO_4^{2-}), amônio (NH_4^+) e nitrato (NO_3^-), através da remoção da atmosfera dos gases dióxido de enxofre (SO_2), amônia (NH_3) e ácido nítrico (HNO_3) e dos particulados sulfato (SO_4^{2-}), amônio (NH_4^+) e nitrato (NO_3^-) por deposição úmida. Estes aerossóis inorgânicos representam apenas uma pequena fração da massa total de poluentes encontrada na região (<10%), já que aproximadamente 90% da massa total é composta por material orgânico proveniente da floresta. No entanto, a importância dos estudos sobre eles vem do fato destes interagirem fortemente com a radiação atmosférica alterando o padrão de nuvens e precipitação na região, além de servirem

como CCN's. As variações sazonais da razão de mistura destes componentes na atmosfera durante o experimento podem ser observadas na Figura 3-3 e na Figura 3-4 para componentes gasosos e para os particulados respectivamente. Nota-se que durante o período compreendido entre os dias 24 de setembro e 06 de outubro de 2002, não houve medições destes compostos devido à falhas apresentadas nos equipamentos. Observa-se um declínio substancial nos níveis de razão de mistura de todos os componentes avaliados entre a estação seca e a chuvosa. Nota-se ainda que a amônia foi a espécie gasosa predominante durante a campanha, obtendo razão de mistura aproximadamente uma ordem de grandeza superior aos outros componentes gasosos, e chegando a atingir um máximo de 8 ppb sobre condições de queima de biomassa. O correspondente aerossol amônio foi também a espécie predominante entre os particulados avaliados, obtendo razão de mistura entre 4 e 10 vezes superior as outras espécies iônicas medidas. Nota-se que o dióxido de enxofre apresenta uma variação sazonal bem menos acentuada que os demais componentes gasosos, sugerindo que a queima de biomassa não é a principal fonte desta espécie na região (Trebs *et al.* (2004)). No entanto, esta observação discorda do encontrado por Martins & Andrade (2002), que sugere que o SO₂, possui como fonte predominante, a queima de combustíveis fósseis e atividades industriais.

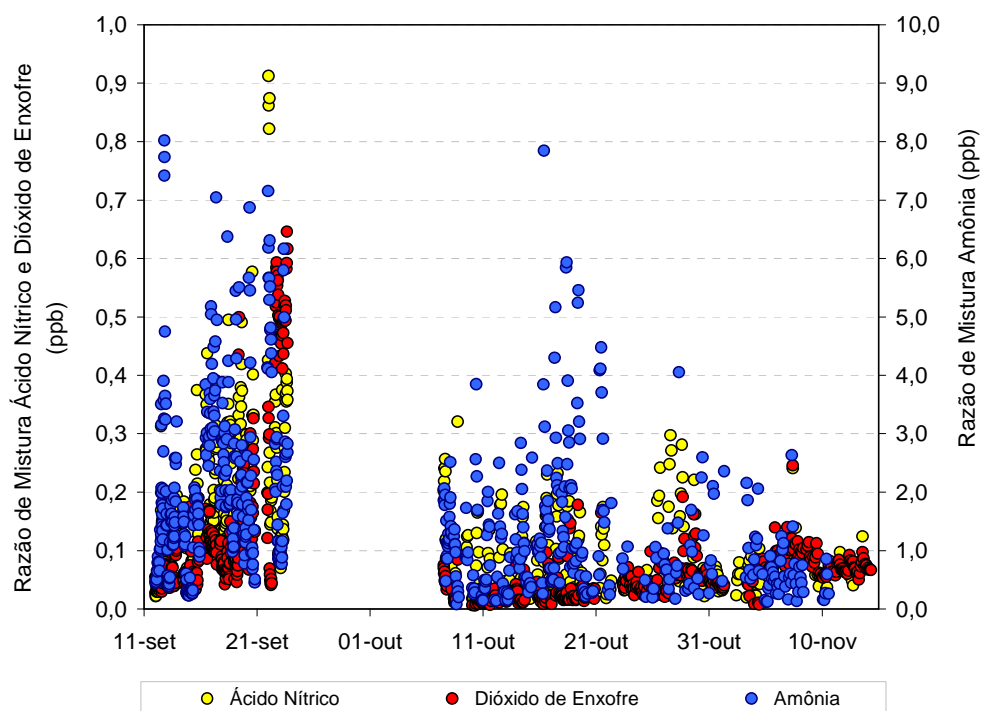


Figura 3-3 Razão de mistura em partes por bilhão (ppb) de ácido nítrico, dióxido de enxofre e amônia coletados da atmosfera durante o período da campanha LBA – SMOCC.

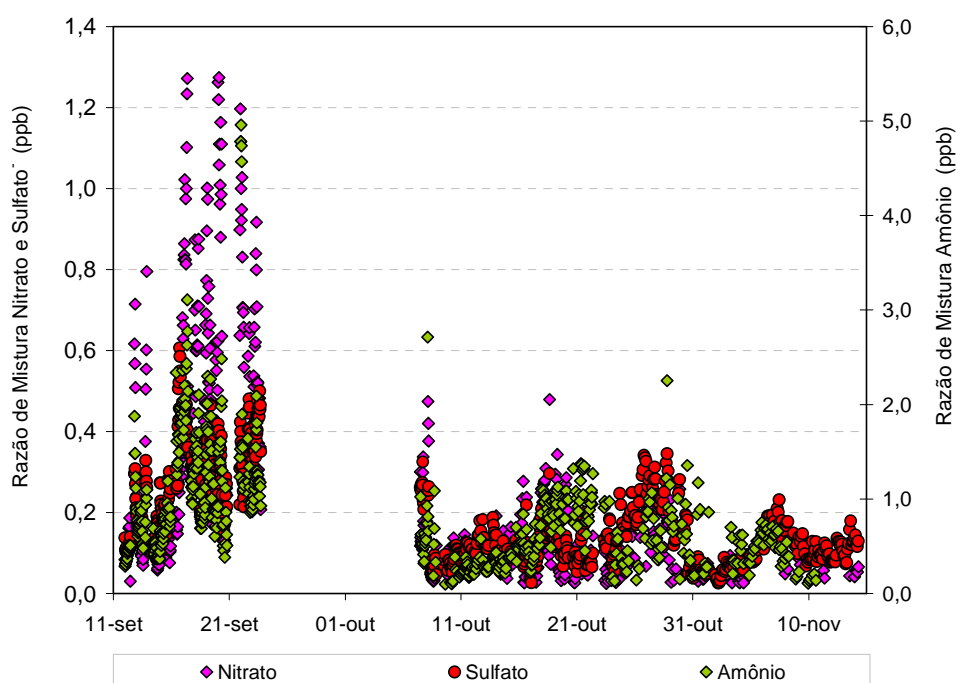


Figura 3-4 Razão de mistura em partes por bilhão (ppb) de nitrato, sulfato e amônio coletados da atmosfera durante o período da campanha LBA – SMOCC.

Em regiões tropicais, a maior parte da amônia emitida para a atmosfera é proveniente da combustão e volatilização de fertilizantes, e esta desempenha um papel fundamental na neutralização de compostos ácidos na atmosfera (Asman *et al.* (1998)). Além disso, o ácido nítrico possui uma grande afinidade com a água, o que faz com que seja facilmente absorvido pelas gotículas e pelas gotas com conversão em nitrato (Levine & Schwartz (1982)). Um resultado verificado por Trebs *et al.* (2005) é que, de maneira geral, todas estas espécies inorgânicas estudadas são formadas através do processo de conversão gás - partícula.

3.4 Modelagem dos processos de remoção

A metodologia empregada neste estudo será subdividida nos seguintes itens:

- a) Modelagem numérica das condições atmosféricas, assim como da estrutura das nuvens presentes durante os eventos de precipitação selecionados, utilizando o modelo RAMS descrito brevemente na seção 3.4.1.1;
- b) Modelagem numérica dos processos de remoção abaixo da nuvem utilizando o modelo unidimensional B. V. 2 (Gonçalves (1997)) descrito na seção 3.4.1.2;
- c) Modelagem numérica dos processos de remoção dentro da nuvem com auxílio da versão adaptada do modelo B. V. 2;
- c) Estudo de ambos processos integrados.

3.4.1 Modelagem dos processos de remoção abaixo da nuvem

Para a modelagem dos processos de remoção abaixo da nuvem foi utilizado o modelo atmosférico RAMS a fim de gerar as informações meteorológicas necessárias, como quantidade de precipitação que atinge a superfície durante o evento de precipitação estudado, variáveis médias na camada entre a superfície e a base da nuvem, como temperatura, pressão e umidade relativa, além da altura média da base da nuvem, para o modelo de remoção B. V. 2. Uma breve descrição do modelo RAMS será apresentada na seção 3.4.1.1.

A modelagem da remoção dos poluentes abaixo da nuvem propriamente dita foi efetuada através do “*Below Cloud Beheng Versão 2*” (B. V. 2), descrito detalhadamente em Gonçalves (1997), no entanto, uma breve descrição deste será apresentada na seção 3.4.1.2. Neste modelo, calcula-se a evolução temporal das espécies químicas na água de chuva através das concentrações iniciais dos gases e MP e informações atmosféricas, informações estas que foram extraídas tanto do modelo atmosférico RAMS quanto dos dados observados.

3.4.1.1 O modelo RAMS

O modelo numérico de previsão atmosférica RAMS foi desenvolvido pelo corpo científico do Departamento de Ciências Atmosféricas da Universidade do Estado do Colorado, EUA (Flatau *et al.* (1989)), e vem a ser a evolução e aglutinação de dois

modelos desenvolvidos na década de 70: um modelo de nuvens, desenvolvido por William R. Cotton e colaboradores, e um modelo de mesoescala desenvolvido sob a direção do pesquisador Roger A. Pielke.

O RAMS é um modelo numérico de equações governantes que inclui equações da continuidade para o vapor d'água, para a água de nuvem, para a água de chuva e para várias formas de gelo. É altamente versátil, permitindo sua adequação às mais diversas formas de utilização. Utiliza para a resolução das suas equações a grade C de Arakawa na horizontal, isto é, todas as variáveis escalares são definidas nos nós da grade, enquanto que as componentes vetoriais da velocidade (u , v e w) são definidas nos pontos intermediários $\delta x/2$ e $\delta y/2$ (Messinger & Arakawa (1976)) e, na vertical, utiliza uma coordenada que acompanha a topografia, coordenada σ_z (Gal-chen & Somerville (1975)). Existem disponíveis algumas parametrizações de processos físicos como radiação, solo e vegetação, camada limite e convecção, por exemplo, que podem ser escolhidas através de uma lista de decisões ("*namelist*"), cuja função é determinar as características dos testes e aplicações pretendidos.

A inicialização do modelo pode ser realizada nas formas horizontalmente homogênea (utilizando-se um perfil de radiossondagem como representação de todo o domínio do modelo) ou com assimilação de dados (heterogênea – onde usualmente utiliza-se análises de modelos globais, como as do Centro de Previsão de Tempo e Estudos Climáticos (CPTEC), "*National Centers for Environmental Prediction*" (NCEP) e "*European Centre for Medium-Range Weather Forecasts*" (ECMWF))

Para simulação de ambos os eventos selecionados foi utilizada a versão 5.0 do modelo RAMS, cujas principais configurações adotadas podem ser observadas na

Tabela 3-1. Já o posicionamento das grades e as suas respectivas áreas de abrangência podem são representados na Figura 3-5.

Tabela 3-1 Resumo das características gerais das simulações atmosféricas para os eventos selecionados.

Definição das grades:				
	Grade 1	Grade 2	Grade 3	Grade 4
Número de pontos de grade (x, y, z)	62,62,45	62,62,45	62,62,45	122,122,45
Espaçamento horizontal da grade ($\Delta x = \Delta y$)	64	16	4	1
Ponto central das grades	Latitude: 10,92° S e longitude: 62,41° W			
Passo de tempo (s)	120	30	7,5	1,875
Resolução vertical da primeira camada	100m			
Incremento na vertical	1,2			
Máximo valor de Δz	500m			
Dados de entrada:				
	Grade 1	Grade 2	Grade 3	Grade 4
Campos de variáveis atmosféricas	Reanálises do NCEP			
Parametrizações Físicas:				
	Grade 1	Grade 2	Grade 3	Grade 4
Convecção	Grell (1993)			
Radiação	Chen & Cotton (1983)			
Difusão turbulenta	Mellor & Yamada (1982)			
Microfísica	Ativada com parâmetro de forma 5, Walko <i>et al.</i> (1995)			

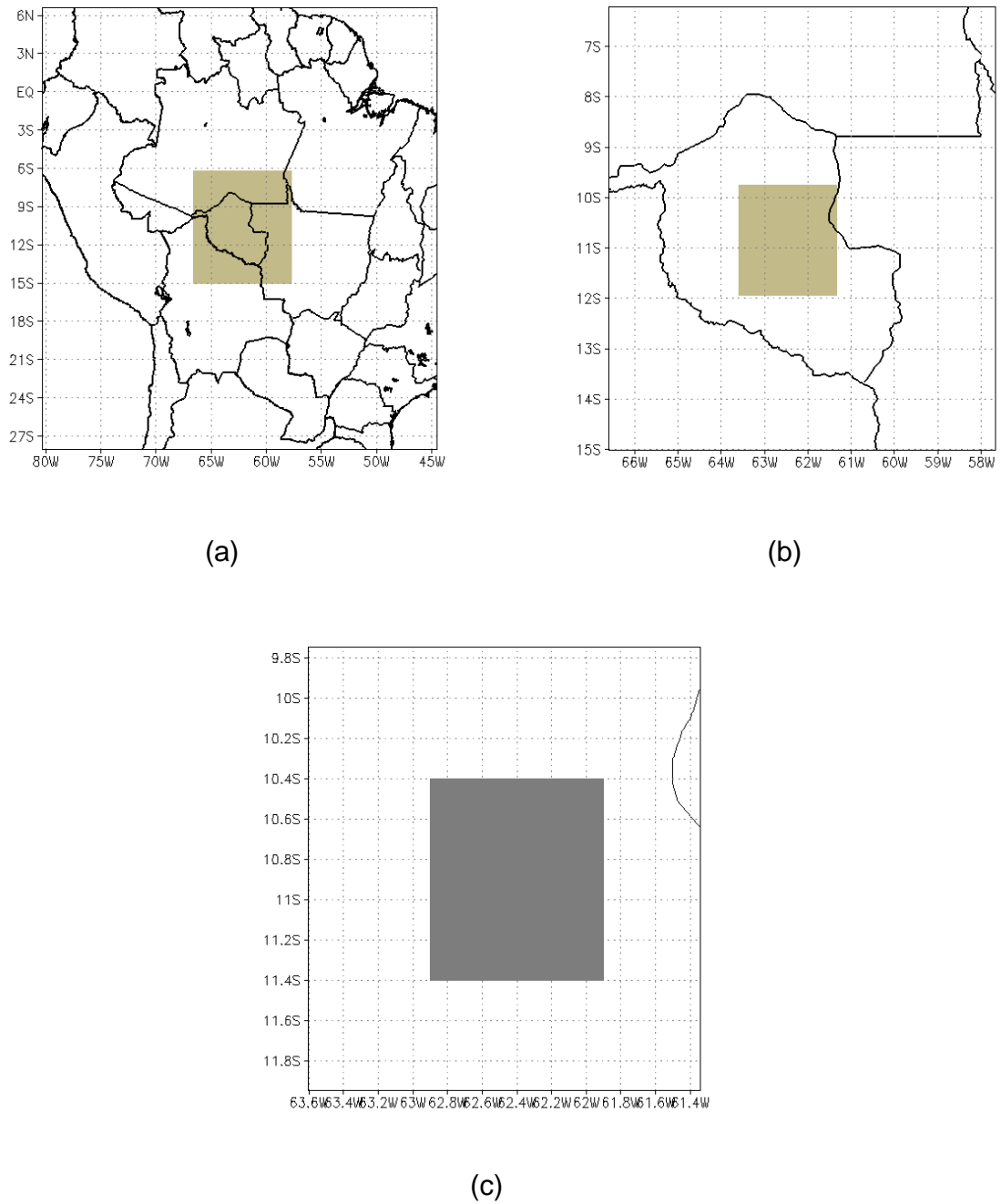


Figura 3-5 Localização espacial das 4 grades utilizadas nas simulações atmosféricas com o modelo RAMS: (a) aninhamento entre as grades de 64 Km e 16 Km de resolução espacial, (b) aninhamento entre as grades de 16 Km e 4 Km de resolução espacial e (c) aninhamento entre as grades de 4 Km e 1 Km de resolução espacial.

3.4.1.2 O modelo B. V. 2

O modelo de remoção de poluentes abaixo da nuvem “Below – Cloud Beheng versão 2” (B.V.2) é baseado no equacionamento proposto em Beheng & Herbert (1986), Seinfeld & Pandis (1998) e em Pruppacher & Klett (1997), e fornece o cálculo das concentrações de espécies químicas no ar e na água de chuva, durante e após a remoção dos poluentes atmosféricos efetuados pelas gotas de chuva.

O B.V.2 é um modelo unidimensional e os processos de remoção ocorrem entre a base da nuvem e o solo durante a precipitação. Para isso, é necessária a obtenção da altura da base e do topo da nuvem. Esta informação pode ser obtida através dos perfis verticais de água líquida de nuvem, gerados pelo RAMS. Além disso, é necessário também, que sejam fornecidas informações de temperatura, umidade relativa e pressão atmosférica médias na camada entre a superfície e a base da nuvem. Estas informações também podem ser extraídas da modelagem atmosférica com o RAMS. Para a inicialização do modelo, devem ser inseridos ainda, o tipo do gás (para que seja determinada a sua difusividade), o correspondente particulado e suas respectivas concentrações iniciais no ar.

Algumas das características importantes do modelo devem ser ressaltadas e, portanto serão listadas a seguir:

- 1) Não é considerada a advecção de massa após o início da chuva (ou seja, não há reposição de poluentes no ar durante o processo);

2) Considera-se que a remoção dos poluentes dentro da nuvem já ocorreu antes de se iniciar o evento;

3) Não há mudança no espectro de gotas (quebra ou divisão das gotas);

4) Taxa de precipitação (R) é considerada uniforme;

5) A entrada do tamanho (espectro) das gotas pode ser feita por dados disdrométricos (que não foi utilizado no nosso caso por não haver disponibilidade destes dados no período estudado) ou por outras distribuições como Marshall & Palmer (M&P) (Marshall & Palmer (1948)) ou Morales & Massambani (M&M). Neste caso Mircea & Stefan (1998) observaram que a distribuição de precipitação estimada por Marshall-Palmer (e outras distribuições exponenciais) tende a superestimar a concentração de gotas pequenas. No entanto, quando são utilizados funções gama com parâmetros de forma específicos para cada tipo de precipitação, como por exemplo, a desenvolvida por Morales & Massambani (Morales (1991)) para a região tropical, os resultados passam a ser bem mais coerentes com os espectros de gotas e gotículas de nuvem observados, e por este motivo, esta distribuição foi a utilizada neste trabalho (Gonçalves (1997)). O espectro de gotas varia entre 0,2 a 5,2 mm de diâmetro;

6) A evaporação das gotas é considerada desprezível (em atmosferas úmidas ($UR > 60\%$));

7) Velocidade terminal das gotas é dada pelo equacionamento encontrado em Seinfeld & Pandis (1998);

8) Se o MP, como o sulfato, nitrato e amônio, e os correspondentes gases são incorporados pelas gotas, o processo é suposto;

9) Concentração em massa do MP e gases é assumida constante desde a base da nuvem até a superfície (Gonçalves *et al.* (2000));

10) Informações sobre o espectro do aerossol é feita através de um arquivo de dados com 73 classes de partículas, com o raio variando de 0,01 μm a 40 μm . A distribuição de massa é feita através de uma função log-normal baseada em Whitby (1978) e Jaenicke & Davies (1976) para uma distribuição rural dos aerossóis. Esta distribuição é caracterizada por uma função bimodal, foi assumida a mesma para as diferentes espécies estudadas e pode ser observada na Figura 3-6. É considerado também, que o diâmetro das partículas permanece constante no tempo (não há crescimento higroscópico devido à condensação de vapor sobre a partícula);

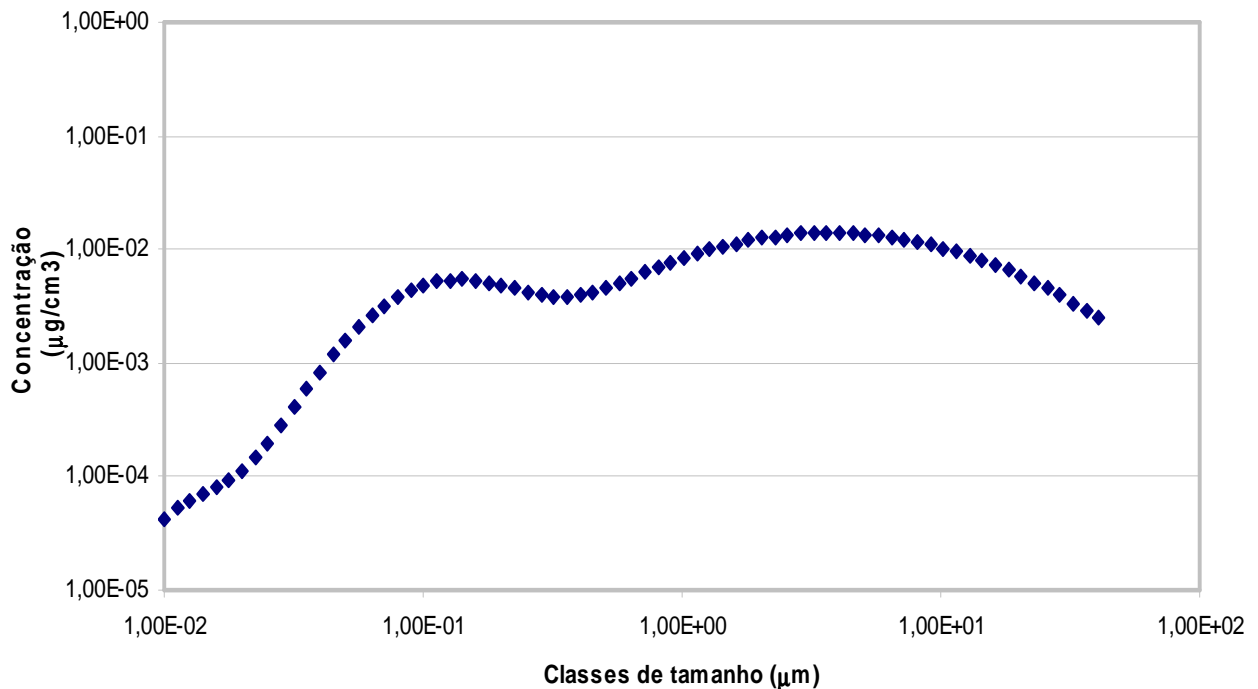
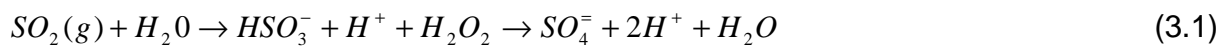


Figura 3-6 Distribuição de massa dos aerossóis segundo a distribuição proposta por Whitby (1978).

11) As equações são resolvidas pela aproximação Euleriana com estrutura espacial fixada entre a base da nuvem e a superfície;

12) A remoção dos gases segue as relações estequiométricas apresentadas nas equações 3.1, 3.2 e 3.3 (para os principais componentes encontrados na água de chuva), fazendo com que os resultados finais, sejam dados apenas em função das concentrações das espécies químicas geradas à partir destas conversões:

Sulfato:



Nitrato:



Amônio:



Então, como parâmetros de entrada, o modelo necessita das concentrações iniciais dos gases e do MP ($\mu\text{g}/\text{m}^3$), taxas de precipitação (mm/h), duração de cada evento (minutos), altura da base da nuvem (m), temperatura ($^{\circ}\text{C}$) e umidade relativa (%) médias na camada entre a superfície e a base da nuvem. Como saída, obtém-se a

soma das concentrações de gás e de particulado removidos ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) presentes na água de chuva. Multiplicando a saída pela altura da base da nuvem, dividindo pela precipitação acumulada de cada intervalo do evento e convertendo as unidades, obtém-se as concentrações finais em $\mu\text{g}/\text{L}$ de água de chuva. Este resultado então, somado aos obtidos na remoção dentro da nuvem podem ser comparados com as amostras de análises químicas de águas de chuva observadas.

3.4.2 Modelagem dos processos de remoção dentro da nuvem

Na modelagem dos processos de remoção dentro da nuvem, também foi utilizado o modelo regional de mesoescala RAMS, a fim de se obter campos de perfil vertical de conteúdo de água líquida de nuvem e de chuva, altura da base e do topo das nuvens e variáveis médias na camada entre a base e o topo da nuvem como temperatura, umidade relativa e pressão, para serem utilizados como dados de entrada na versão adaptada do modelo B. V. 2. Além do espectro de gotículas, o conteúdo de água líquida é o principal parâmetro no cálculo dos coeficientes de remoção do material particulado e gases.

Neste processo, foi considerado que a nucleação do aerossol já havia ocorrido, assumindo valores obtidos por Pandis *et al.* (1990), gerando a formação das gotículas de nuvem. A partir deste fator, seria promovida a remoção do aerossol intersticial (que é aquele que não foi ativado no processo de nucleação e, assim, pode interagir com as gotas e eventualmente ser removido por elas). A quantidade das espécies removidas

depende de suas concentrações iniciais na nuvem. Essas concentrações iniciais podem ser obtidas gerando-se um perfil vertical baseado nas concentrações iniciais de superfície medidas ou estimadas como pode ser observado no item 3.4.2.1.

3.4.2.1 Perfis verticais de concentrações de gases e material particulado utilizados como dados de entrada para as modelagens

Existem na literatura, diversos estudos sobre a distribuição de gases e MP na vertical. De acordo com a teoria da camada de mistura (Stull (1988)), pode-se assumir um perfil de concentração praticamente constante até a Camada Limite Planetária (CLP), e acima deste nível, um decréscimo da concentração com a altura.

Neste estudo, foi utilizado um decréscimo exponencial na concentração de gases e MP acima da CLP de acordo com Seinfeld & Pandis (1998).

$$C_F^e = C_0^e \quad \text{para } Z < H_{\text{CLP}} \quad (\mu\text{g}/\text{m}^3) \quad (3.4)$$

$$C_F^e = C_0^e \exp\left(-\frac{Z}{H_P}\right) \quad \text{para } Z > H_{\text{CLP}} \quad (\mu\text{g}/\text{m}^3) \quad (3.5)$$

Onde C_0^e e C_F^e representam as concentrações iniciais e finais da espécie e H_P é uma altura padrão cujo valor varia de acordo com a região estudada, sendo para este trabalho, utilizado o valor de $H_P = 815$ m que representa uma altura média entre valores continentais e marítimos (Stull (1988)) e H_{CLP} é a altura da CLP.

Observa-se em diversos estudos (Gonçalves *et al.* (2000), (2002), (2003)) que uma boa representação do perfil vertical da concentração de aerossol na atmosfera faz com que os resultados para a remoção dos poluentes melhorem consideravelmente, no entanto, alguns deles, como o proposto por Freitas *et al.* (2000) são fortemente dependentes da parametrização de convecção do modelo atmosférico. Molinari & Dudek (1992) levantaram a questão do tipo de tratamento a ser utilizado para quantificar as mudanças de fase da água nas nuvens. Segundo este estudo, foi verificado que, para grades com espaçamentos maiores que 50 Km, deveriam ser utilizados simultaneamente métodos implícitos (parametrização de convecção) e explícitos (parametrização de microfísica de nuvens) para o diagnóstico da precipitação convectiva e estratiforme. Já estudos elaborados por Cram *et al.* (1992) mostraram a grande ineficiência do tratamento explícito das nuvens em modelos numéricos da atmosfera em escalas superiores a 20 Km. Contudo, há consenso entre os dois trabalhos quando o espaçamento da grade se concentra entre 1 Km e 5 Km. Ambos apresentam excelentes resultados na precipitação utilizando apenas o tratamento explícito da mesma. Neste estudo, foram utilizadas 4 grades aninhadas, sendo as duas mais resolutas, com 4 Km e 1 Km de resolução espacial, onde a parametrização de convecção não foi acionada, sendo utilizada apenas a parametrização de microfísica, como pode ser observado na Tabela 3-1 (seção 3.4.1.1). Assim, este método de estimar o perfil vertical da concentração de poluentes na atmosfera baseado na parametrização de convecção não pôde ser aplicado.

3.4.2.1 Metodologia para o cálculo da remoção dentro da nuvem

Para calcular a quantidade de gases e MP removida no interior da nuvem foi utilizada uma versão adaptada do código do modelo de remoção para abaixo da nuvem (B. V. 2). Neste caso, foram feitas diversas modificações e adaptações para que o modelo se tornasse apropriado para simular a remoção dentro da nuvem. Entre as principais adaptações realizadas, estão:

- 1) Substituição dos parâmetros atmosféricos de entrada do modelo (que eram médios na camada entre a superfície e a base da nuvem para parâmetros médios no interior da nuvem);
- 2) Substituição dos valores de concentrações do gás e MP iniciais;
- 3) Cálculo da velocidade terminal das gotículas de nuvem através da formulação proposta por Pruppacher & Klett (1997);
- 4) Alteração no cálculo da eficiência de coleta (desprezando termos referentes a efeitos de impactação, interceptação, foréticos dentro da nuvem, restando apenas os efeitos da difusão browniana), baseado em Seinfeld & Pandis (1998).
- 5) Implementação de duas funções de distribuição de gotículas de nuvem, a primeira, uma função exponencial determinada por Levine & Schwartz (1982), e a segunda, uma função gama como a encontrada no modelo RAMS ajustada com parâmetro de forma 5 para os dados observacionais coletados durante os vôos realizados na campanha LBA-SMOCC (Figura 3-7).

Assim, foi implementada no código do modelo de remoção de poluentes atmosféricos B. V. 2, a função gama de distribuição de gotículas de nuvem (equação 3.6) encontrada no RAMS (Walko *et al.* (1995)).

$$\frac{dN}{dD} = \frac{N_t}{\Gamma(\nu)} \left(\frac{D}{D_n} \right)^{\nu-1} \frac{1}{D_n} \exp\left(-\frac{D}{D_n} \right) \quad (\text{cm}^{-3}\text{cm}^{-1}) \quad (3.6)$$

Onde D representa o diâmetro do hidrometeoro, $\Gamma(\nu)$ é a constante de normalização, ν é o parâmetro de forma da distribuição gama, D_n é o diâmetro característico desta distribuição e N_t é o número total de gotículas de nuvem. No código, existia apenas a função de distribuição obtida por Levine & Schwartz (1982), que como dito anteriormente, é uma função exponencial e pode ser observada na equação 3.7:

$$\frac{dN(D_g)}{dD_g} = A \exp(-BD_g) \quad (\text{cm}^{-3}\text{cm}^{-1}) \quad (3.7)$$

Onde, D_g é o diâmetro equivalente das gotículas (que é definido por Pruppacher & Beard (1970) como o diâmetro de uma esfera com o mesmo volume de uma gota deformada pela queda na atmosfera), A representa o fator de normalização (cm^{-4}) e B descreve a inclinação da distribuição de tamanho de gotículas de nuvem (cm^{-1}) e pode estar relacionado à qualquer das dimensões da distribuição (diâmetro médio (\bar{D}),

diâmetro modal (D_{mod}) ou diâmetro efetivo (D_{ef}). Os parâmetros A e B utilizados nesta parametrização e no modelo foram determinados através do ajuste aos dados de Battan & Reitan (1957) e dependem do número total de gotículas de nuvem, do tipo de nuvem e do conteúdo de água líquida. Neste caso, A vale $4,55 \times 10^5 \text{ cm}^{-4}$ e B vale $1,2 \times 10^3 \text{ cm}^{-1}$ considerando um “*cumulus congestus*” cujo número total de gotículas, N_t , é parametrizado como 208 gotículas/cm³ e o conteúdo de água líquida aproximadamente 0,64 g/cm³.

Foi realizada então, a comparação entre a representação do espectro de gotículas de nuvem obtida através da função de distribuição de Levine & Schwartz (1982) e a função gama utilizando parâmetro de forma 5 (Figura 3-8). Este valor foi utilizado por melhor ajustar a função aos dados observados para este evento, como pode ser verificado através das correlações entre a curva observada e as representadas através das funções gama com parâmetros de forma de 1 a 15. Observa-se na Figura 3-8, que o número total de gotículas é subestimado no primeiro caso, enquanto que no segundo, este pode ser definido para ser exatamente o número médio observado na nuvem (610,9 gotículas/cm³). Além disso, observa-se também que o máximo da concentração de gotas encontra-se deslocado em direção a diâmetros maiores no caso da função gama, o que demonstra a maior quantidade de gotas com tamanhos entre 5 μm e 10 μm . Este deslocamento do espectro em direção a diâmetros maiores é esperado para a região que, embora esteja localizada numa área continental, possui grande influência de CCN's grandes oriundos da floresta (Andreae *et al.* (2004)).

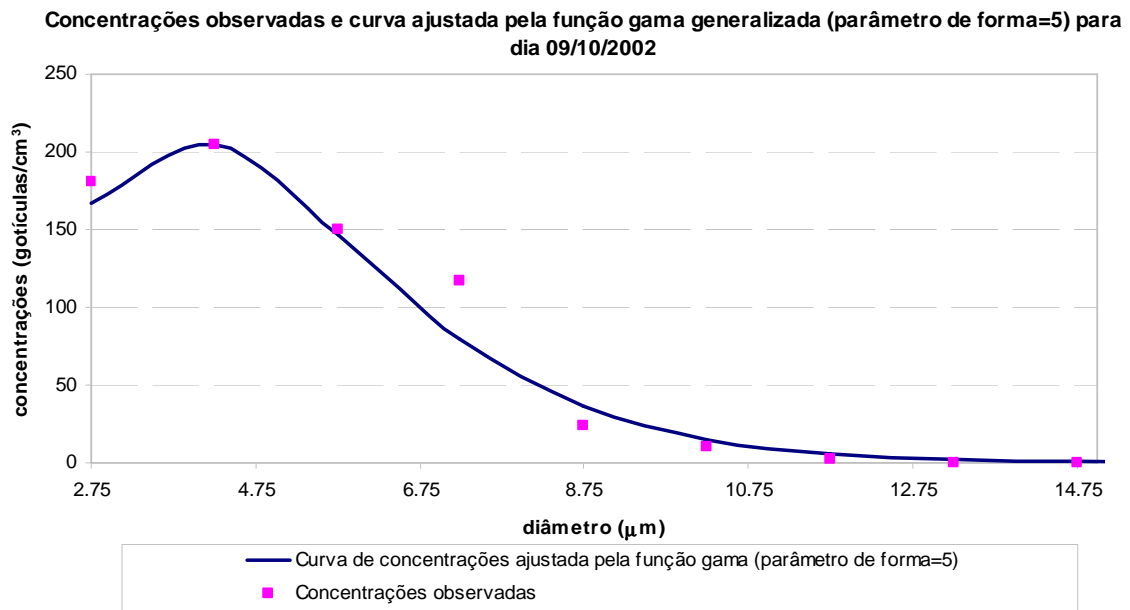


Figura 3-7 Ajuste da função gama com parâmetro de forma 5 ao espectro de gotículas de nuvem observado, no sítio experimental de FNS para o vóo ocorrido no dia 09/10/2002.

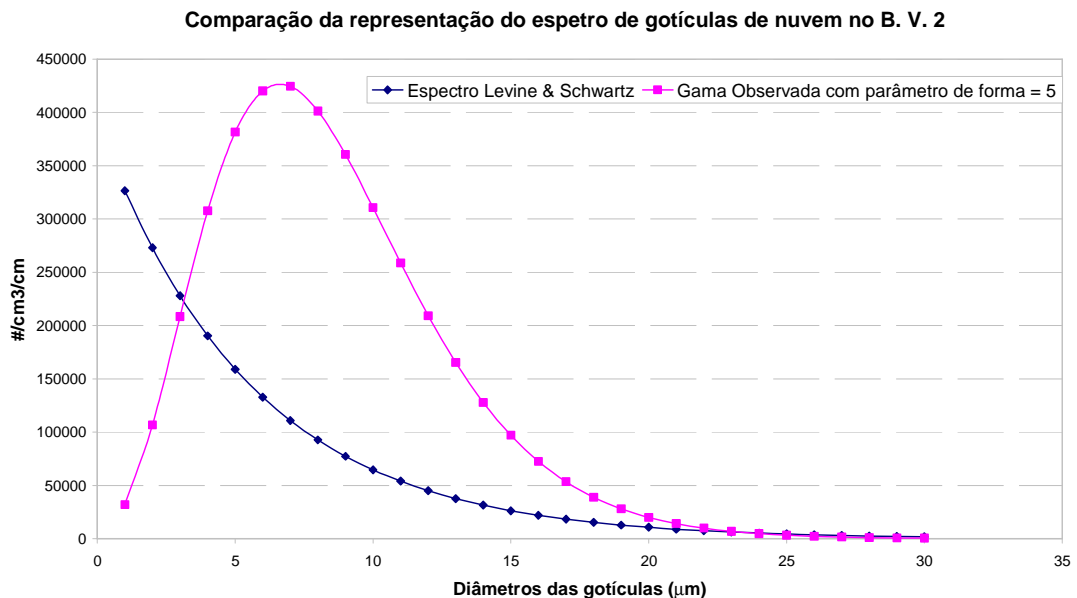


Figura 3-8 Representação do espectro de gotículas de nuvem através de uma função gama com parâmetro de forma 5 e a função exponencial de Levine & Schwartz (1982).

No entanto, teoricamente, qualquer função gama pode ser escrita como uma função exponencial, desde que utilizado o parâmetro de forma igual a 1. A fim de verificar a concordância entre as duas equações propostas para o espectro de gotículas de nuvem, foi realizado um teste fazendo a função gama utilizada no RAMS para o nosso caso com parâmetro de forma igual a 1, e comparado com a distribuição exponencial proposta por Levine & Schwartz (1982) (utilizando parâmetros A e B ajustados para o nosso caso). Como esperado, as curvas obtidas coincidem, demonstrando assim, a validação da curva utilizada para a representação do espectro de gotículas de nuvem observado.

Vale ressaltar que para a remoção dentro da nuvem, foi considerado que, para o sulfato e dióxido de enxofre, 70% dos gases e MP em suspensão na atmosfera no interior da nuvem foram considerados removidos imediatamente através do processo de nucleação de gotículas, enquanto que apenas os 30% restantes é que podem ser removidos predominantemente por difusão Browniana pelo modelo de remoção. Já para o nitrato, ácido nítrico, amônio e amônia, esta porcentagem nucleada imediatamente sobe para 80%, restando apenas 20% dos gases e MP para serem removidos através da versão adaptada do B. V. 2. Estas proporções concordam com o encontrado Pandis *et al.* (1990) para a formação de nevoeiro.

3.4.3 Integração da remoção dentro com a remoção abaixo da nuvem

Considerando o decaimento temporal exponencial da concentração (Equações 3.8 e 3.9), é possível escrever a quantidade de poluentes transferida para a água como:

$$C_{w,gas}^i(t) = C_{0,gas}^i [1 - \exp(-\Lambda_{gas}^i \Delta t)] \quad (\mu\text{g}/\text{m}^3) \quad (3.8)$$

$$C_{w,part}^i(t) = C_{0,part}^i [1 - \exp(-\Lambda_{part}^i \Delta t)] \quad (\mu\text{g}/\text{m}^3) \quad (3.9)$$

Desta forma, pode-se obter a quantidade total de poluentes removida da nuvem integrando as equações 3.8 e 3.9 em cada camada e somando as quantidades removidas de gás e MP.

Vale ressaltar que as concentrações são obtidas em μg da espécie removida numa área (m^2)(depois da integração na nuvem). A conversão para μg por Litro de água pode ser obtida conhecendo-se a quantidade de água precipitada em milímetros (já que, em unidades meteorológicas, 1 mm de precipitação equivale a 1 L/m^2) (extraída da simulação atmosférica com o RAMS) no intervalo de tempo considerado, bastando dividir a concentração ($\mu\text{g}/\text{m}^2$) por este valor.

Este resultado obtido para a remoção dentro da nuvem deve ainda ser somado ao resultado para a remoção abaixo da nuvem gerado pelo B. V. 2, para que assim, possam ser comparados as quantidades observadas nas análises química das águas de chuva.

4 RESULTADOS E DISCUSSÕES

Neste capítulo 4, serão apresentados os resultados obtidos pelas simulações atmosféricas para os dois eventos, além das modelagens da remoção dos poluentes.

Observação: vale ressaltar que o evento do dia 10/10/2002 foi o utilizado nos diversos testes realizados com os modelos, e por este motivo, seus resultados serão apresentados antes daqueles obtidos para o evento do dia 09/10/2002.

4.1 Resultados das simulações atmosféricas

4.1.1 Evento dia 10/10/2002

Para este evento, foram realizadas duas simulações atmosféricas com o modelo RAMS, ambas iniciando as 00:00 h UTC do dia 10/10/2002 e terminando as 12:00 h UTC do dia 11/10/2002. A primeira delas, que chamaremos daqui pra frente de “Simulação 1”, com apenas três grades aninhadas, sendo a mais resolvida com 4 Km de resolução espacial. Já na segunda simulação atmosférica, “Simulação 2”, foi implementada uma quarta grade, esta com 1 Km de resolução espacial, a fim de verificar o impacto desta modificação na representação das nuvens pelo modelo.

Com o propósito de verificar a capacidade do modelo RAMS em simular as condições atmosféricas esperadas na “Simulação 1” para este evento, foram gerados campos de razão de mistura de água de nuvem e gelo em aproximadamente 2,9 km de

altura em horários específicos para comparação com as imagens de “*Constant Altitude Plan Position Indicator*” (CAPPI) de radar.

Observa-se na Figura 4-1 que o modelo conseguiu de forma satisfatória representar o aspecto fragmentado do evento quando comparado à imagem de radar para o horário das 19:00 h UTC (Figura 4-2). O modelo simulou a máxima intensidade do evento por volta das 20:00 h UTC, gerando valores de máxima precipitação da ordem de 20 mm/h.

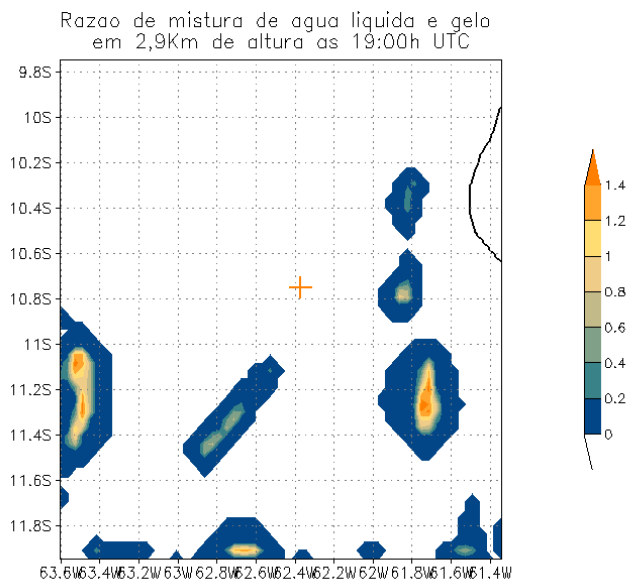


Figura 4-1 Razão de mistura de água líquida e gelo (g/kg) em 2,9 Km de altura simulada pelo modelo para o dia 10/10/2002 às 19:00 h UTC. A cruz laranja no campo simulado pelo modelo representa a localização do sítio experimental de FNS.

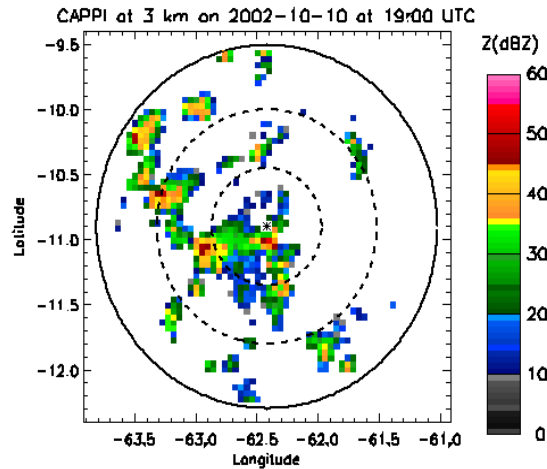


Figura 4-2 Imagem CAPPI de radar para a região de Rondônia para o dia 10/10/2002 às 19:00 h UTC. Fonte: MASTER/LBA.

Observa-se ainda, que o modelo apresentou uma pequena defasagem em relação ao horário de início da precipitação observada. Além disso, foi verificada também uma superestimativa da taxa de precipitação pelo modelo no ponto que representa o sítio experimental da FNS. No entanto, tratando-se de modelagem, o resultado pode ser considerado razoável, pois o uso de uma grade de apenas 4 km de resolução espacial, além dos erros embutidos nas parametrizações utilizadas, pode ter influenciado nos resultados obtidos.

O horário escolhido então, para a modelagem dos processos de remoção foi o de 20:00 h UTC, horário este em que, além de ter sido registrada a máxima intensidade de precipitação do evento, a nuvem simulada esteve mais próxima ao ponto onde os dados foram coletados (sítio experimental de FNS). A Figura 4-3 mostra a razão de mistura de água de chuva para a grade de 4 km (grade 3) de resolução para o horário a ser analisado. Nota-se que o ponto onde foram traçados os perfis verticais de conteúdo

de água líquida de nuvem (Figura 4-3) (LAT: 11,4° S e LON: 61,5° W) coincide com o ponto onde o modelo simulou o máximo valor de razão de mistura de água de chuva.

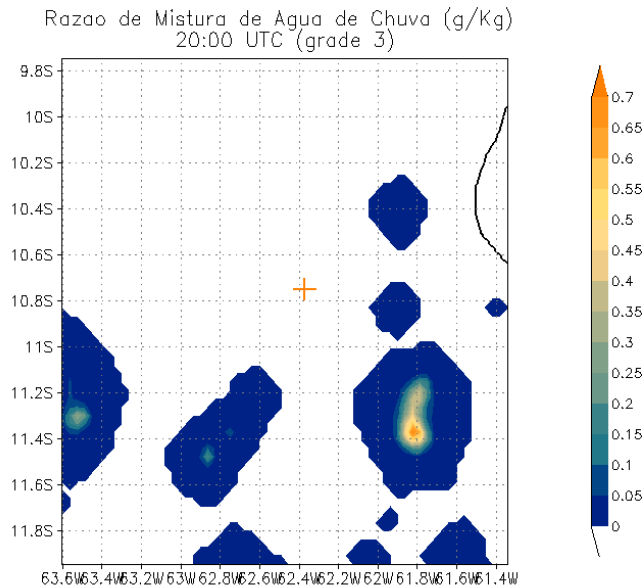


Figura 4-3 Razão de mistura de água de chuva (g/Kg) para as 20:00 h UTC (grade 3)

A Figura 4-4 representa o perfil vertical de razão de mistura de água de nuvem. Deste perfil, é possível obter a altura da base da nuvem em aproximadamente 1800 m de altura. Este resultado se assemelha ao obtido por *Andreae et al.* (2004), onde os autores encontraram uma altura média para a base das nuvens na floresta de aproximadamente 1500 m, em seu estudo na Amazônia também durante o período de transição entre as estações seca e chuvosa (campanha LBA/SMOCC). Observaram ainda que, no caso da ocorrência de queimada, a base dessas nuvens pode atingir alturas mais elevadas, de cerca de 1700 m de altura.

Perfil Vertical de Razao de Mistura de Agua de Nuvem
LAT:11,4S ; LON:61,8W (20h UTC)

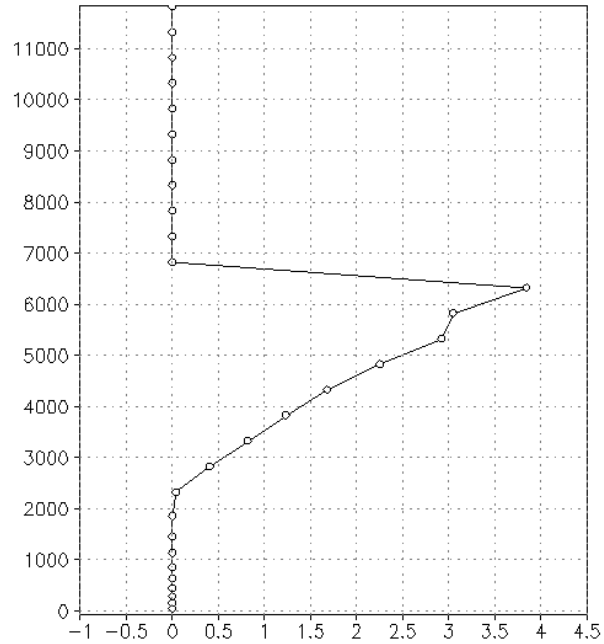


Figura 4-4 Perfil vertical de razão de mistura de água de nuvem para lat =11,4° S e lon = 61,8° W às 20h UTC (g/kg).

A fim de verificar e validar o resultado obtido através da simulação com modelo RAMS, este perfil vertical de razão de mistura de água líquida de nuvem (g/kg) foi convertido em conteúdo de água líquida de nuvem (g/cm³) através da relação 4.1:

$$W_l = 10^{-3} \rho r_v \quad (4.1)$$

Sendo, ρ a densidade do ar (g/cm³), r_v a razão de mistura de água de nuvem (g/Kg) e W_l o conteúdo de água líquida de nuvem (g/cm³).

Assim, observa-se na Figura 4-5, dois perfis verticais de conteúdo de água líquida de nuvem. A curva vermelha representa os dados observados durante os vôos no período do experimento do LBA para o dia 09/10/2002 aproximadamente 19:30 h UTC.

Vale ressaltar que não há disponibilidade de dados de microfísica com frequência regular já que o monitoramento dependia da disponibilidade de vôos e, portanto, este foi o evento monitorado ocorrido mais próximo ao caso estudado. A curva azul representa o perfil vertical simulado pelo modelo para o dia 10/10/2002, sendo este o utilizado neste estudo. Nota-se que, embora o modelo tenha apresentado pequenos deslocamentos dos núcleos de precipitação quando comparados com as imagens de radar e superestimado as taxas de precipitação, observa-se que este conseguiu representar de maneira aproximada a estrutura vertical das nuvens observadas na região amazônica para o evento considerado. Comparando-se a curva observada com a modelada para o dia 10/10/2002, nota-se um máximo conteúdo de água líquida observada de aproximadamente $2,0 \times 10^{-6} \text{ g/cm}^3$, enquanto que o modelado ficou em torno de $2,5 \times 10^{-6} \text{ g/cm}^3$. De maneira geral, o modelo conseguiu representar com boa concordância a altura das bases das nuvens (entre 1500 m e 1800 m), no entanto, não foi possível fazer a mesma observação com relação aos topos, já que os vôos do experimento estavam limitados a uma altura máxima de aproximadamente 5 km. Este resultado indica que o uso dos perfis de conteúdo de água líquida de nuvem gerados através da modelagem com o RAMS seja adequado para a utilização no modelo de remoção, já que esta informação é uma das quais o modelo B. V. 2 apresentou grande sensibilidade (junto à taxa de precipitação).

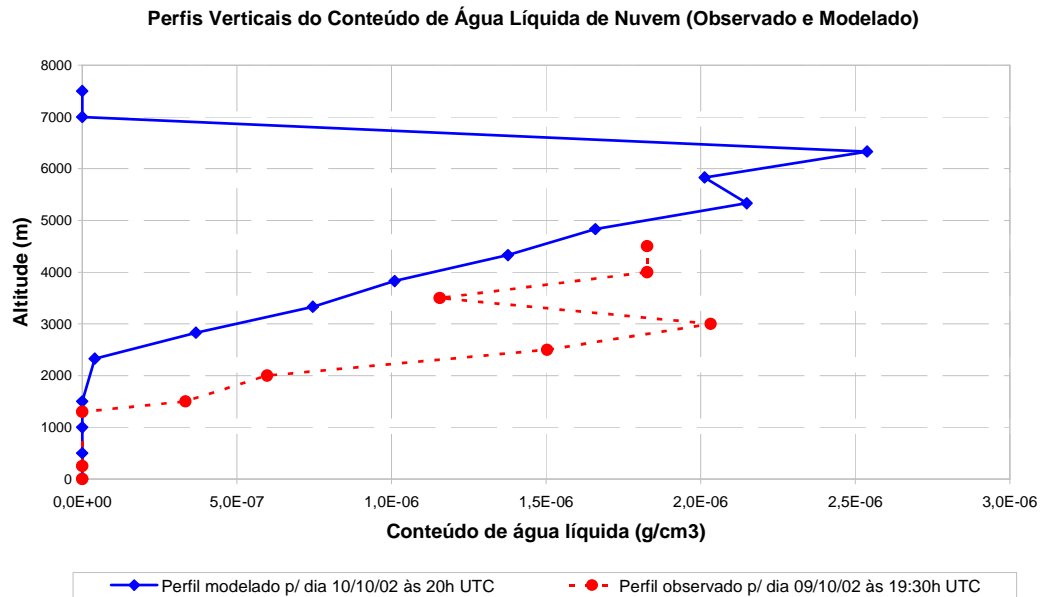


Figura 4-5 Perfis verticais de conteúdo de água líquida de nuvem (g/cm³) modelado para o dia 10/10/2002 para lat=11,4° S e lon= 61,8° W e observado através do vôo sobre o sítio de FNS.

Assim, as variáveis médias nas camadas abaixo da nuvem e dentro dela simuladas pelo RAMS para o horário das 20:00 h UTC, utilizadas como dados de entrada para o modelo de remoção, podem ser observadas na Tabela 4-1 .

Tabela 4-1 Variáveis de entrada para o modelo de remoção, extraídas da grade 3 (com 4 Km de resolução espacial) da “Simulação 1” com o RAMS, para o evento do dia 10/10/2002, às 20:00 h UTC. Base da nuvem à 1856 m.

	Temperatura (K)	Pressão (hPa)	Umidade (%)	Extensão vertical da nuvem (m)
Superfície – base da nuvem	293,2	901,27	70,1	
Base – topo da nuvem	275,86	598,05	100,0	4474
Precipitação Modelada		7,83 mm em 20 minutos		

Como dito anteriormente, para a “Simulação 2”, foi implementada no RAMS, uma quarta grade no experimento com 1 Km de resolução espacial, a fim de verificar a melhoria na representação das nuvens e na taxa de precipitação.

Neste caso, com o objetivo de comparar com as imagens de radar e verificar se o modelo conseguiu representar de maneira adequada as células de precipitação, novamente foram gerados campos de razão de mistura de água líquida e gelo para a altura de 2,9 Km. Observa-se uma boa concordância entre o CAPPI observado pelo radar (Figura 4-6) e o simulado pelo modelo (Figura 4-7), principalmente nos horários próximos ao início do evento estudado (18:06 h UTC). Nota-se que o modelo conseguiu representar nos horários das 18:00 h UTC e das 19:00 h UTC (Figura 4-7 (a) e Figura 4-7 (b)) uma camada de nuvens estratificada a sudoeste da estação que também pode ser observada no radar. Comparando ainda o campo simulado para as 23:00 h UTC com a imagem de radar para o mesmo horário (Figura 4-7 (d) e Figura 4-6 (d) respectivamente), observa-se que o modelo conseguiu representar a célula convectiva mais intensa a norte da estação e uma outra menos intensa a sudeste da mesma. Estas características podem também, serem observadas no radar (Figura 4-6). O modelo simula ainda para este horário, um núcleo de nebulosidade sobre o ponto estudado que não pode mais ser observado sobre a estação.

Considerando que os horários em que a precipitação simulada pelo RAMS atinge a estação coincidem com os que haviam nebulosidade sobre a mesma (21:00 h UTC e 23:00 h UTC) (Figura 4-6 (c) e (d)), o horário das 23:00 h UTC foi selecionado para fornecer os parâmetros de entrada para o modelo B. V. 2, já que a quantidade de precipitação simulada para este horário foi mais próxima ao observado na estação,

enquanto que para o horário das 21:00 h UTC, o modelo simulou uma precipitação inapreciável ($\sim 0,007$ mm). Observa-se na Figura 4-8 (campo de precipitação acumulada em 1 hora) que, embora o modelo represente de maneira adequada os núcleos de nebulosidade e precipitação observados, ocorre uma defasagem no horário em que esta atinge a estação de maneira um pouco mais intensa como observado pelo radar, já que na simulação, este fato ocorre apenas às 23:00 h UTC. Observa-se que o valor de precipitação simulado para o horário de 23:00 h UTC, foi de 2,26 mm, mas vale ressaltar ainda que, a quantidade de precipitação observada neste evento no sítio experimental foi de 0,39 mm em aproximadamente 20 minutos então, o resultado modelado deve ainda ser ajustado para este período, fazendo com que o valor simulado se aproxime ainda mais do observado na estação.

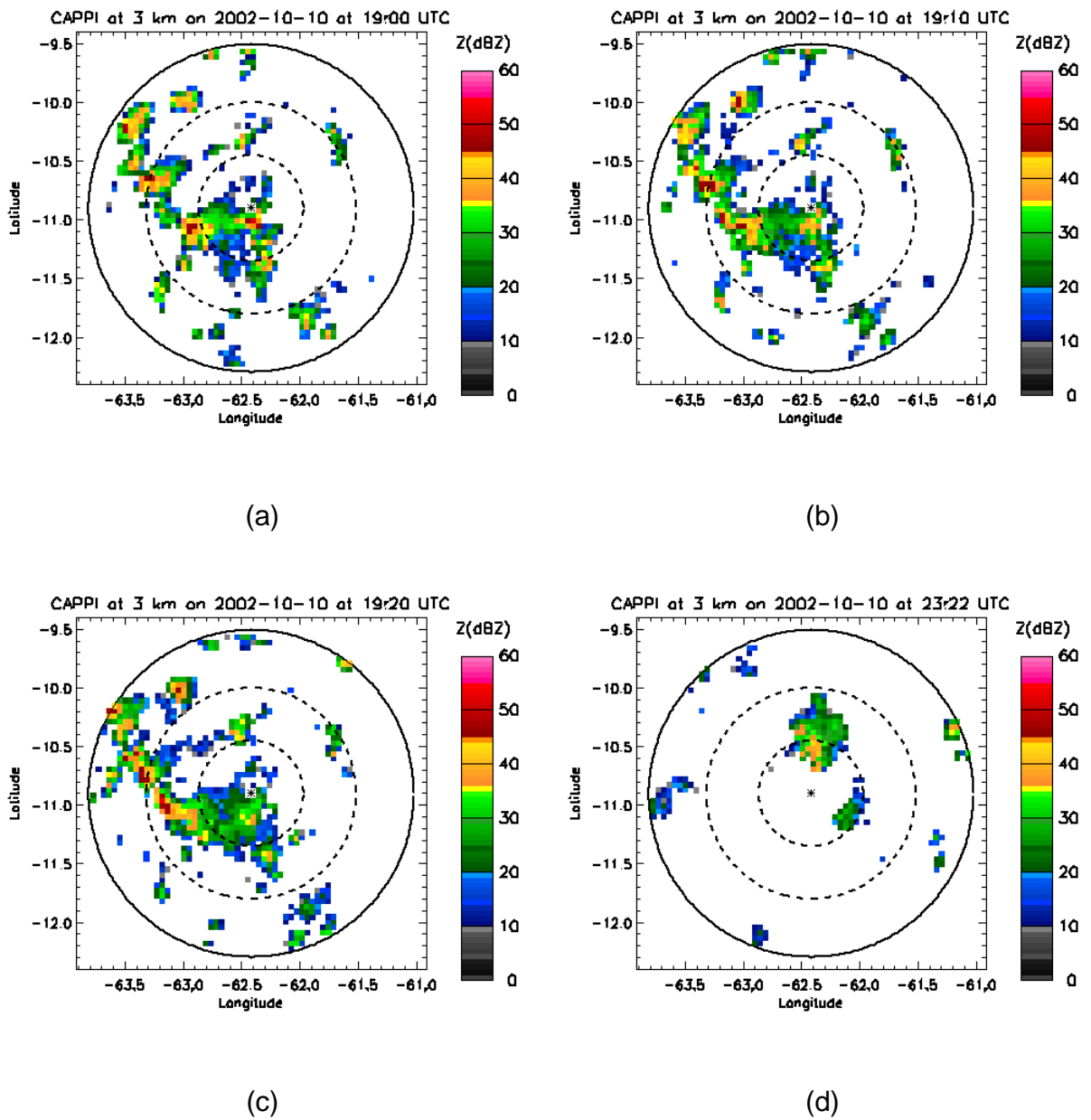
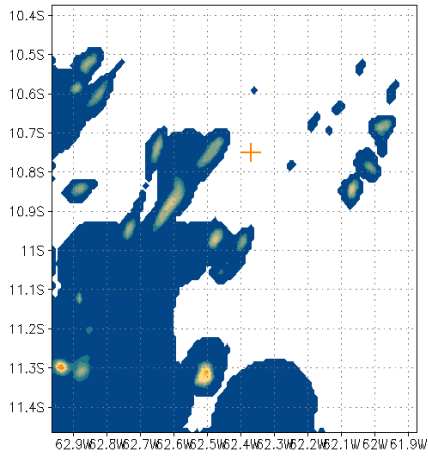


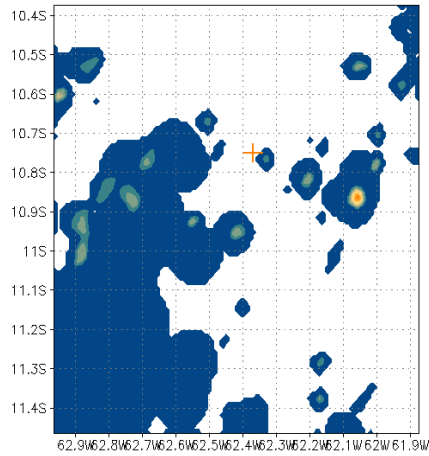
Figura 4-6 Imagens CAPPI de radar para a região de Rondônia, dia 10/10/2002, nos horários de (a) 19:00 h UTC, (b) 19:10 h UTC, (c) 19:20 h UTC e (d) 23:22 h UTC. Fonte: MASTER/LBA.

Razao de mistura de agua líquida e gelo (g/kg)
em 2,9Km de altura as 18h UTC



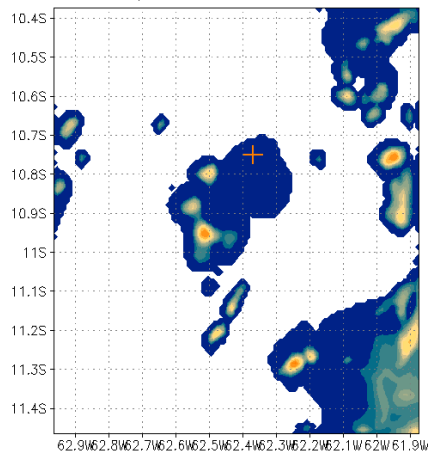
(a)

Razao de mistura de agua líquida e gelo (g/kg)
em 2,9Km de altura as 19h UTC



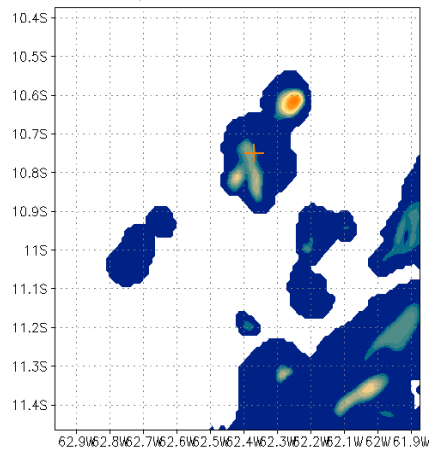
(b)

Razao de mistura de agua líquida e gelo (g/kg)
em 2,9Km de altura as 21h UTC



(c)

Razao de mistura de agua líquida e gelo (g/kg)
em 2,9Km de altura as 23h UTC



(d)

Figura 4-7 Razão de mistura de água líquida e gelo (g/kg) em 2,9 Km de altura simulada pelo modelo para o dia 10/10/2002 nos horários de (a) 18:00 h UTC, (b) 19:00 h UTC, (c) 21:00 h UTC e (d) 23:00 h UTC.

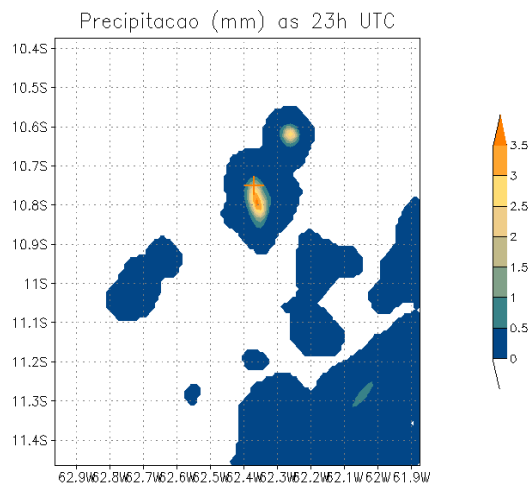


Figura 4-8 Quantidade de precipitação simulada pelo RAMS em 1 hora (mm) para as 23:00 h UTC do dia 10/10/2002.

Assim, na Figura 4-9, pode ser observado o perfil vertical de conteúdo de água líquida de nuvem simulado pelo RAMS no ponto que representa o sítio experimental de FNS para este horário, perfil este que foi utilizado como dado de entrada do modelo de remoção B. V. 2. Nesta Figura, pode-se ainda observar as alturas da base da nuvem um pouco acima de 2,0 Km de altura e do topo em aproximadamente 5,5 Km, além da extensão vertical da mesma.

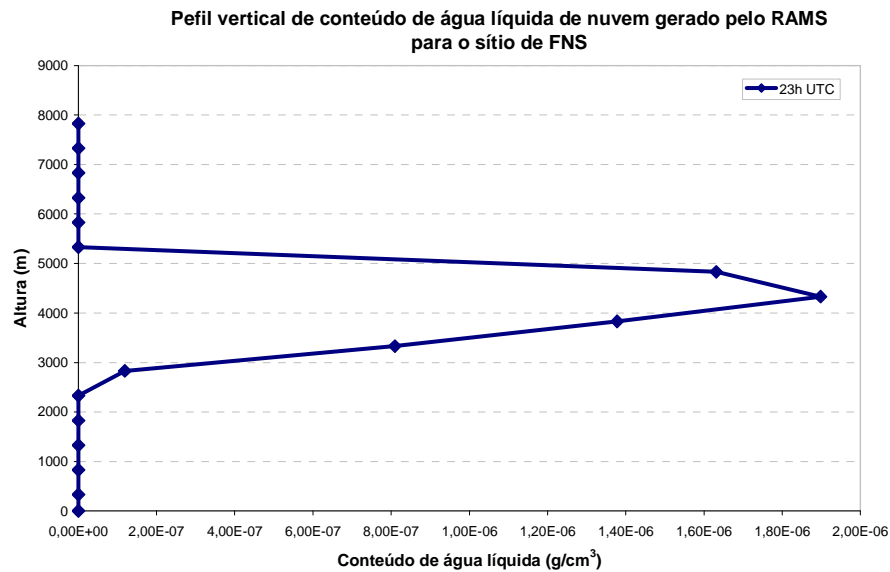


Figura 4-9 Perfil vertical conteúdo de água líquida de nuvem para a FNS às 23:00 h UTC (g/cm^3).

Além deste perfil, outras variáveis médias nas camadas entre a superfície e a base da nuvem e entre a base e o topo do nuvem como temperatura, pressão e umidade relativa também foram extraídas da simulação atmosférica para servirem de entrada para o modelo B. V. 2. Estas variáveis podem ser observadas na Tabela 4-2.

Tabela 4-2 Variáveis de entrada para o modelo de remoção extraídas da grade de 1 Km de resolução da “Simulação 2” para o evento do dia 10/10/2002 às 23:00 h UTC. Base da nuvem à 2325,2 m.

	Temperatura (K)	Pressão (hPa)	Umidade (%)	Extensão vertical da nuvem (m)
Superfície – base da nuvem	297,48	875,78	56,16	
Base – topo da nuvem	276,98	624,13	100	3204,8
Precipitação Modelada		0,75 mm em 20 minutos		

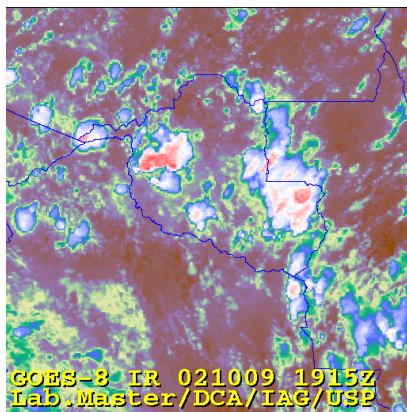
4.1.2 Evento dia 09/10/2002

Este evento teve novamente como característica principal, o aspecto fragmentado em que as células convectivas se organizaram. Sabe-se que, no sítio experimental, a precipitação observada teve início às 20:06 h UTC, e término as 21:15 h UTC, com um máximo acumulado no período de 18,5 mm. Neste caso, a simulação atmosférica foi iniciada as 00:00 h UTC do dia 09/10/2002 e terminada as 06:00 h UTC do dia 10/10/2002. Para a comparação e validação dos resultados simulados pelo modelo neste evento, foram utilizadas as imagens do satélite GOES-8 no canal do infravermelho, já que por um problema técnico, o radar esteve indisponível durante o período estudado. Nota-se na seqüência de imagens de satélite então (Figura 4-10), uma célula convectiva mais intensa na porção noroeste do Estado de Rondônia, no horário de 19:15 h UTC (Figura 4-10 (a)), que se desenvolveu rapidamente e logo atingiu uma vasta região. No entanto, a precipitação que atingiu a FNS era proveniente de uma outra célula, neste caso, de menor intensidade, como pode ser observado na imagem de satélite para as 20:15 h UTC (Figura 4-10 (b)). Observa-se ainda que, logo após o horário em que ocorreu o evento de precipitação no local estudado, todas as células formadas sobre o Estado entraram em fase de decaimento até que, na imagem de 23:15 h UTC (Figura 4-10 (f)), praticamente já não havia nebulosidade profunda na região.

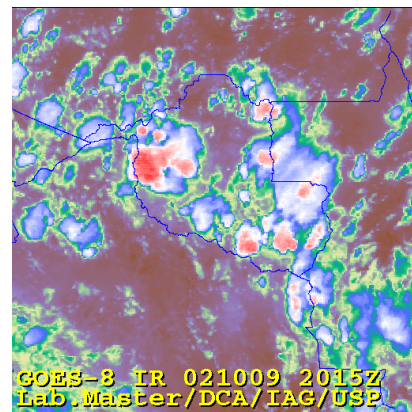
Comparando-se então, as imagens de satélite com os campos de razão de mistura de água líquida e gelo em aproximadamente 3 Km de altura simulados pelo RAMS. (Figura 4-11), observa-se que o modelo conseguiu representar a presença de

nuvens no sítio experimental no horário em que ocorreu a precipitação, ou seja, 21 h UTC (Figura 4-11 (b)).

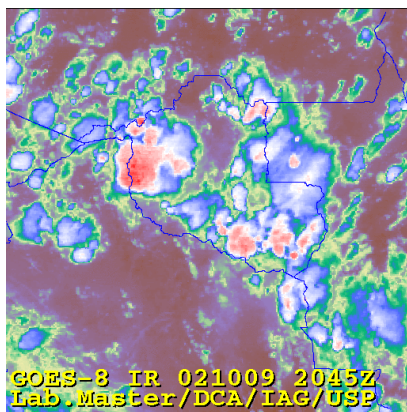
A Figura 4-12 representa os campos de precipitação acumulada em 1 hora para o período em que o evento se desenvolveu. Observa-se que o modelo simula uma região estratificada de precipitação fraca (aproximadamente 0,05 mm) no sítio experimental no horário das 21 h UTC (Figura 4-12 (b)) e um núcleo de precipitação mais intenso formado a leste do sítio de FNS, com valores de precipitação da ordem de 13,5 mm às 20 h UTC (Figura 4-12 (a)). Este núcleo, que se encontra a aproximadamente 2 Km do ponto estudado (LAT: $-10,7^{\circ}$ e LON: $-62,2^{\circ}$) será o utilizado para alimentar a simulação da remoção com o modelo B. V. 2. Observa-se ainda, na evolução temporal do campo, que o modelo representa bem a estrutura do evento, pois nos horários subseqüentes ele praticamente não encontra mais precipitação na região estudada, o que também pode ser observado nas imagens de satélite (Figura 4-10).



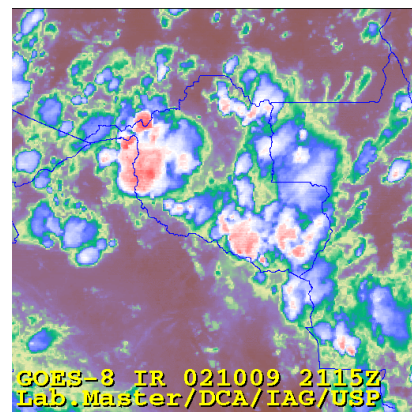
(a)



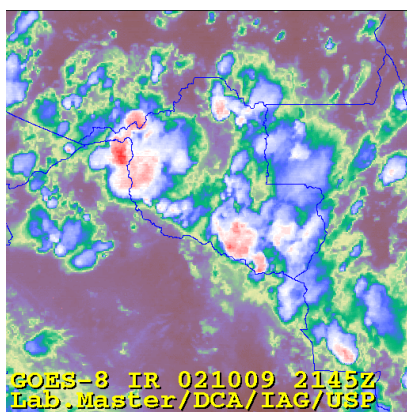
(b)



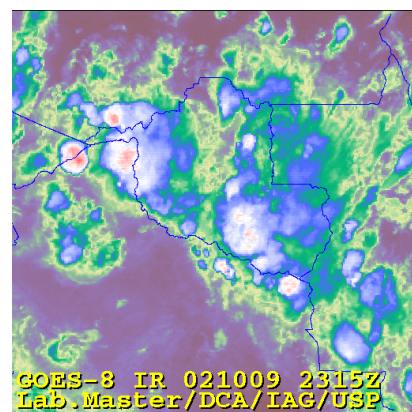
(c)



(d)



(e)



(f)

Figura 4-10 Imagens de satélite para a região de Rondônia no dia 10/10/2002 para os horários de (a) 19:15 h UTC, (b) 20:15 h UTC, (c) 20:45 h UTC, (d) 21:15 h UTC, (e) 21:45 h UTC e (f) 23:15 h UTC. Fonte: MASTER/LBA.

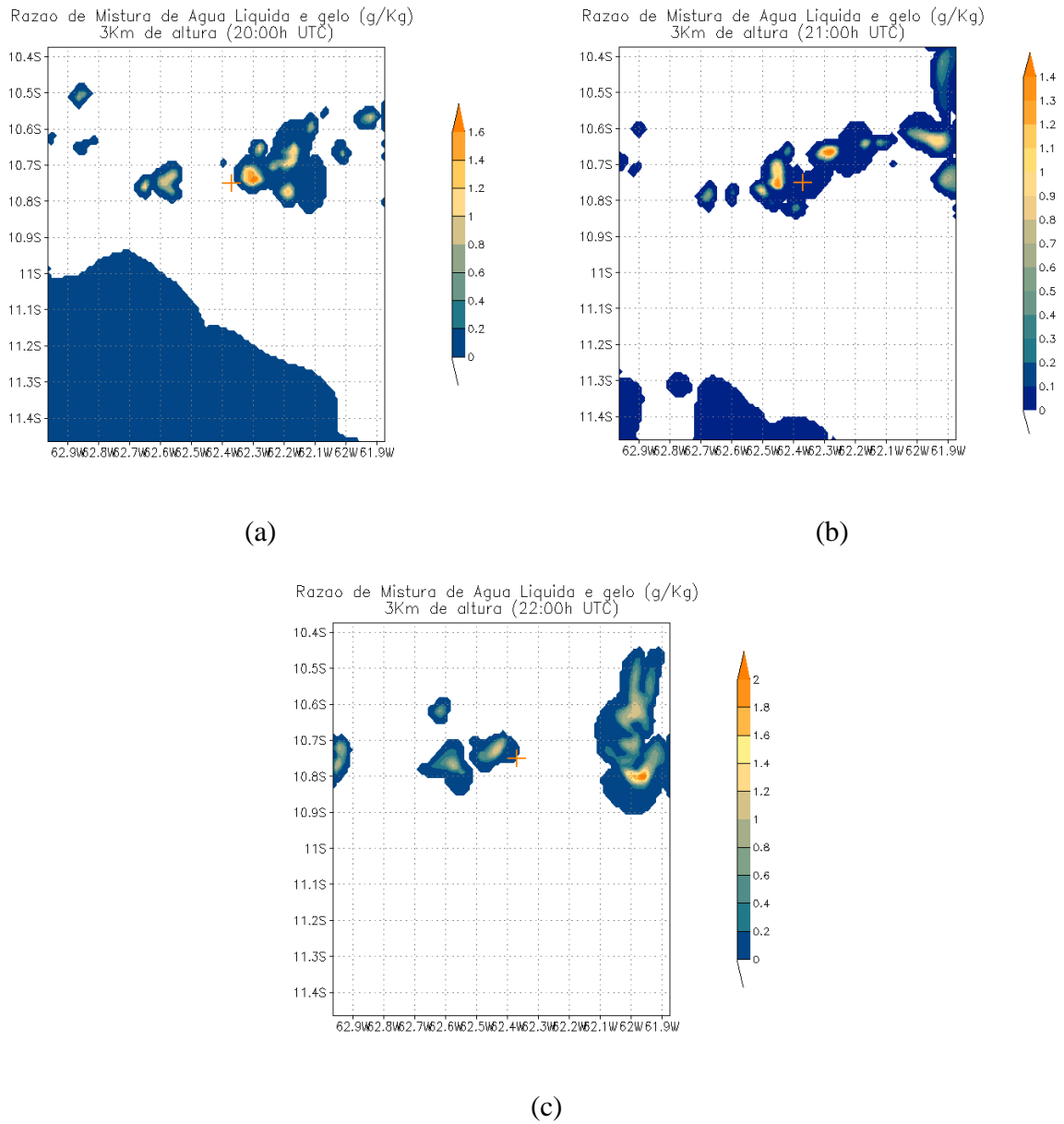


Figura 4-11 Razão de mistura de água líquida e gelo (g/kg) em 2,9 Km de altura simulada pelo modelo para o dia 09/10/2002 nos horários de (a) 20:00 h UTC, (b) 21:00 h UTC e (c) 22:00 h UTC.

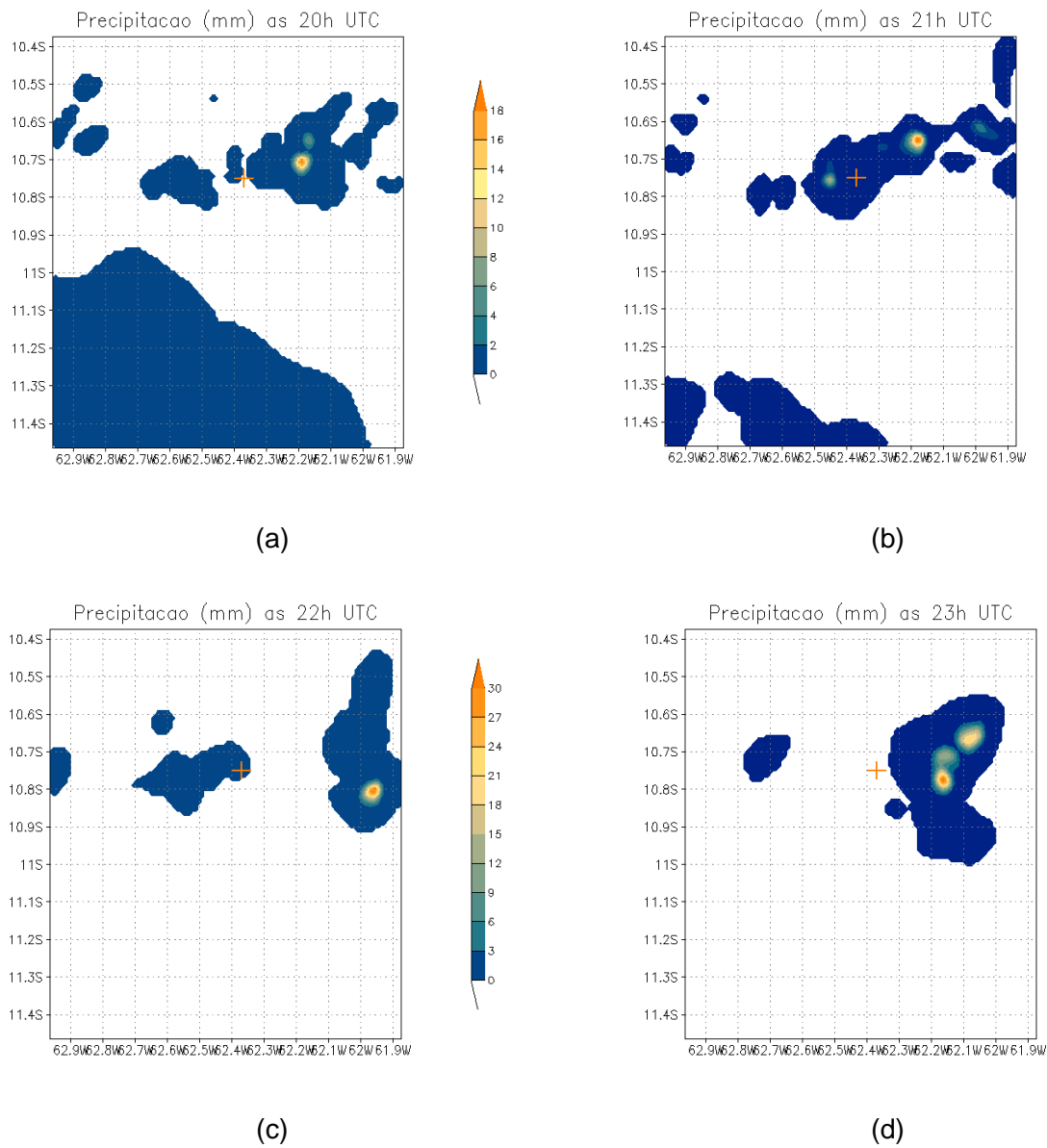


Figura 4-12 Quantidade de precipitação simulada pelo RAMS em 1 hora (mm) para os horários de (a) 20:00 h UTC, (b) 21:00 h UTC, (c) 22:00 h UTC e (d) 23:00 h UTC do dia 09/10/2002.

Ainda na tentativa de identificar e caracterizar a estrutura da precipitação simulada pelo modelo, foi gerado naquele mesmo ponto de máxima intensidade de precipitação citado anteriormente, uma evolução temporal do perfil vertical da razão de

mistura de água líquida e gelo (Figura 4-13). Observa-se que no horário das 20:00 h UTC (horário do início do evento observado e o escolhido para fornecer informações para o modelo de remoção), o modelo representa uma nuvem com maior desenvolvimento vertical e com maior razão de mistura de água líquida e gelo, da ordem de 2 g/kg, enquanto que nos horários de 23:00 h UTC e 24:00 h UTC, esta célula entra em fase de decaimento restando apenas uma nuvem mais rasa e com pouco conteúdo de água líquida (menos de 1,6 g/kg).

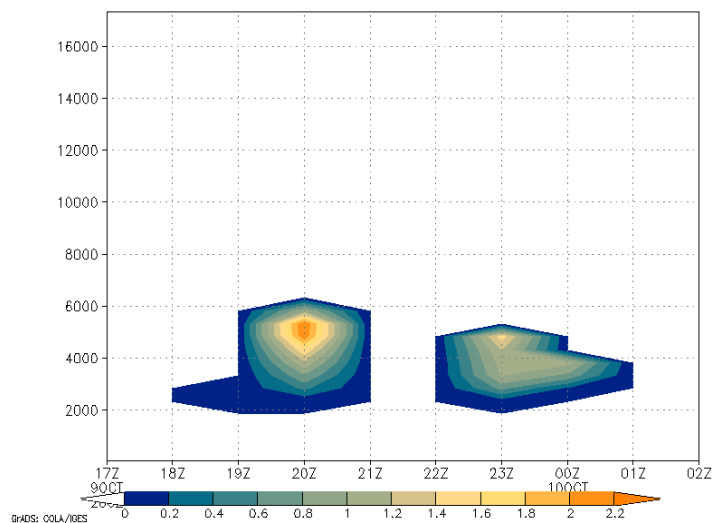


Figura 4-13 Evolução temporal do perfil vertical de razão de mistura de água líquida de nuvem e gelo para o ponto de LAT: 10,7° S e LON: 62,2° W (g/kg).

Assim, uma vez determinada a nuvem simulada que seria a fonte de dados de entrada para o modelo B. V. 2, foi gerado o gráfico do perfil vertical de conteúdo de água líquida (g/cm^3) (Figura 4-14). Nesta Figura, observa-se ainda que o modelo estimou a altura da base da nuvem em aproximadamente 1856 m de altura, e o topo em 5530 m, gerando assim, uma nuvem com cerca de 3974 m de extensão vertical.

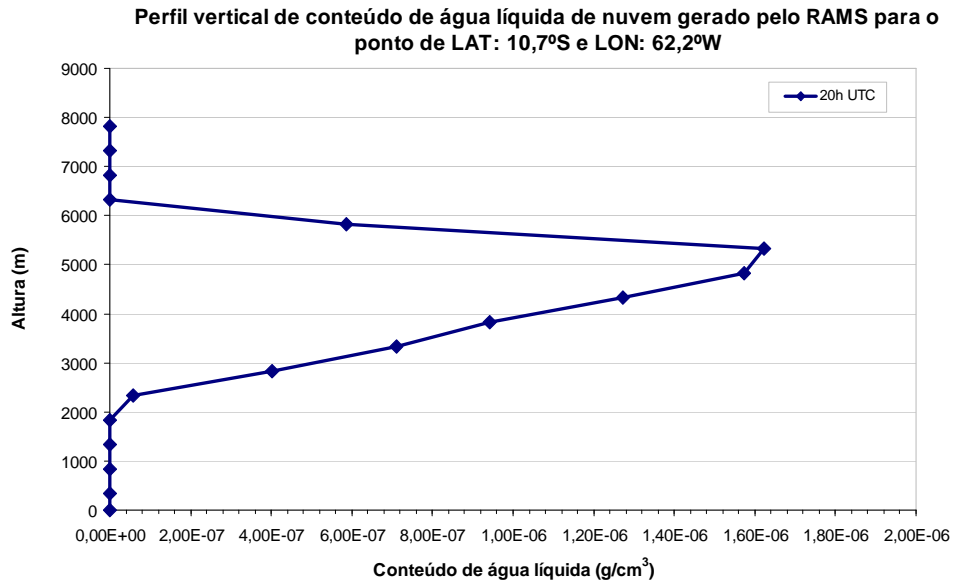


Figura 4-14 Perfil vertical conteúdo de água líquida de nuvem para o ponto de lat: 10,7° S e lon 62,2° W às 20:00 h UTC (g/cm³).

As outras variáveis extraídas da simulação atmosférica que foram utilizados na modelagem da remoção (seção 4.2) podem ser observadas na Tabela 4-3.

Tabela 4-3 Variáveis de entrada para o modelo de remoção extraídas da grade de 1 Km de resolução da simulação atmosférica para evento do dia 09/10/2002 às 20:00 h UTC. Base da nuvem à 1856 m.

	Temperatura (K)	Pressão (hPa)	Umidade (%)	Extensão vertical da nuvem (m)
Superfície – base da nuvem	299,35	889,97	62,7	
Base – topo da nuvem	277,99	613,56	100	3974,0
Precipitação Modelada		13,65 mm em 1 hora		

4.2 Resultados do modelo de remoção B. V. 2

4.2.1 Simulações realizadas

Foram realizadas com o modelo de remoção, algumas simulações com o objetivo de testar a sensibilidade do modelo à alguns parâmetros de entrada, como por exemplo, alturas da base e da extensão vertical da nuvem e quantidade de precipitação durante os eventos estudados. Além destas, foram realizadas ainda, algumas simulações para o evento do dia 10/10/2002 (sulfato) a fim de verificar a melhoria dos resultados devido à implementação da função gama de distribuição de gotículas de nuvem presente no modelo RAMS (Walko *et al.* (1995)) com parâmetro de forma 5 em relação à função exponencial de distribuição proposta por Levine & Schwartz (1982) já disponível no código da versão adaptada do modelo B. V. 2.

Desta forma, serão apresentadas a seguir, as características e os principais resultados das simulações realizadas para os eventos dos dias 10 e 09 de outubro de 2002 (seções 4.2.2 e 4.2.3 respectivamente). Neste capítulo, o processo de remoção que ocorre dentro da nuvem será dividido na apresentação das figuras, para facilitar a interpretação dos resultados, em duas componentes: uma responsável apenas pelo processo de nucleação de gotas, e outra pelos demais processos que ocorrem dentro da nuvem.

4.2.2 Evento dia 10/10/2002

4.2.2.1 Dados de entrada

Para este evento, as concentrações médias iniciais utilizadas para os gases SO_2 e HNO_3 e para os particulados SO_4^{2-} e NO_3^- na camada entre a superfície e a base da nuvem são apresentadas na Tabela 4-4. Vale ressaltar que, neste dia, não foram coletados dados de amônia e do particulado amônio na superfície por falhas nos equipamentos e, por este motivo, estes poluentes não serão avaliados neste evento.

Tabela 4-4 Concentrações iniciais médias dos poluentes na camada entre a superfície e a base da nuvem utilizadas como dados de entrada do modelo de remoção para evento do dia 10/10/2002

	Dia e hora da observação	HNO_3 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	NO_3^- ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	SO_2 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	SO_4^{2-} ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
gás	10/10/2002 05:20PM	0,413		0,027	
aerossol	10/10/2002 06:00PM		0,254		0,446

Considerando que dentro da nuvem ocorre um decréscimo exponencial das concentrações com a altura (Stull (1988)), os valores médios utilizados nesta camada (entre a base e o topo da nuvem) para o SO_2 e HNO_3 no caso dos gases, e SO_4^{2-} e NO_3^- para os particulados podem ser observados na Tabela 4-5.

Tabela 4-5 Concentrações médias dos poluentes na camada entre a base e o topo da nuvem utilizadas como dados de entrada para evento do dia 10/10/2002.

	HNO_3 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	NO_3^- ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	SO_2 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	SO_4^{2-} ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
gás	0,076		0,005	
aerossol		0,047		0,082

Assim, os perfis verticais das concentrações dos diferentes poluentes estudados neste evento e utilizados na modelagem da remoção podem ser observados na Figura 4-15.

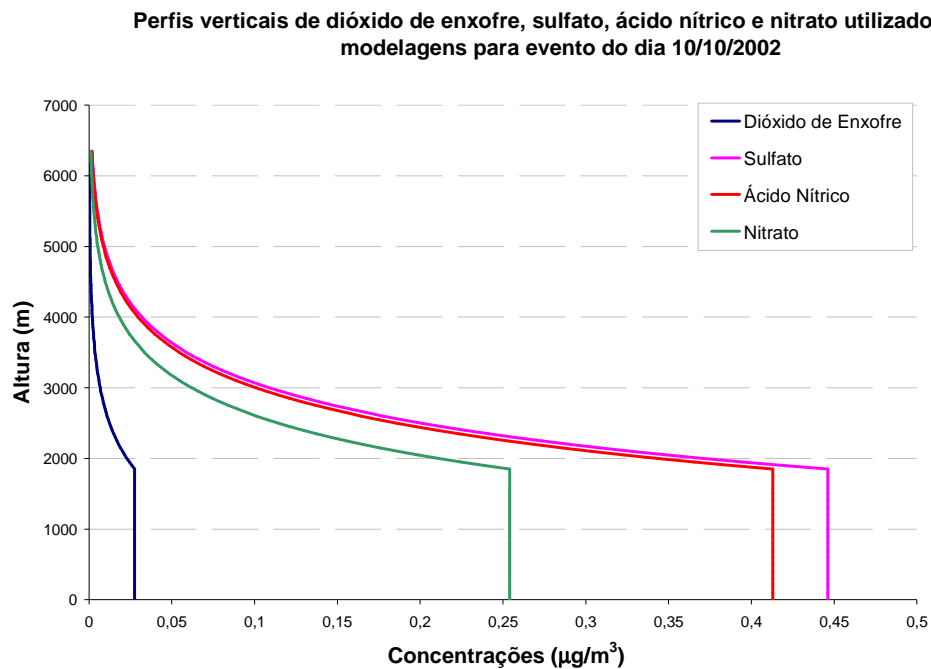


Figura 4-15 Perfis verticais das concentrações de SO_2 , SO_4^{2-} , HNO_3 e NO_3^- iniciais para dia 10/10/2002 utilizados nas modelagens.

Vale ressaltar que, este evento teve início às 18:06 h UTC e término às 18:19 h UTC, durando aproximadamente 20 minutos e com um valor de água precipitada de apenas 0,39 mm. Assim, foi encontrado nesta água, um total de SO_4^{2-} de 1689,1 $\mu\text{g/L}$, enquanto que o total de NO_3^- encontrado foi de 4718,8 $\mu\text{g/L}$.

4.2.2.2 Sulfato particulado e dióxido de enxofre gás

Observado vs simulado para diferentes espectros de gotículas de nuvem

A fim de verificar a melhoria na representação física da remoção de SO_4^{2-} e SO_2 da atmosfera devido à implementação de uma função de distribuição de gotículas de nuvem que se ajustasse melhor às condições observadas, foram realizadas quatro simulações: as duas primeiras utilizando os resultados da terceira (4 km de resolução espacial) e quarta grade (1 km de resolução espacial) do RAMS para os horários de 20:00 h UTC e 23:00 h UTC respectivamente, e utilizando a função de distribuição de gotículas proposta por Levine & Schwartz (1982) e as outras duas, para estes mesmos horários, porém utilizando a função gama de distribuição de gotículas de nuvem com parâmetro de forma 5.

Observa-se na Figura 4-16, que mesmo os valores de concentração de sulfato na água de chuva sendo subestimados em todas as simulações, houve uma melhoria, ainda que apenas 3,1% para o horário das 20 h UTC e 23,2% para o horário das 23 h UTC, nos resultados devido a representação mais realística do espectro de gotículas. Observa-se ainda que, por apresentar valor de quantidade de precipitação mais

próximo ao observado (0,75 mm), o horário das 23:00 h UTC apresentou melhores resultados de concentração de SO_4^{2-} na água de chuva para ambos os espectros utilizados, atingindo valores de 352,89 $\mu\text{g/L}$ para o espectro de Levine & Schwartz (1982) e 391,35 $\mu\text{g/L}$ utilizando a função gama.

Analisando a contribuição de cada tipo de remoção separadamente (tanto dentro quanto abaixo da nuvem), observa-se uma predominância dos processos que ocorrem no interior das nuvens, sendo estes responsáveis por cerca de 95% da concentração de sulfato encontrada na água de chuva (Tabela 4-7). Deste valor, aproximadamente 70% pode ser diretamente associado à remoção dos poluentes por nucleação de gotas (Pandis *et al.* (1990)). Assim, verifica-se que a remoção que ocorre abaixo da base da nuvem por gotas precipitantes é responsável por apenas 5% do sulfato encontrado na água de chuva analisada (ver Tabela 4-7 e Tabela 4-9), indicando uma fraca influência destes processos neste evento estudado. Observa-se ainda que, no horário das 23:00 h UTC, este percentual de remoção abaixo da nuvem atinge seu valor máximo (aproximadamente 5,4%), o que pode estar associado a uma melhor representação da quantidade de precipitação pelo modelo RAMS neste horário.

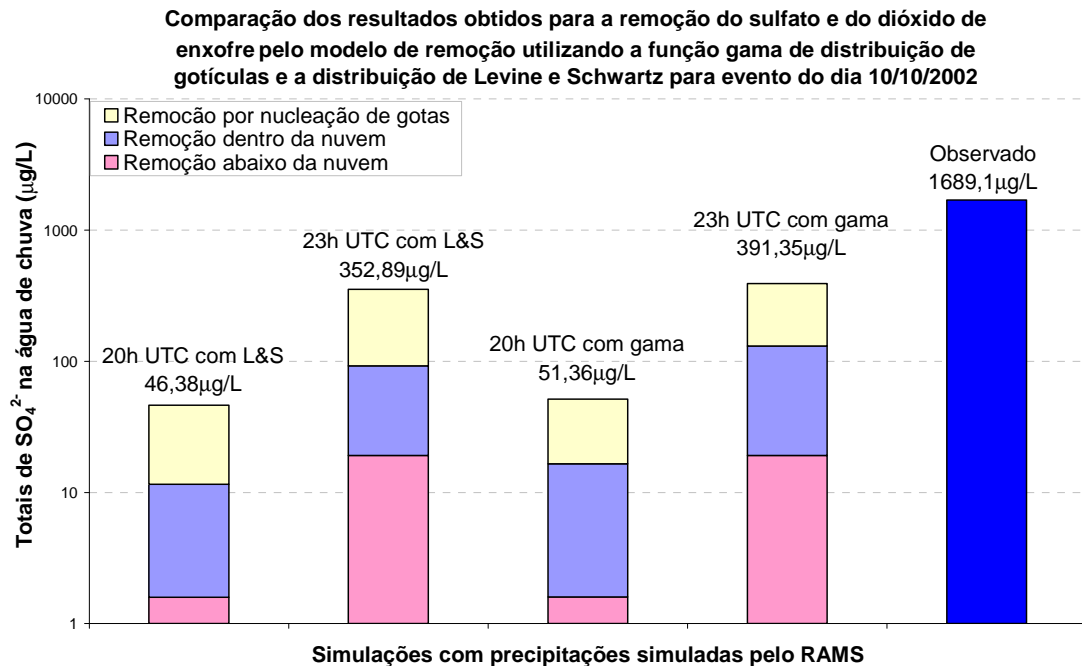


Figura 4-16 Comparação dos resultados obtidos pelo modelo de remoção para cada etapa (nucleação de gotas, processos dentro da nuvem e abaixo dela) utilizando representação do espectro de gotículas de nuvem pela função gama com parâmetro de forma 5 e pela função exponencial proposta por Levine & Schwartz (1982) para os dois horários selecionados para estudo: 20:00 h UTC e 23:00 h UTC, com a concentração total de sulfato observada na água de chuva.

Uma vez assumindo que a função gama ajustada para condições tropicais representa mais adequadamente o espectro de gotículas das nuvens observadas (maior concentração de gotículas com diâmetros entre $5 \mu\text{m}$ e $10 \mu\text{m}$), apenas esta representação foi utilizada nos demais testes realizados.

Observado vs simulado para diferentes precipitações

A fim de verificar o impacto da quantidade de precipitação, foi realizado uma outra simulação utilizando os dois horários selecionados, a quantidade de precipitação

observada (0,39 mm) e as alturas de base e topo de nuvem simuladas pelo RAMS. Neste caso, observa-se na Figura 4-17 uma melhora considerável nos valores de concentração da espécie química avaliada encontrados na água de chuva pelo modelo B. V. 2 para os dois horários avaliados, mostrando assim, a sensibilidade do mesmo a esta variável. Observa-se ainda, que a simulação para o horário das 20:00 h UTC apresentou melhores resultados, conseguindo representar até 60,8% do sulfato encontrado na água de chuva (1026,55 $\mu\text{g/L}$) do que para o horário de 23:00 h UTC (749,96 $\mu\text{g/L}$), que o modelo representou apenas 44,4% do mesmo. Esta diferença pode estar associada a uma melhor representação da extensão vertical da nuvem pelo modelo atmosférico para o horário das 20:00 h UTC, que fornece espessura de camada de nuvem de aproximadamente 4474 m, enquanto que às 23:00 h UTC, a altura do topo da nuvem em relação a sua base foi de apenas 3204,8 m. Dessa forma, fica evidente a sensibilidade do modelo de remoção a esta variável, extensão vertical da camada de nuvem, gerando assim, a necessidade de uma boa representação da mesma no modelo B. V. 2.

Neste caso, também se observa a predominância dos processos de remoção destes poluentes que ocorrem no interior da nuvem (cerca de 95%) em relação aos que ocorrem abaixo da mesma (aproximadamente 4,5%)(ver Tabela 4-9). Este fato pode estar associado a diversos fatores, como por exemplo, as características específicas das nuvens que se desenvolvem na região da floresta amazônica no período de transição entre as estações seca e chuvosa, como por exemplo, a grande extensão vertical e alta concentração de CCN's provenientes das queimadas na região.

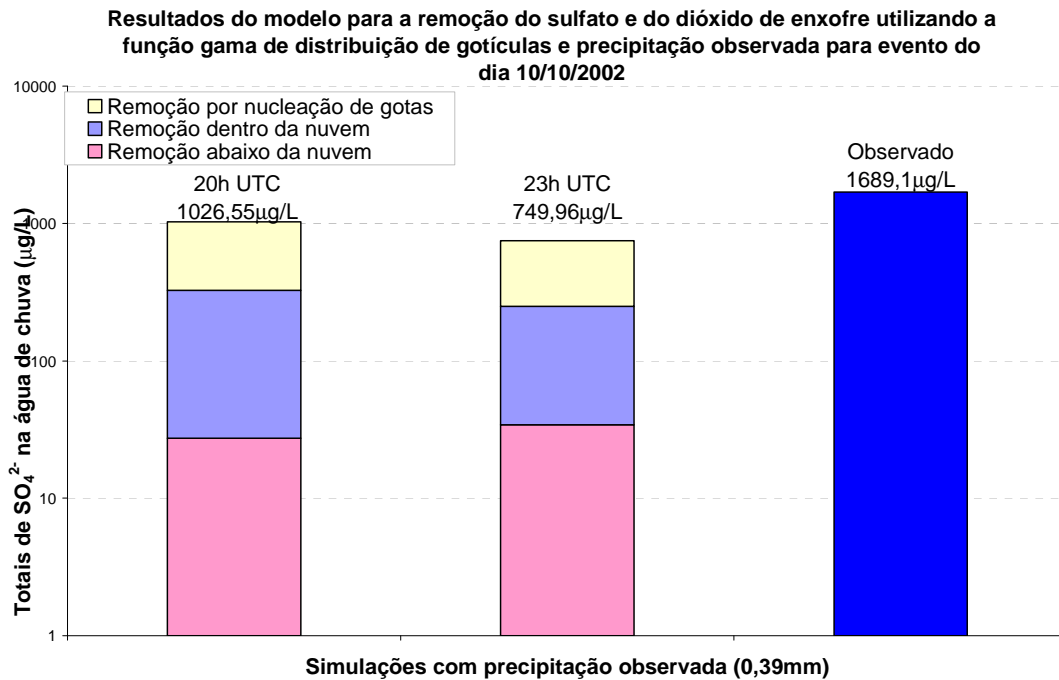


Figura 4-17 Comparação dos resultados obtidos pelo modelo de remoção para os horários de 20:00 h UTC e 23:00 h UTC com a concentração total de sulfato encontrada na água de chuva, utilizando a quantidade de precipitação observada no sítio experimental da FNS.

Observado vs simulado para diferentes extensões verticais das nuvens

No entanto, observa-se nestas simulações, que o RAMS estima alturas para os topos das nuvens de até 6000 m neste evento, o que não pode ser comprovado observacionalmente durante o período de transição em Rondônia. Sapucci *et al.* (2004) e Andreae *et al.* (2004), mostraram que, durante este período, a altura média dos topos das nuvens (considerando nuvens convectivas e estratiformes) era de aproximadamente 16 Km. Na Figura 4-18, observa-se uma representação da estrutura vertical das nuvens médias durante o período de transição. Assim, tem-se o perfil vertical da refletividade do radar para nuvens que tiveram duração de 30 a 60 minutos, de 60 a 120 minutos e de mais de 120 minutos. Nota-se que, nos três casos, a altura

média do topo das nuvens (isolinhas de 10 dBZ) encontra-se em aproximadamente 16 Km de altura, concordando com o encontrado pelos autores mencionados anteriormente. Assim, conclui-se que, em ambas as simulações atmosféricas realizadas, há uma subestimativa da altura dos topos das nuvens calculadas pelo RAMS.

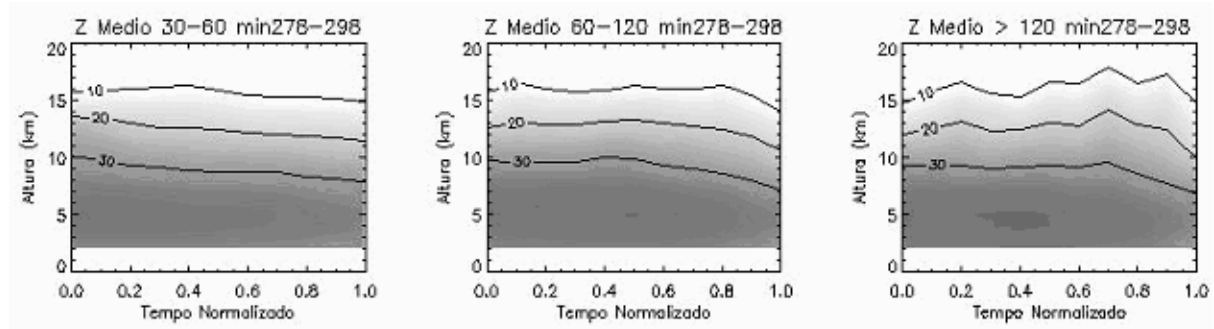


Figura 4-18 Perfis verticais de refletividade do radar médios para as nuvens que ocorreram durante o período de transição entre as estações seca e chuvosa na região amazônica, para eventos que duraram entre 30 e 60 minutos, 60 a 120 minutos e acima de 120 minutos.

Para a verificação do impacto desta variação de profundidade da camada de nuvem, foram realizadas quatro novas simulações utilizando as bases das nuvens simuladas pelo RAMS, mas com a extensão vertical de 14 Km em todos os casos. Desta forma, para as 20:00 h UTC, o topo da nuvem ficou em 15,8 Km de altura e para as 23:00 h UTC, em 16,3 Km de altura. Neste caso, as duas primeiras simulações foram realizadas utilizando as quantidades de precipitação simuladas pelo RAMS e as duas últimas, utilizando a quantidade de precipitação observada para os dois horários considerados.

Observa-se que, quando consideramos as precipitações simuladas, para o horário das 20:00 h UTC o modelo subestima consideravelmente as concentrações na

água de chuva, simulando apenas 9,31% do sulfato observado na água de chuva (157,33 $\mu\text{g/L}$), enquanto que para o horário das 23:00 h UTC, o modelo consegue representar de maneira adequada (97,4%) as concentrações de sulfato observadas na água de chuva (1645,05 $\mu\text{g/L}$), como pode ser observado na Figura 4-19. Esta diferença pode novamente estar associada a uma representação mais realística da precipitação simulada para o horário das 23:00 h UTC, fazendo com que o resultado final se aproximasse bastante do observado.

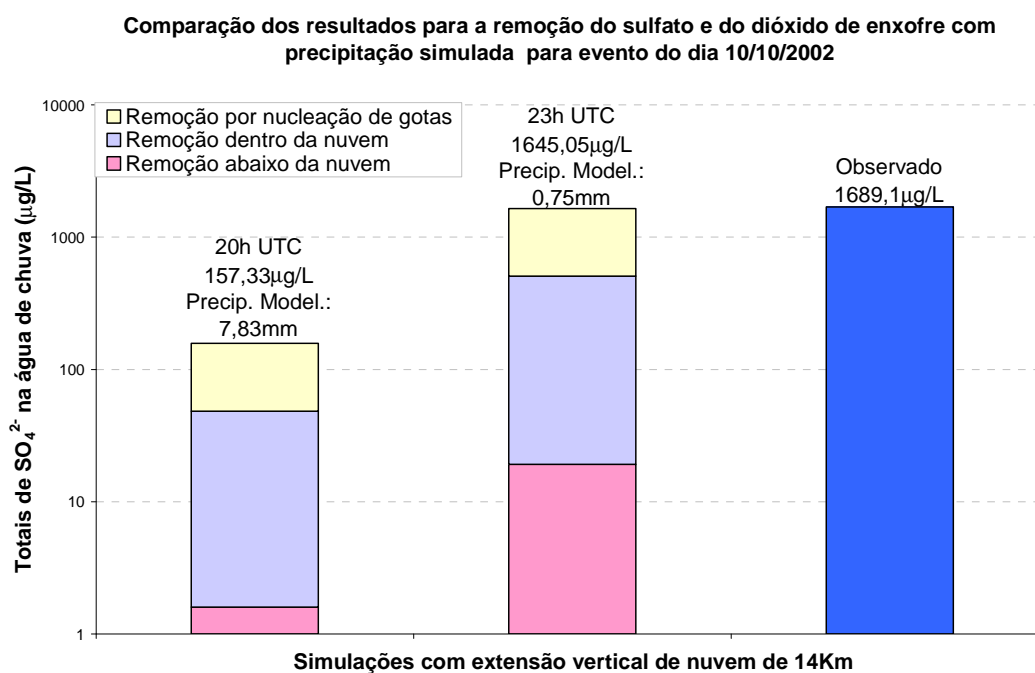


Figura 4-19 Comparação dos resultados obtidos pelo modelo de remoção para os horários de 20:00 h UTC e 23:00 h UTC com a concentração total de sulfato encontrada na água de chuva, utilizando a quantidade de precipitação simulada pelo RAMS e com extensão vertical da nuvem observada.

Já nos casos onde foi utilizada a precipitação observada e extensão vertical da nuvem de 14 Km, nota-se que, em ambos os casos o modelo superestima as concentrações de sulfato na água de chuva (aproximadamente 3000 $\mu\text{g/L}$), mostrando assim, pouca sensibilidade do modelo às variações das outras variáveis de entrada simuladas pelo modelo atmosférico, como temperatura, umidade relativa e pressão neste caso (Figura 4-20), concordando com o obtido por Golçalves (1997).

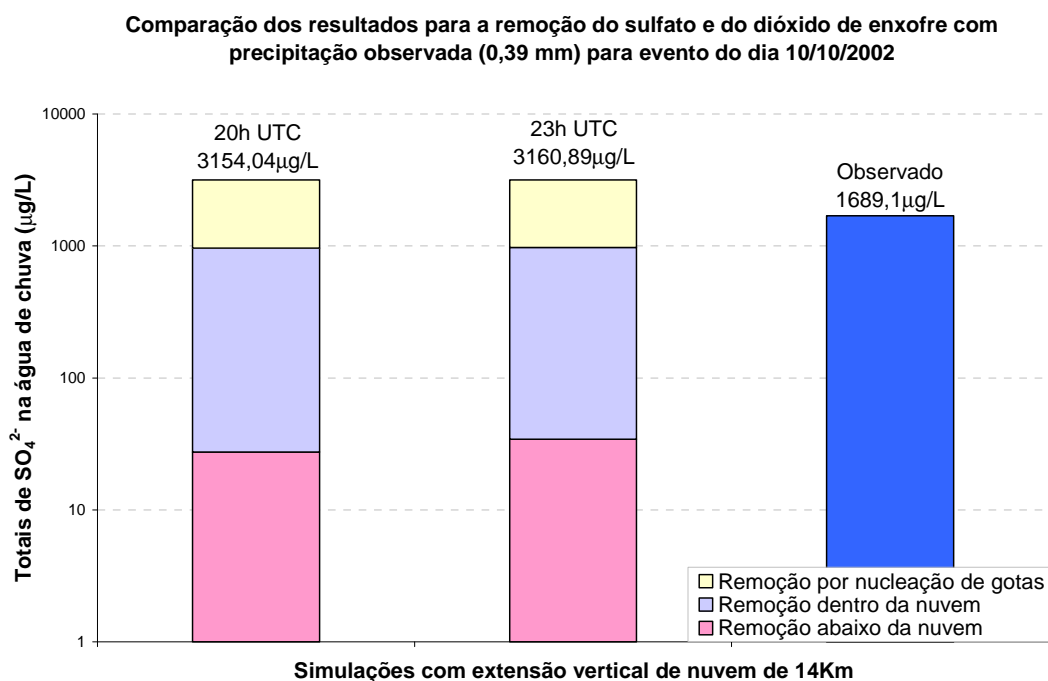


Figura 4-20 Comparação dos resultados obtidos pelo modelo de remoção para os horários de 20:00 h UTC e 23:00 h UTC com a concentração total de sulfato encontrada na água de chuva, utilizando a quantidade de precipitação e extensão vertical da nuvem observadas.

Resumo parcial para a remoção do sulfato e do dióxido de enxofre (10/10/2002)

De uma maneira geral, observa-se em todas as simulações realizadas para estes poluentes, uma maior contribuição dos processos de remoção que ocorrem dentro da nuvem (aproximadamente 95%) do que os que ocorrem abaixo dela (cerca de 5%). Este fato pode provavelmente estar associado à alta concentração de aerossóis na região provenientes de queimadas (além de aerossóis biogênicos) no período estudado, favorecendo assim, a remoção por nucleação de gotas.

Além disso, o evento estudado teve duração de precipitação de apenas 20 minutos, além de chuva fraca associada, fazendo assim, com que a contribuição da remoção abaixo da nuvem fosse menor. Outro fator que deve ainda ser considerado: a baixa altura da base das nuvens no período do evento estudado, fazendo com que as gotas precipitantes tivessem uma altura menor para interagir e coletar o aerossol.

As Tabelas 4-6, 4-7, 4-8 e 4-9 mostram então, um resumo dos resultados das simulações para remoção do sulfato e do dióxido de enxofre realizadas para este evento, bem como a contribuição específica de cada processo físico nos resultados. A Tabela 4-6 apresenta os resultados das simulações realizadas utilizando a precipitação simulada pelo RAMS como dado de entrada para o modelo B. V. 2 em $\mu\text{g/L}$ de sulfato na água de chuva. O resultado em porcentagem de contribuição para cada etapa do processo de remoção (nucleação, abaixo da nuvem e dentro da nuvem) pode ser observado na Tabela 4-7. Já a Tabela 4-8 apresenta os resultados das simulações realizadas utilizando a precipitação observada no sítio experimental de FNS em $\mu\text{g/L}$ de sulfato e os resultados em porcentagem de contribuição dos tipos de remoção podem ser observados na Tabela 4-9.

Tabela 4-8 Resumo dos resultados das simulações realizadas para a remoção do sulfato e do dióxido de enxofre, para o dia 10/10/2002, que utilizaram a precipitação observada como dado de entrada, em concentração de sulfato encontrada na água de chuva ($\mu\text{g/L}$).

	Precipitação observada e distribuição de gotículas por gama (parâmetro de forma 5)		Altura da camada de nuvem de 14 Km e precipitação observada	
	20:00 h (0,39 mm)	23:00 h (0,39 mm)	20:00 h (0,39 mm)	23:00 h (0,39 mm)
Dentro da nuvem	299,74	214,71	938,00	938,00
Abaixo da nuvem	27,38	34,23	27,38	34,23
Nucleação de gotas	699,43	501,01	2188,66	2188,66
Total	1026,55	749,96	3154,04	3160,89

Tabela 4-9 Resumo dos resultados das simulações realizadas para a remoção do sulfato e do dióxido de enxofre, para o dia 10/10/2002, que utilizaram a precipitação observada como dado de entrada, em porcentagem de contribuição de cada etapa do processo de remoção (nucleação de gotas, dentro da nuvem e abaixo da nuvem) (%).

	Precipitação observada e distribuição de gotículas por gama (parâmetro de forma 5)		Altura da camada de nuvem de 14 Km e precipitação observada	
	20:00 h (0,39 mm)	23:00 h (0,39 mm)	20:00 h (0,39 mm)	23:00 h (0,39 mm)
Dentro da nuvem	29,2	28,6	29,7	29,7
Abaixo da nuvem	2,7	4,6	0,9	1,1
Nucleação de gotas	68,1	66,8	69,4	69,2
Total	100	100	100	100

4.2.2.3 Nitrato particulado e ácido nítrico gás

Para estas espécies químicas, foram realizadas praticamente as mesmas simulações descritas anteriormente, no entanto, a distribuição de gotículas proposta por Levine & Schwartz (1982) não foi mais utilizada, uma vez verificado que a função gama representa de maneira mais adequada as propriedades das nuvens na região durante o período estudado. Assim, foram realizadas algumas simulações a fim de verificar a interação do nitrato e do ácido nítrico com as gotículas de nuvem e gotas de chuva, tanto dentro como abaixo da nuvem.

Observado vs simulado com variáveis de entrada simuladas pelo RAMS

Nas duas primeiras simulações realizadas, foram utilizadas todas as variáveis de entrada (pressão, temperatura, umidade relativa, altura da base e topo da nuvem e precipitação) estimadas pelo modelo atmosférico. Observa-se na Figura 4-21 que, neste caso, o modelo subestima os valores de concentração de nitrato na água de chuva, estimando valores de 38,1 µg/L para o horário das 20:00 h UTC e 535,8 µg/L (subestimativa de 61,9%) para o horário das 23:00 h UTC. Nota-se que a concentração estimada para o horário das 23:00 h UTC foi mais próxima da observada (38,1%), como pôde ser observado também nas simulações para a remoção do sulfato e do dióxido de enxofre, o que possivelmente pode estar associada a uma melhor representação da quantidade de precipitação pelo RAMS para este horário. Vale ressaltar que, para este evento, este foi o poluente mais abundante encontrado na água de chuva analisada.

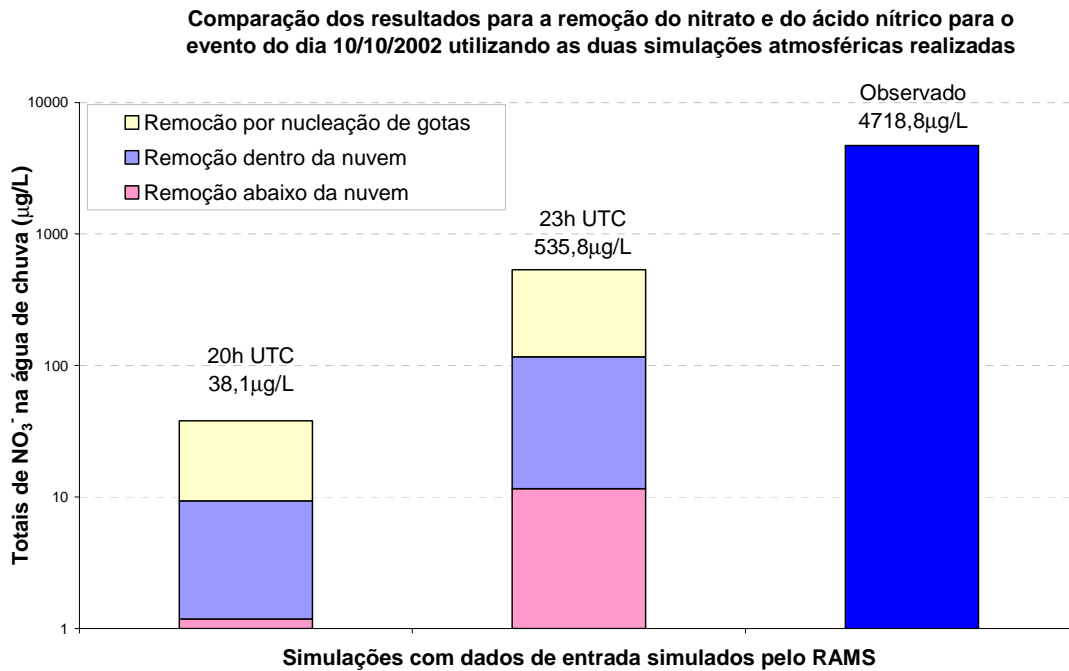


Figura 4-21 Comparação dos resultados obtidos pelo modelo de remoção para o NO_3^- e HNO_3 utilizando as condições iniciais simuladas pelo modelo atmosférico RAMS (2 horários selecionados para estudo) para evento do dia 10/10/2002.

Observado vs simulado para diferentes precipitações

Nas terceira e quarta simulações realizadas, foram utilizadas as precipitações observadas e as outras variáveis simuladas pelo RAMS para os mesmos horários avaliados. Neste caso, observa-se (Figura 4-22) que, para ambos os horários, as concentrações desta espécie química estimada pelo modelo de remoção se aproximaram um pouco mais da observada na água de chuva analisada, gerando valores de concentração, de 840 $\mu\text{g/L}$ para o horário das 20:00 h UTC e 1028,4 $\mu\text{g/L}$ (21,85%) de nitrato para o horário das 23:00 h UTC, ressaltando a importância da boa representação da quantidade de precipitação para o modelo B. V. 2.

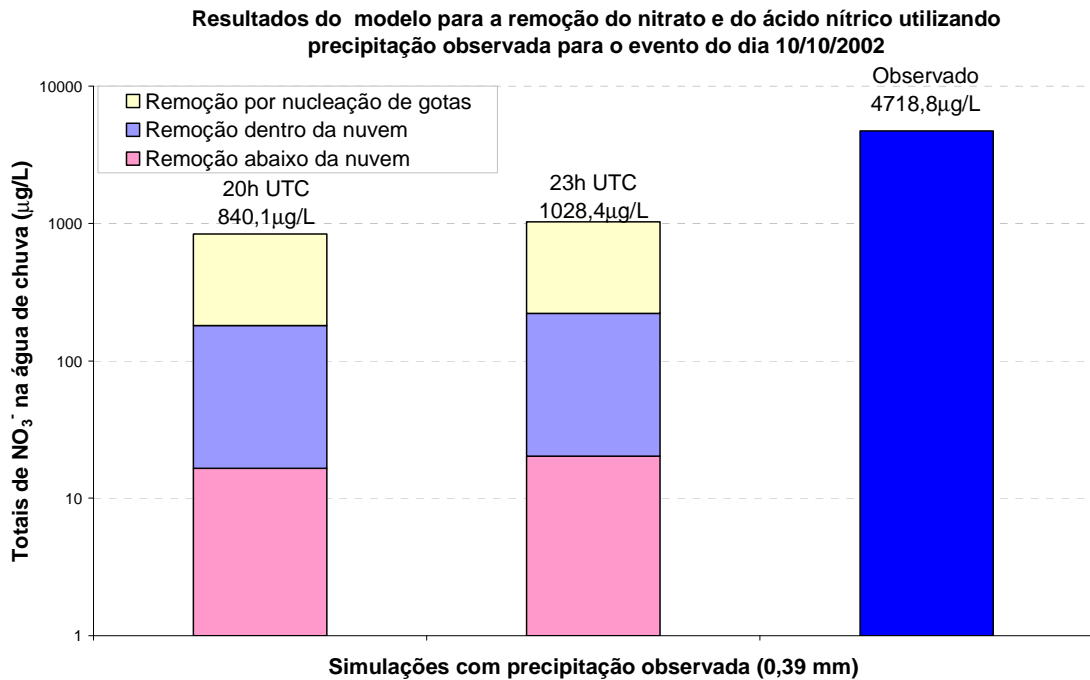


Figura 4-22 Comparação dos resultados obtidos pelo modelo de remoção para o NO_3^- e HNO_3 para os horários de 20:00 h UTC e 23:00 h UTC com a concentração total de nitrato observada na água de chuva, utilizando a quantidade de precipitação observada na FNS.

Observado vs simulado para diferentes extensões verticais das nuvens

As quatro últimas simulações para a remoção do nitrato e do ácido nítrico, foram realizadas utilizando a extensão vertical das nuvens de 14 Km, no entanto, para as duas primeiras, foram utilizadas as precipitações simuladas pelo RAMS para os horários das 20:00 h UTC e 23:00 h UTC respectivamente. Já nas duas últimas, a precipitação utilizada foi a observada. Comparando os resultados obtidos com as precipitações simuladas (Figura 4-23), novamente observa-se uma melhor representação dos resultados quando utilizada uma extensão vertical de nuvem mais próxima da observada nas nuvens típicas da região estudada, no entanto, os resultados

ainda se apresentam subestimados (concentração de 220,53 $\mu\text{g/L}$ para o horário das 20:00 h UTC, que representa um total de 4,7% do total de nitrato encontrado na água de chuva analisada e 2301,6 $\mu\text{g/L}$ para o horário das 23:00 h UTC, que representa um total de 48,8%)

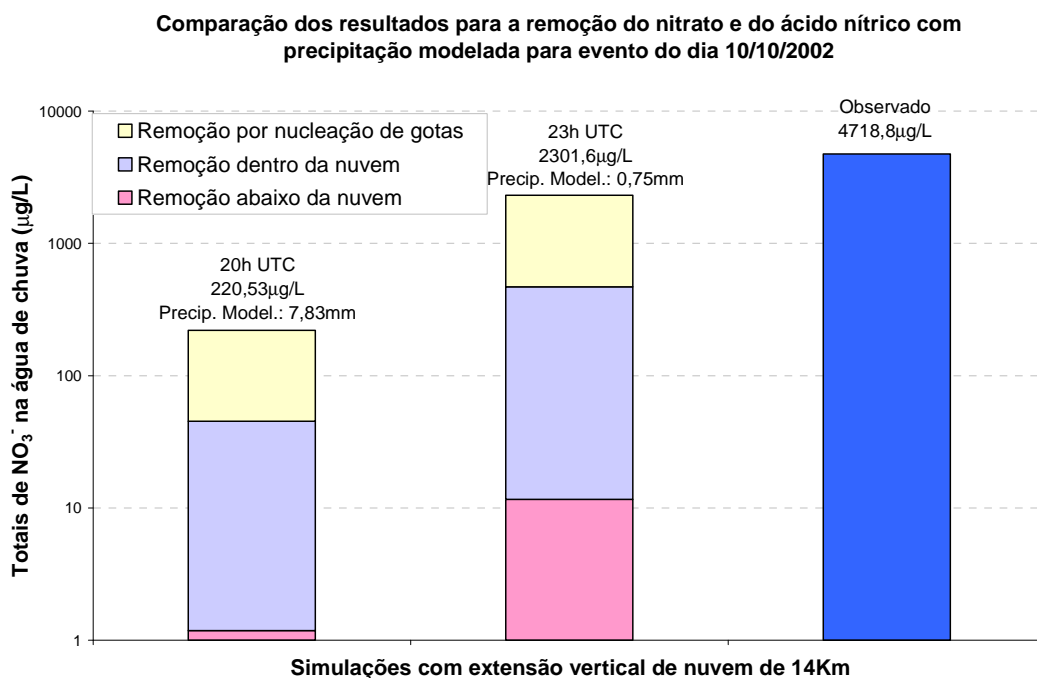


Figura 4-23 Comparação dos resultados obtidos pelo modelo de remoção para os horários de 20:00 h UTC e 23:00 h UTC com a concentração total de nitrato encontrada na água de chuva, utilizando a quantidade de precipitação simulada pelo RAMS e com extensão vertical da nuvem observada.

Já nas duas últimas simulações (Figura 4-24), quando utilizado o valor de precipitação observado (de 0,39 mm), o modelo de remoção consegue estimar valores de concentrações totais na água de chuva, de 4420,4 $\mu\text{g/L}$ para o horário das 20:00 h UTC e 4424,2 $\mu\text{g/L}$ para o horário das 23:00 h UTC, bem próximos do encontrado nas observações, chegando a conseguir representar até 93,8% do total de nitrato

encontrado na água de chuva analisada (4718,8 $\mu\text{g/L}$). Este resultado sugere assim, a validade do modelo em representar fisicamente os processos de remoção que ocorrem tanto dentro quanto abaixo das nuvens, quando utilizadas condições iniciais bastante próximas à realidade.

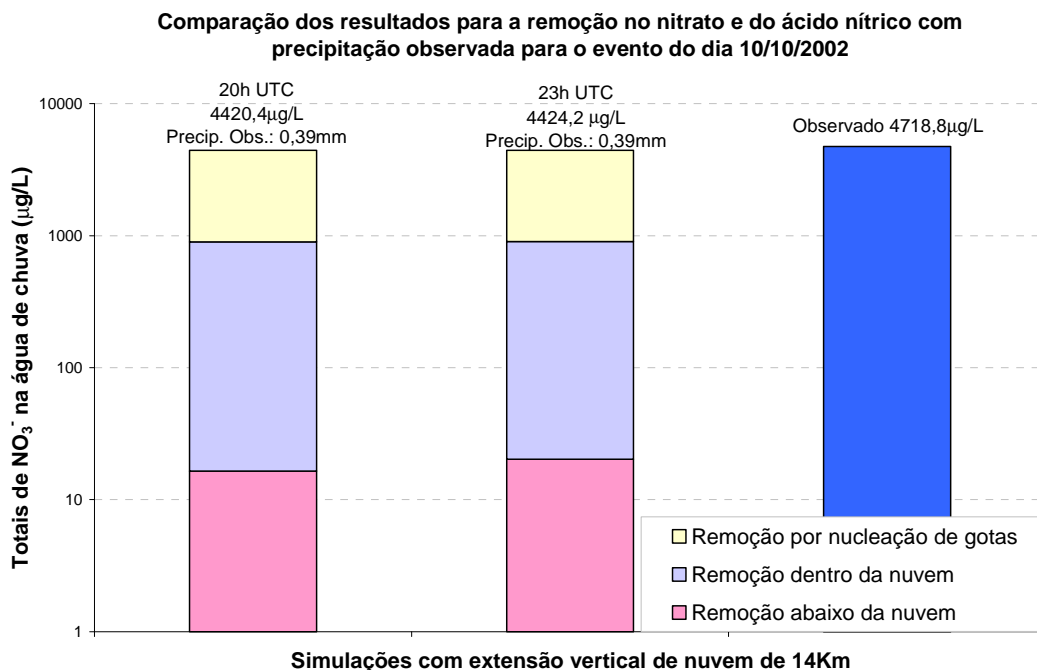


Figura 4-24 Comparação dos resultados obtidos pelo modelo de remoção para os horários de 20:00 h UTC e 23:00 h UTC com a concentração total de nitrato encontrada na água de chuva, utilizando a quantidade de precipitação e extensão vertical da nuvem observadas.

Resumo parcial para a remoção do nitrato e do ácido nítrico (10/10/2002)

A Tabela 4-10 mostra então, um resumo dos resultados obtidos para as simulações realizadas para a remoção do nitrato e ácido nítrico, em concentração da espécie química por litro de água de chuva. Já a Tabela 4-11 apresenta os resultados

em termos das contribuições específicas de cada etapa da remoção. Pode-se ressaltar mais uma vez, a predominância dos processos de remoção que ocorrem dentro da nuvem, sobretudo do processo de nucleação de gotículas, que juntos, neste caso, chegam a representar até 98% da concentração total de nitrato encontrada na água de chuva pelas simulações. Além disso, nota-se que a simulação que obteve o melhor resultado foi a que utilizou como dado de entrada a extensão vertical de nuvem e precipitação observada para a simulação atmosférica para o horário das 23 h UTC, mostrando assim, a forte sensibilidade do modelo a estas variáveis. Observa-se ainda que, de maneira geral, a remoção do nitrato e do ácido nítrico pelos processos que ocorrem abaixo da nuvem é ligeiramente menor (cerca de 1%) que a do sulfato.

Tabela 4-10 Resumo dos resultados das simulações realizadas para a remoção do nitrato e ácido nítrico, para o dia 10/10/2002, em concentração de nitrato encontrada na água de chuva ($\mu\text{g/L}$).

	Distribuição de gotículas por gama com parâmetro de forma 5		Altura da camada de nuvem de 14 Km e precipitação simulada pelo RAMS		Precipitação observada e distribuição de gotículas por gama (parâmetro de forma 5)		Altura da camada de nuvem de 14 Km e precipitação observada	
	20:00 h (7,83mm)	23:00 h (0,75mm)	20:00 h (7,83mm)	23:00 h (0,75mm)	20:00 h (0,39mm)	23:00 h (0,39mm)	20:00 h (0,39mm)	23:00 h (0,39mm)
Dentro da nuvem	8,20	104,84	43,87	458,00	164,70	201,62	880,76	880,77
Abaixo da nuvem	1,18	11,58	1,18	11,58	16,50	20,29	16,50	20,29
Nucleação de gotas	28,71	419,37	175,48	1832,02	658,82	806,49	3523,12	3523,12
total	38,09	535,79	220,53	2301,60	840,02	1028,40	4420,38	4424,18

Tabela 4-11 Resumo dos resultados das simulações realizadas para a remoção do nitrato e do ácido nítrico, para o dia 10/10/2002, em porcentagem de contribuição de cada etapa do processo de remoção (nucleação de gotas, dentro da nuvem e abaixo da nuvem) (%).

	Distribuição de gotículas por gama com parâmetro de forma 5		Altura da camada de nuvem de 14 Km e precipitação simulada pelo RAMS		Precipitação observada e distribuição de gotículas por gama (parâmetro de forma 5)		Altura da camada de nuvem de 14 Km e precipitação observada	
	20:00 h (7,83mm)	23:00 h (0,75mm)	20:00 h (7,83mm)	23:00 h (0,75mm)	20:00 h (0,39mm)	23:00 h (0,39mm)	20:00 h (0,39mm)	23:00 h (0,39mm)
Dentro da nuvem	21,5	19,5	19,9	19,9	19,6	19,6	19,9	19,9
Abaixo da nuvem	3,1	2,2	0,5	0,5	2,0	2,0	0,4	0,5
Nucleação de gotas	75,4	78,3	79,6	79,6	78,4	78,4	79,7	79,6
total	100	100	100	100	100	100	100	100

4.2.3 Evento dia 09/10/2002

4.2.3.1 Dados de entrada

Para este evento, vale ressaltar, que a precipitação teve horário de início as 20:06 h UTC e de término as 21:15 h UTC. Neste intervalo (aproximadamente 1 hora), a quantidade de chuva que atingiu a superfície foi de 18,5 mm, sendo encontradas então, concentrações de 126,72 $\mu\text{g/L}$ de SO_4^{2-} , 1034,16 $\mu\text{g/L}$ de NO_3^- e 233,46 $\mu\text{g/L}$ de NH_4^+ na água de chuva analisada. Nota-se que neste evento, assim como no do dia 10/10/2002, há predominância da espécie química nitrato na amostra analisada.

Como dados de entrada, as concentrações utilizadas para a camada entre a superfície e a base da nuvem, para os gases (NH_3 e HNO_3) e particulados (SO_4^{2-} , NH_4^+ e NO_3^-) podem ser observadas na Tabela 4-12.

Tabela 4-12 Concentrações iniciais médias dos poluentes na camada entre a superfície e a base da nuvem utilizadas como dados de entrada do modelo de remoção para evento do dia 09/10/2002

	Dia e hora da observação	NH_3 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	NH_4^+ ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	HNO_3 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	NO_3^- ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	SO_2 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	SO_4^{2-} ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
aerossol	09/10/2002 07:20 PM		0,070		0,223		0,360
gás	09/10/2002 08:00 PM	0,637		0,307		-	

No entanto, neste horário, havia uma lacuna nos dados de concentração de SO_2 . Na tentativa de estimar este valor, foram utilizados dois métodos distintos e as simulações foram realizadas para os dois casos. O primeiro método utilizado foi o da média móvel aplicada à série temporal das medidas de dióxido de enxofre, utilizando dois pontos da série (Figura 4-25), que nos forneceu uma concentração de SO_2 na superfície de $0,0717 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Um zoom desta média móvel para o período de interesse pode ser observado na Figura 4-26

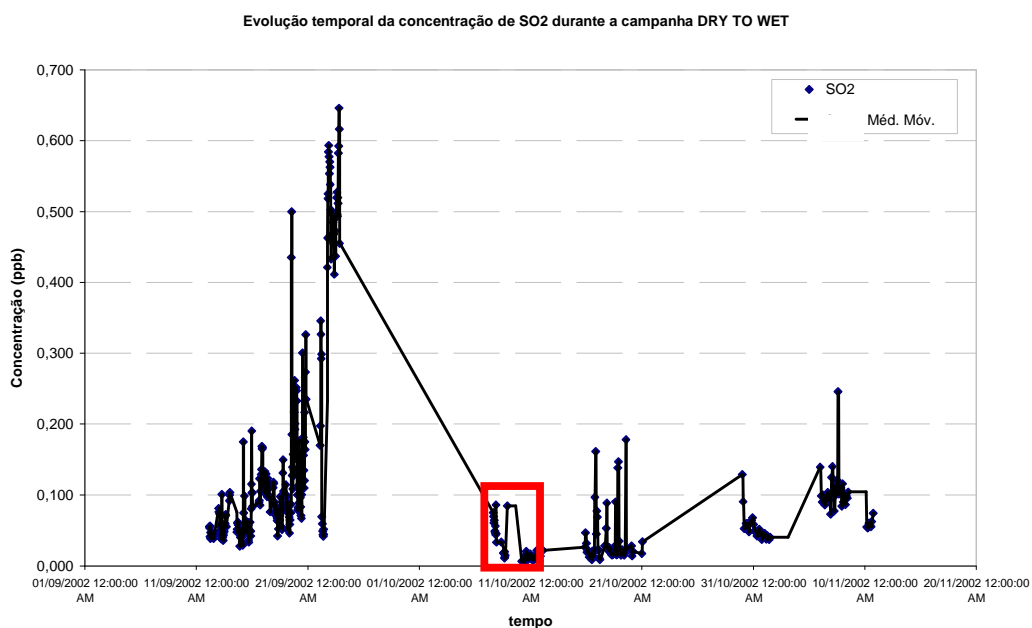


Figura 4-25 Evolução temporal da concentração de dióxido de enxofre durante o período das campanhas LBA-DRY-TO-WET e LBA-SMOCC.

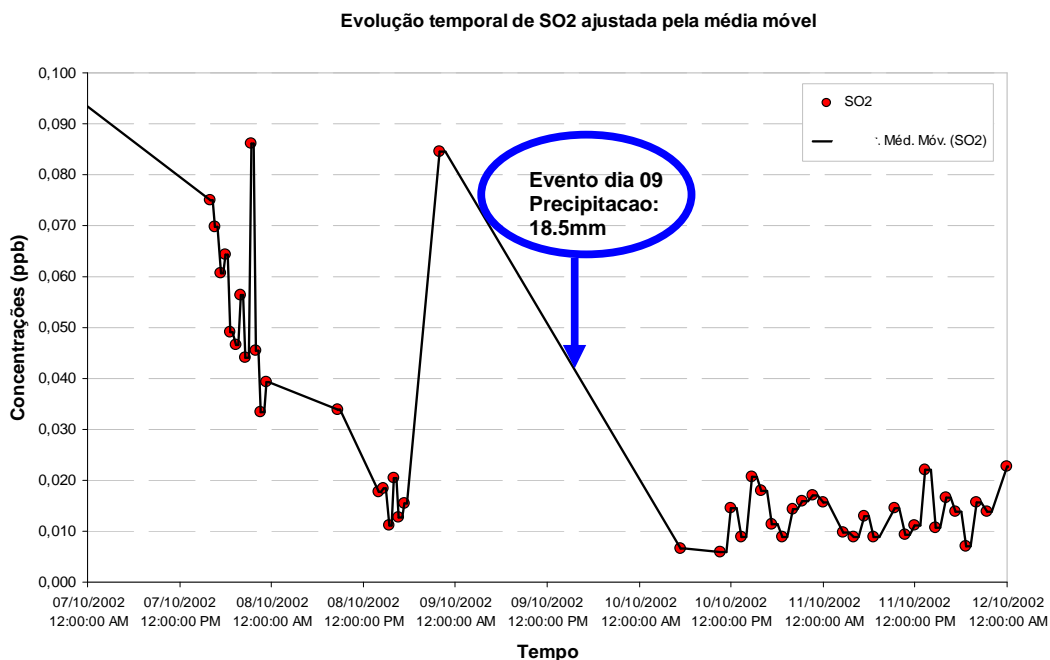


Figura 4-26 Ampliação da evolução temporal da concentração de SO₂ para o período de interesse.

O outro método utilizado para estimar a concentração de SO_2 na superfície foi o da repetição do valor observado no horário imediatamente antes do início do evento estudado. Esta metodologia se aplica, pois se sabe que o mais efetivo mecanismo de remoção de gases e material particulado na atmosfera é a precipitação, e neste intervalo, entre o dado utilizado e o nosso evento, não foi registrada ocorrência de chuva na estação. Neste caso, o valor da concentração de dióxido de enxofre utilizado como dado de entrada para o modelo B. V. 2 para a camada entre a superfície e a base da nuvem foi de $0,2102 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Utilizando a mesma consideração do decaimento exponencial das concentrações com a altura (Stull (1988)) para o cálculo destas dentro da nuvem, os valores médios obtidos para esta camada podem ser observados na Tabela 4-13.

Tabela 4-13 Concentrações dos poluentes médias na camada entre a base e o topo da nuvem para evento do dia 09/10/2002

	NH_3 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	NH_4^+ ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	HNO_3 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	NO_3^- ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	SO_2 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) Média Móvel	SO_2 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) Valor antes evento	SO_4^{2-} ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
aerossol		0,035		0,041			0,007
gás	0,117		0,056		0,013	0,039	

Assim, os perfis verticais para as concentrações de nitrato, ácido nítrico, amônio e amônia utilizados nas modelagens de remoção para este evento podem ser observados na Figura 4-27, enquanto que os perfis para o sulfato e para o dióxido de enxofre (utilizando as duas metodologias propostas para sua estimativa) podem ser observados na Figura 4-28.

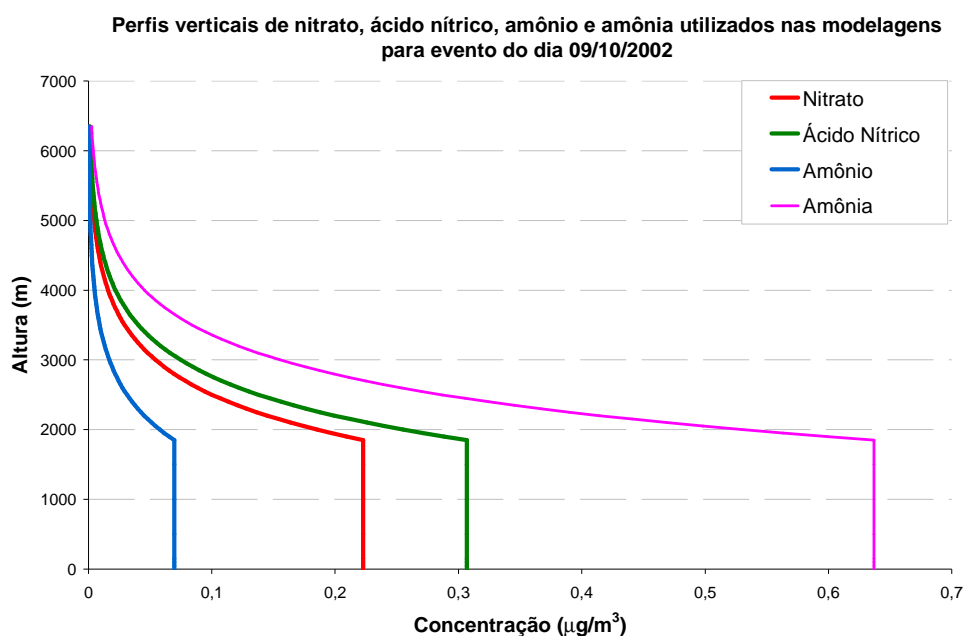


Figura 4-27 Perfis verticais das concentrações de nitrato, ácido nítrico, amônio e amônia iniciais para dia 09/10/2002 utilizados nas modelagens da remoção.

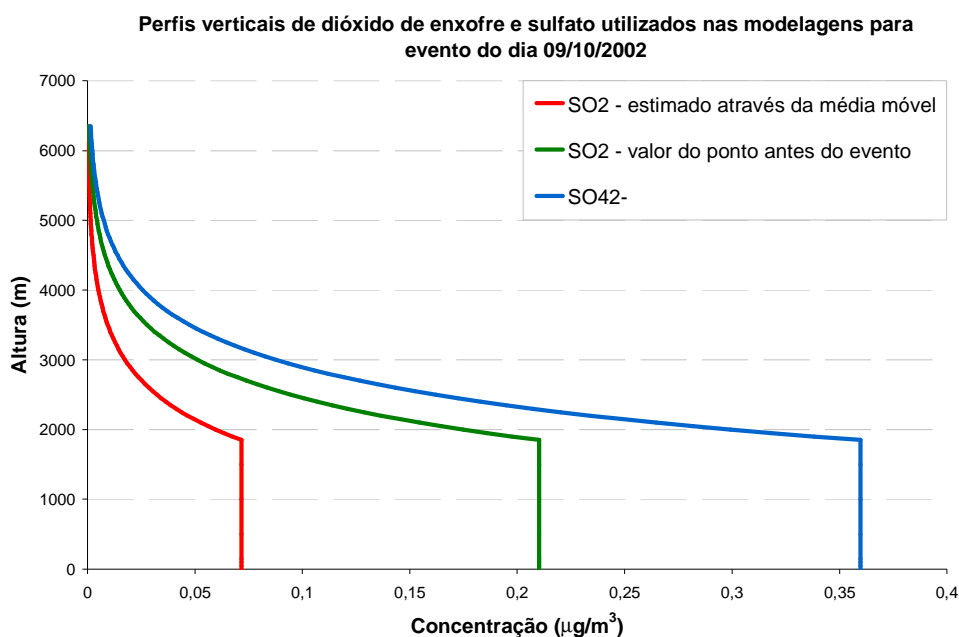


Figura 4-28 Perfis verticais das concentrações de SO₂ (estimado através da média móvel e utilizando o ponto imediatamente antes do evento) e SO₄²⁻ iniciais para dia 09/10/2002 utilizados nas modelagens de remoção.

4.2.3.2 Sulfato particulado e dióxido de enxofre gás

Observado vs simulado para diferentes métodos de estimativa de SO₂

Para este evento, inicialmente foram realizadas duas simulações, ambas para o único horário selecionado, 20:00 h UTC. Na primeira, foram utilizadas tanto a quantidade de precipitação quanto as alturas da base e topo da nuvem simulada pelo RAMS e a estimativa da concentração inicial de dióxido de enxofre realizada através da média móvel. Na segunda, foram utilizadas as mesmas configurações, no entanto utilizando a estimativa da concentração de SO₂ através da repetição do valor do horário anterior ao de início do evento. Observa-se na Figura 4-29, que a primeira simulação

obteve concentração de apenas 23,84 $\mu\text{g/L}$, que representa apenas 18,8% do sulfato encontrado na água, enquanto que na segunda, a estimativa foi de 31,51 $\mu\text{g/L}$, que representa 24,9% do mesmo. Neste caso, observa-se que embora ambas as simulações apresentem valores subestimados de concentração em relação ao observado, a segunda simulação teve resultados mais próximos ao encontrado na água de chuva analisada no sítio experimental, que neste caso, foi de 126,72 $\mu\text{g/L}$.

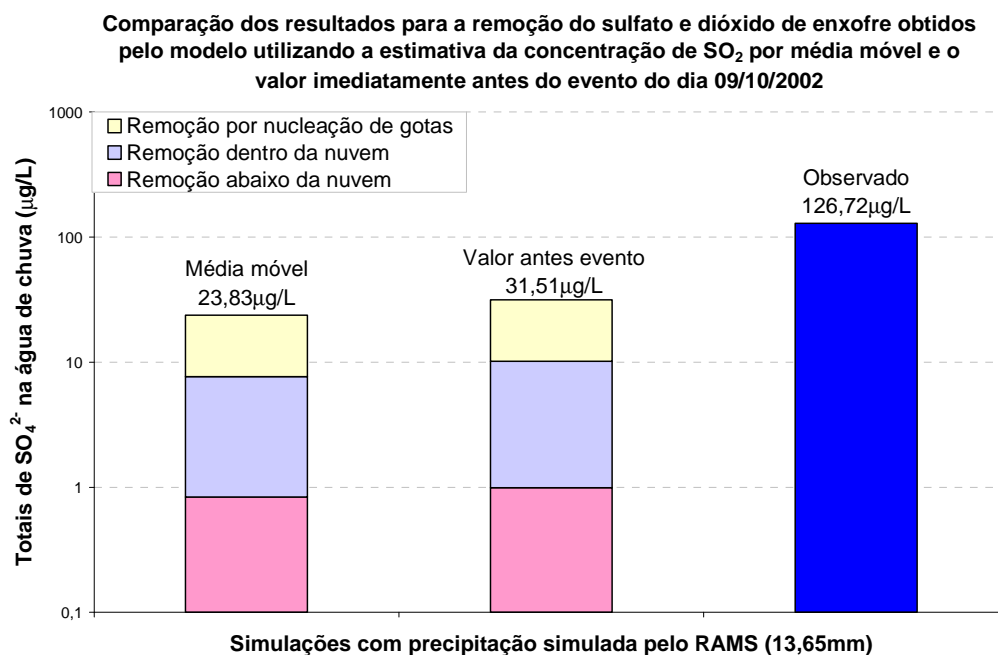


Figura 4-29 Comparação dos resultados obtidos pelo modelo de remoção para o horário de 20:00 h UTC utilizando as duas metodologias de estimativa do dióxido de enxofre, com a concentração de sulfato encontrada na água de chuva observada, utilizando a quantidade de precipitação simulada pelo RAMS.

Observado vs simulado para diferentes extensões verticais das nuvens

No entanto, também nesta simulação atmosférica, o RAMS subestimou a altura do topo das nuvens, calculando valores de aproximadamente 5830 m. Com o objetivo de comprovar a sensibilidade do modelo a este parâmetro de entrada, foram realizadas quatro simulações utilizando a extensão vertical da nuvem de 14 Km, gerando assim, um topo de 15,8 km de altura (concordando com o que foi observado na Figura 4-18). Então, nas duas primeiras simulações, foi utilizada a precipitação simulada pelo RAMS (13,65 mm) para a estimativa de SO₂ através da média móvel e repetição do horário anterior respectivamente. Observa-se na Figura 4-30 que o modelo conseguiu representar de maneira satisfatória (108,54 µg/L) a concentração de sulfato na água para a estimativa de SO₂ realizada através da repetição do valor do horário anterior (85,6%), enquanto que no caso da estimativa através da média móvel, houve uma ligeira subestimativa (82,24 µg/L) da concentração observada (64,9%).

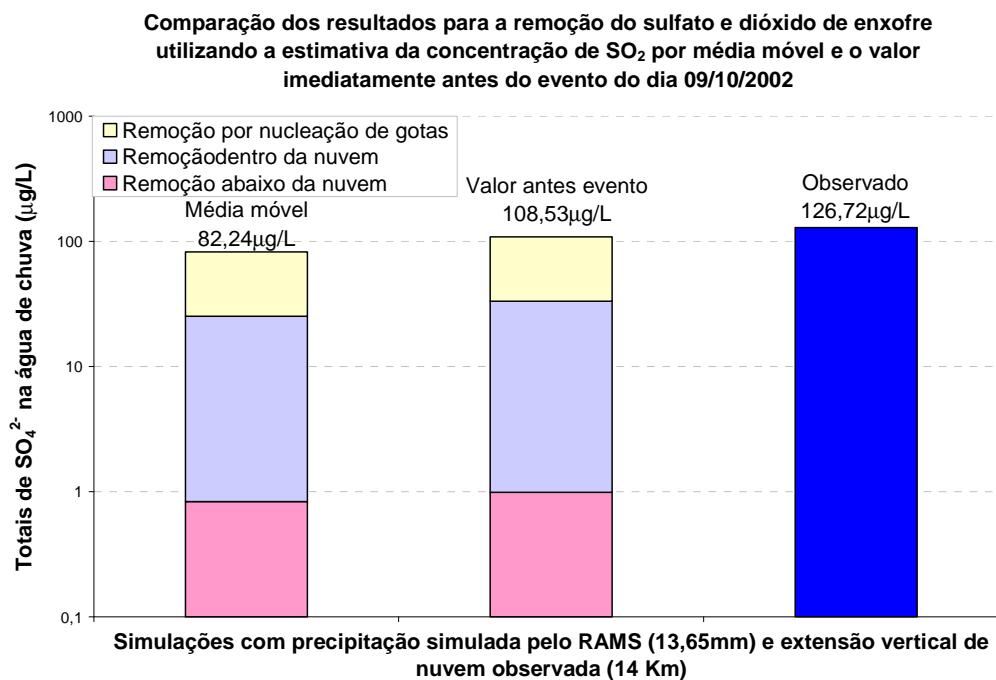


Figura 4-30 Comparação dos resultados obtidos pelo modelo de remoção para o horário de 20:00 h UTC utilizando as duas metodologias para a estimativa do SO₂ com a concentração total de sulfato encontrada na água de chuva, utilizando a quantidade de precipitação simulada pelo RAMS e com extensão vertical da nuvem observada.

No caso das duas últimas simulações realizadas para estes poluentes, foram mantidas as mesmas configurações anteriores, no entanto foi utilizado o valor de quantidade de precipitação observado (18,5 mm). Observa-se na Figura 4-31 que, neste caso, ambas as simulações subestimam ainda mais as concentrações encontradas na água, simulando apenas 63,2% do sulfato encontrado na água de chuva analisada, já que, ao contrário do evento do dia 10/10/2002 em que em ambas as simulações o modelo superestima a precipitação ocorrida, neste caso o modelo subestima a precipitação na estação, simulando um total de 13,65 mm em uma hora .

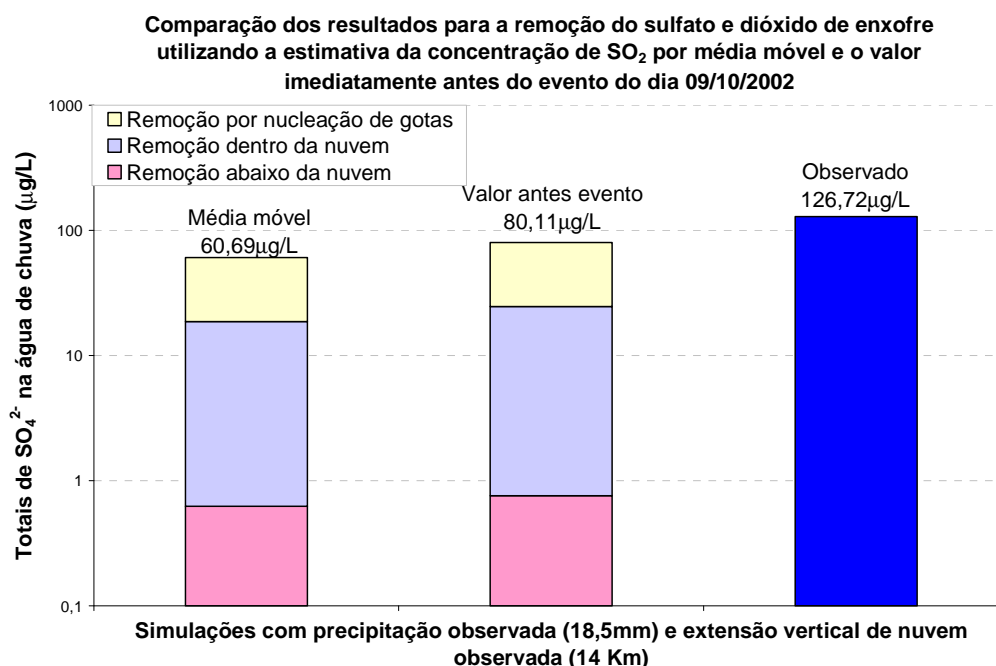


Figura 4-31 Comparação dos resultados obtidos pelo modelo de remoção para o horário de 20:00 h UTC utilizando as duas metodologias para a estimativa do SO₂ com a concentração total de sulfato encontrada na água de chuva, utilizando a quantidade de precipitação e extensão vertical da nuvem observadas.

Resumo parcial para a remoção do sulfato e do dióxido de enxofre (09/10/2002)

Assim, como observado no evento do dia 10/10/2002, nota-se uma predominância dos processos de remoção que ocorrem dentro da nuvem (aproximadamente 95%, Tabela 4-15) (principalmente associado à remoção por nucleação de gotículas de nuvem, responsáveis em média por cerca de 68% da limpeza da atmosfera para este poluente), o que era de se esperar, já que os dois eventos encontram-se no período de transição de estações em Rondônia, fazendo com que apresentem características físicas bastante semelhantes. Assim, observa-se na Tabela 4-14 um resumo das informações extraídas das simulações realizadas para a

4.2.3.3 Nitrato particulado e ácido nítrico gás

Observado vs simulado para diferentes precipitações

Para o nitrato e ácido nítrico, praticamente as mesmas simulações foram realizadas, para verificar os resultados encontrados no evento do dia 10/10/2002. Assim, as duas primeiras simulações realizadas utilizaram os dados de entrada simulados pelo modelo atmosférico RAMS. No entanto, na segunda, a precipitação utilizada foi a observada. Nota-se na Figura 4-32 uma forte subestimativa (aproximadamente duas ordens de grandeza, simulando apenas 2,8%) dos valores de concentração de nitrato na água pelo modelo de remoção nas duas simulações (mesmo utilizando precipitação observada). Ainda assim, observa-se que o modelo tende manter as mesmas proporções encontradas para o evento do dia 10/10/2002, entre as remoções que ocorrem dentro da nuvem por nucleação de gotas e por processos de interação e a remoção que ocorre abaixo da nuvem.

Comparação dos resultados para a remoção do nitrato e do ácido nítrico utilizando a precipitação observada e simulada para o evento do dia 09/10/2002

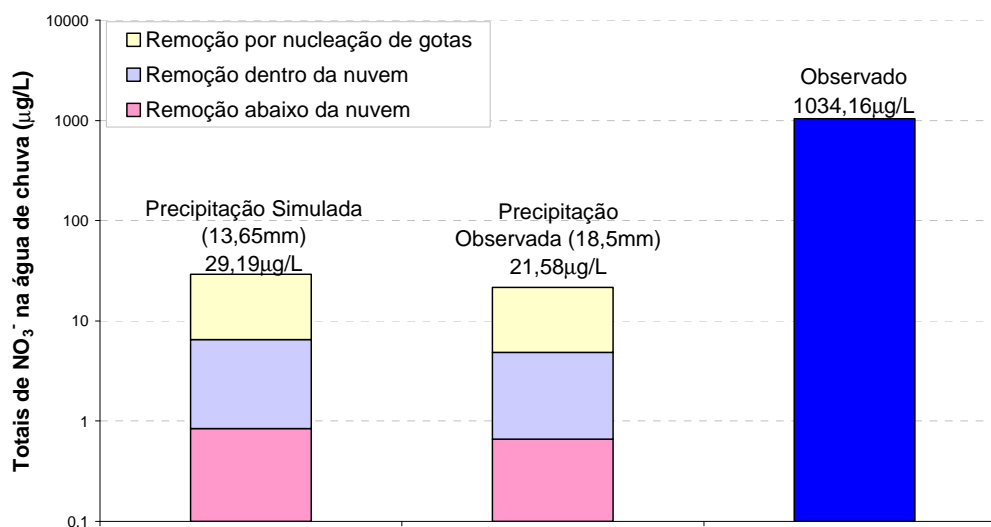


Figura 4-32 Comparação dos resultados para a remoção do NO_3^- e HNO_3 utilizando a precipitação observada e a simulada pelo RAMS para o evento do dia 09/10/2002.

Observado vs simulado para diferentes extensões verticais das nuvens

Utilizando a extensão vertical das nuvens de 14 Km nas terceira e quarta simulações, sendo a terceira realizada utilizando a precipitação simulada pelo RAMS e a quarta utilizando a precipitação observada na estação, nota-se na Figura 4-33 que o modelo se aproxima um pouco mais do valor observado, simulando uma concentração total de 100,75 $\mu\text{g/L}$ de nitrato com a precipitação simulada pelo RAMS e de 74,37 $\mu\text{g/L}$ de nitrato para a precipitação observada. No entanto, este ainda subestima em pelo menos uma ordem de grandeza os resultados para esta espécie química, simulando apenas 9,7% do total de nitrato encontrado na água de chuva quando utilizando a

precipitação simulada pelo RAMS e 7,2% quando utilizando a precipitação observada no sítio experimental da FNS.

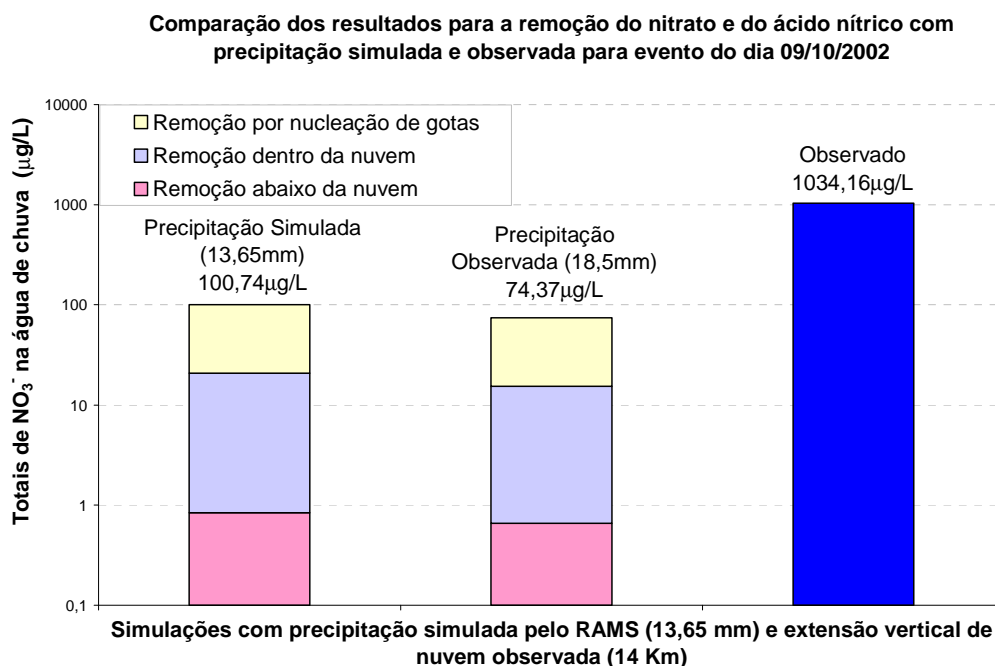


Figura 4-33 Comparação dos resultados para a remoção do NO_3^- e HNO_3 utilizando a extensão vertical da nuvem observada (14 Km) e precipitações observada e simulada pelo RAMS, para evento do dia 09/10/2002.

Resumo parcial para a remoção do nitrato e do ácido nítrico (09/10/2002)

Assim, observa-se na Tabela 4-16, o resumo das simulações realizadas para a remoção do nitrato e do ácido nítrico para este evento do dia 09/10/2002, em termos da concentração de nitrato encontrada na água de chuva analisada. Nota-se ainda, como esperado, uma maior eficiência dos processos que ocorrem no interior das nuvens (Tabela 4-17) para a remoção do nitrato e do ácido nítrico da atmosfera, o que também pôde ser observado no evento do dia 10/10/2002 e para os outros poluentes avaliados. Observa-se que, para este evento, as simulações para o nitrato e ácido nítrico foram as

que apresentaram os piores resultados, conseguindo representar apenas um máximo de aproximadamente 10% do total desta espécie química na água de chuva. Observa-se ainda que, de maneira geral, como também pôde ser verificado no evento do dia 10/10/2002, a remoção do nitrato e do ácido nítrico pelos processos que ocorrem abaixo da nuvem é ligeiramente menor (cerca de 1%) que a do sulfato.

Tabela 4-16 Resumo dos resultados das simulações realizadas para a remoção do nitrato e do ácido nítrico, para o dia 09/10/2002, em concentração de nitrato encontrada na água de chuva ($\mu\text{g/L}$).

	Distribuição de gotículas por gama com parâmetro de forma 5 e precipitação simulada (13,65 mm)	Altura da camada de nuvem de 14 Km e precipitação simulada pelo RAMS (13,65 mm)	Distribuição de gotículas por gama com parâmetro de forma 5 e precipitação observada (18,5 mm)	Altura da camada de nuvem de 14 Km e precipitação observada (18,5mm)
Dentro da nuvem	5,67	19,98	4,18	14,74
Abaixo da nuvem	0,84	0,84	0,66	0,66
Nucleação de gotas	22,68	79,92	16,74	58,97
total	29,19	100,74	21,58	74,37

Tabela 4-17 Resumo dos resultados das simulações realizadas para a remoção do nitrato e do ácido nítrico, para o dia 09/10/2002, em porcentagem de contribuição de cada etapa do processo de remoção (nucleação de gotas, abaixo da nuvem e dentro da nuvem) (%).

	Distribuição de gotículas por gama com parâmetro de forma 5 e precipitação simulada (13,65 mm)	Altura da camada de nuvem de 14 Km e precipitação simulada pelo RAMS (13,65 mm)	Distribuição de gotículas por gama com parâmetro de forma 5 e precipitação observada (18,5 mm)	Altura da camada de nuvem de 14 Km e precipitação observada (18,5mm)
Dentro da nuvem	19,4	19,8	19,4	19,8
Abaixo da nuvem	2,9	0,8	3,0	0,9
Nucleação de gotas	77,7	79,4	77,6	79,3
total	100	100	100	100

4.2.3.4 Amônio particulado e amônia gás

Observado vs simulado para diferentes precipitações

Para o amônio e amônia, foram realizadas as mesmas simulações descritas anteriormente para o nitrato e ácido nítrico, no entanto, neste caso, os resultados apresentados pelo modelo de remoção foram significativamente melhores. Observa-se na Figura 4-34, uma comparação entre os resultados obtidos pelas simulações utilizando como dados de entrada todas as variáveis simuladas pelo RAMS e utilizando a precipitação observada na estação para o horário do evento. Nota-se novamente uma subestimativa dos valores simulados, entretanto, o valor de concentração estimado utilizando a precipitação simulada pelo RAMS (42,0 µg/L) foi mais próximo do encontrado na água de chuva analisada, atingindo 18% do valor observado (233,46 µg/L). Este fato ocorre devido ao efeito de diluição promovido pelo aumento da quantidade de água precipitada, que neste caso, a simulada pelo RAMS foi menor que a observada.

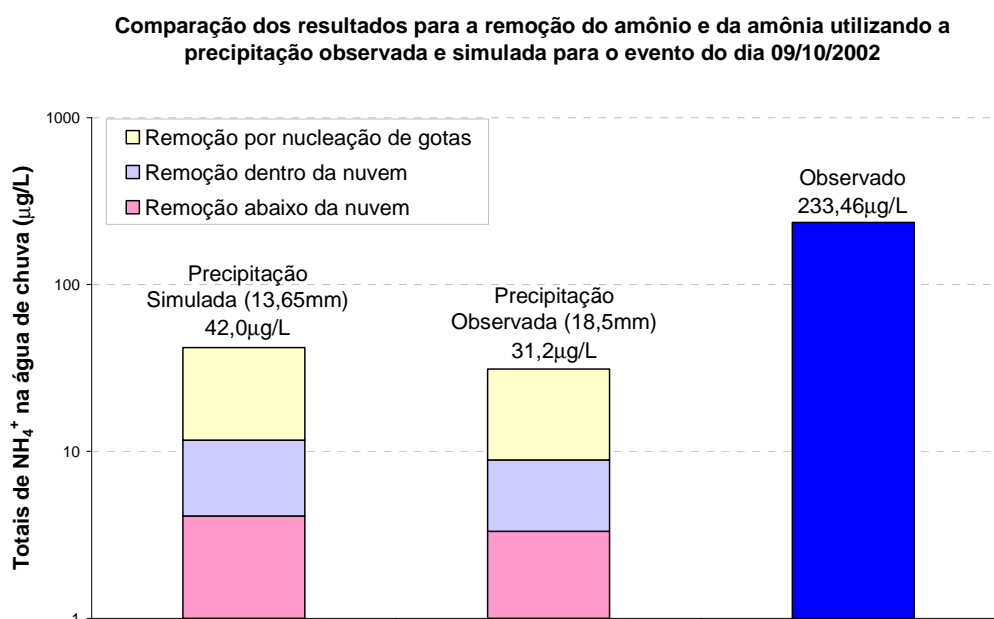


Figura 4-34 Comparação dos resultados para a remoção do NH_4^+ e NH_3 utilizando a precipitação observada e a simulada pelo RAMS para o evento do dia 09/10/2002.

Observado vs simulado para diferentes extensões verticais das nuvens

Já a Figura 4-35, apresenta uma comparação entre os resultados obtidos pelo modelo de remoção para as duas simulações realizadas para o amônio e amônia utilizando a extensão vertical da nuvem de 14 Km de altura, e as quantidades de precipitação simulada pelo RAMS e observada na estação. Neste caso, observa-se que o modelo conseguiu representar de maneira mais adequada os valores de concentração, chegando a encontrar 58,9% (137,4 $\mu\text{g/L}$) do mesmo quando utilizando a quantidade de precipitação modelada (13,65 mm), enquanto que quando utilizada a precipitação observada, o modelo simula apenas 43,6% (101,7 $\mu\text{g/L}$) da concentração de amônio encontrada na água de chuva analisada.

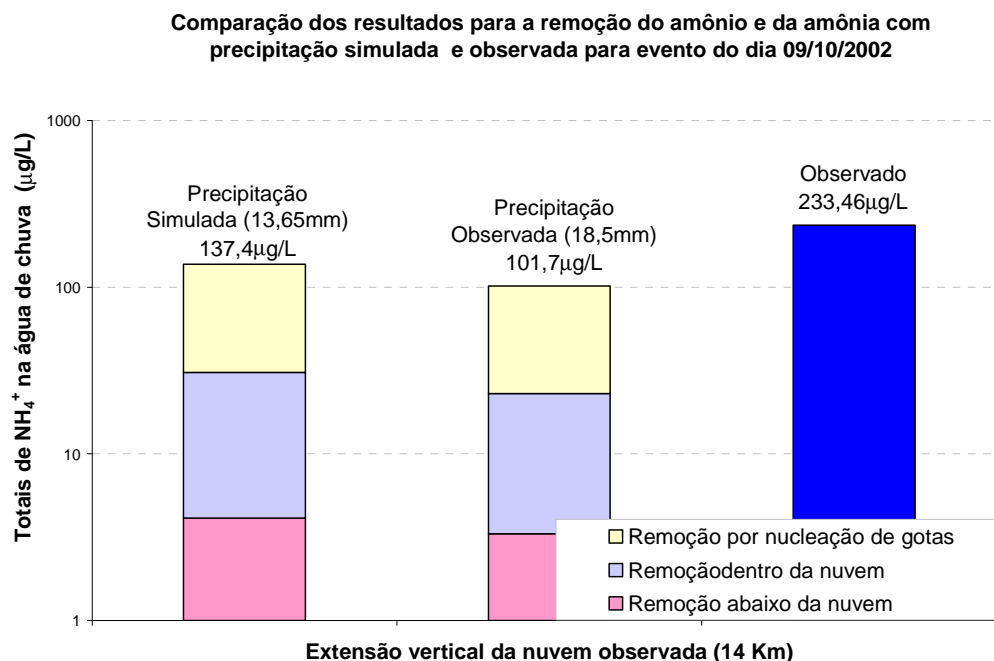


Figura 4-35 Comparação dos resultados para a remoção do NH_4^+ e NH_3 utilizando a extensão vertical da nuvem observada (14 Km) e precipitações observada e simulada pelo RAMS, para evento do dia 09/10/2002.

Resumo parcial para a remoção do amônio e da amônia (09/10/2002)

Assim, na Tabela 4-18, observa-se um resumo dos resultados obtidos para as simulações realizadas para a remoção da amônia e do amônio da atmosfera através da remoção úmida, em concentração da espécie química por litro de água de chuva analisado. Já a Tabela 4-19, apresenta os resultados em termos das porcentagens de contribuição de cada etapa do processo de remoção deste poluente da atmosfera. Como o encontrado para as demais espécies analisadas, observa-se também, o destaque dos processos que ocorrem dentro da nuvem, em especial a nucleação de gotículas, como os mais eficientes na remoção destas espécies da atmosfera. No entanto, nota-se que, para estes poluentes, a remoção abaixo da nuvem foi a mais

significativa entre as outras simulações realizadas para os outros poluentes e para o outro evento, chegando a ser responsável por cerca de 10% do amônio encontrado na água de chuva.

Tabela 4-18 Resumo dos resultados das simulações realizadas para a remoção do amônio e da amônia, para o evento do dia 09/10/2002, em concentração de amônio encontrada na água de chuva ($\mu\text{g/L}$).

	Distribuição de gotículas por gama com parâmetro de forma 5 e precipitação simulada (13,65 mm)	Altura da camada de nuvem de 14 Km e precipitação simulada pelo RAMS (13,65 mm)	Distribuição de gotículas por gama com parâmetro de forma 5 e precipitação observada (18,5 mm)	Altura da camada de nuvem de 14 Km e precipitação observada (18,5mm)
Dentro da nuvem	7,57	26,66	5,58	19,67
Abaixo da nuvem	4,12	4,12	3,32	3,32
Nucleação de gotas	30,28	106,66	22,34	78,70
total	41,97	137,44	31,24	101,69

Tabela 4-19 Resumo dos resultados das simulações realizadas para a remoção do amônio e da amônia, para o evento do dia 09/10/2002, em porcentagem de contribuição de cada etapa do processo de remoção (nucleação de gotas, dentro da nuvem e abaixo da nuvem) (%).

	Distribuição de gotículas por gama com parâmetro de forma 5 e precipitação simulada (13,65 mm)	Altura da camada de nuvem de 14 Km e precipitação simulada pelo RAMS (13,65 mm)	Distribuição de gotículas por gama com parâmetro de forma 5 e precipitação observada (18,5 mm)	Altura da camada de nuvem de 14 Km e precipitação observada (18,5mm)
Dentro da nuvem	18,0	19,4	17,9	19,3
Abaixo da nuvem	9,8	3,0	10,6	3,3
Nucleação de gotas	72,2	77,6	71,5	77,4
total	100	100	100	100

5 CONCLUSÕES

O objetivo deste trabalho foi simular as concentrações das espécies químicas encontradas na água de chuva em Rondônia (SO_4^{2-} , NH_4^+ , NO_3^-) removidas da atmosfera (através dos gases: SO_2 , NH_3 , HNO_3 e os respectivos particulados: SO_4^{2-} , NH_4^+ , NO_3^-) via deposição úmida, e estudar os processos físicos envolvidos nesta remoção, através de modelagem computacional (utilizando o modelo atmosférico RAMS e o modelo de remoção B. V. 2). Assim, as principais conclusões obtidas podem ser observadas nos itens abaixo:

- As simulações atmosféricas com o RAMS apresentaram resultados bastante satisfatórios conseguindo representar aspectos microfísicos das nuvens que se desenvolvem na região amazônica com bastante fidelidade, no entanto, observou-se uma pequena defasagem tanto espacial quanto temporal dos núcleos de nebulosidade e de precipitação em comparação com as imagens de satélite e campos do radar meteorológico, além do modelo ter apresentado uma tendência de subestimar a extensão vertical das nuvens em todas as simulações realizadas, o que afetou diretamente os resultados das simulações da remoção.
- De uma maneira geral, as simulações para todas as espécies químicas estudadas tenderam a subestimar as concentrações destas na água de chuva quando comparadas às análises observacionais em ambos os eventos analisados, principalmente quando utilizadas as extensões verticais das nuvens simuladas pelo

RAMS. Este resultado difere do encontrado por Ramos (2000) e Gonçalves *et al.* (2002) para a mesma análise realizada em São Paulo, onde os autores encontram uma superestimativa pelos modelos das concentrações das espécies químicas na água de chuva, exceto para o nitrato.

- No entanto, esta subestimativa dos resultados concorda com os resultados encontrados por Nakaema (2001) quando o autor utiliza para estimar o perfil vertical da concentração do sulfato dentro da nuvem, o equacionamento baseado no decréscimo exponencial das concentrações proposto por Seinfeld & Pandis (1998). Neste caso, o perfil tende a ter um decréscimo muito mais abrupto do que o encontrado experimentalmente, fazendo com que a remoção seja subestimada.
- Maior contribuição dos processos de remoção que ocorrem dentro da nuvem (entre 89% e 99%), principalmente o de nucleação de gotas, nas concentrações totais dos poluentes na água de chuva em ambos os eventos. Este resultado poderia estar associado a uma grande diferença na estrutura e microfísica das nuvens que se desenvolvem na região amazônica em época de queimadas e as que se desenvolvem numa região metropolitana de latitudes médias, já que, no caso das primeiras, observa-se um grande desenvolvimento vertical das mesmas e uma alta concentração de partículas disponíveis na atmosfera para servirem de núcleos de condensação de nuvens, o que faz com que a contribuição da remoção dentro da nuvem seja predominante em todas as simulações realizadas (concordando com o encontrado por Gonçalves *et al.* (2003), para a região do Amapá, que encontra proporções de remoção dentro das nuvens de até 95% em relação ao total dos poluentes encontrados na água de chuva analisada), o que não pôde ser verificado

para os estudos realizados em São Paulo, onde foi encontrado o predomínio da remoção abaixo da nuvem (Ramos (2000), Gonçalves *et al.* (2000) e Nakaema (2001)).

- Comparando os resultados obtidos para os dois eventos estudados, observou-se uma grande similaridade entre eles no que diz respeito às proporções de remoção dentro e abaixo da nuvem (cerca de 5%), no entanto, notou-se que no evento do dia 09/10/2002, a porcentagem associada à remoção abaixo da nuvem foi ainda menor (cerca de 2% apenas).
- Foi verificado que, para o amônio e amônia (analisado no evento do dia 09/10/2002), a remoção abaixo da nuvem foi a mais significativa comparada com as outras espécies analisadas, chegando a ser responsável por cerca de 10% do amônio encontrado na água de chuva. Este resultado pode estar associado a uma maior concentração de gás amônia (praticamente o dobro em relação a cada uma das outras espécies analisadas. Trebs *et al.* (2004)) na atmosfera próxima à superfície, fazendo assim, com que este gás fosse removido em maior quantidade pelas gotas precipitantes.
- Comparando os resultados obtidos para o sulfato, dióxido de enxofre, nitrato, e ácido nítrico nos dois eventos estudados, observou-se um comportamento bastante parecido entre as espécies, no entanto com uma contribuição da remoção abaixo da nuvem ligeiramente superior para o sulfato e dióxido de enxofre (cerca de 1% de diferença apenas).

- Curta duração do evento de precipitação do dia 10/10/2002 (apenas 20 minutos), além de chuva fraca associada (0,39 mm), fez com que a contribuição da remoção abaixo da nuvem fosse menor.
- Baixa altura da base das nuvens no período do evento estudado fez com que as gotas precipitantes tivessem uma altura menor para interagir e coletar o aerossol, enquanto que a altura do topo das nuvens em aproximadamente 16 km (estimado através da refletividade do radar disponível durante o experimento LBA) fez com que a contribuição da remoção dentro da nuvem fosse bastante significativa.
- Para os dois eventos estudados, observou-se que as concentrações foram mais bem modeladas para o sulfato e dióxido de enxofre (que em alguns casos, as simulações chegam a representar 97,4% da concentração de sulfato encontrada na água de chuva observada na estação para o evento do dia 10/10/2002), do que para os outros poluentes (o melhor resultado obtido foi o de 93,8% de nitrato quando utilizada a extensão vertical de nuvem observada no evento do dia 10/10/2002). Este resultado pode estar associado à utilização da representação da curva de distribuição dos poluentes na atmosfera baseada na do sulfato, mesmo para o nitrato e para o amônio, por esta ser mais conhecida na literatura (Nakaema (2001)). Este resultado concorda ainda com o obtido por Gonçalves *et al.* (2003) em seu estudo também para a região amazônica (Amapá).
- Forte sensibilidade do modelo de remoção às variáveis como quantidade de precipitação que atinge a superfície durante o evento e altura da base e extensão vertical da camada de nuvem. No entanto, observou-se que variáveis médias nas camadas entre a superfície e a base da nuvem e entre a base e o topo da nuvem,

como temperatura, umidade relativa e pressão, praticamente não interferem nos resultados do modelo de remoção. Este resultado concorda com o encontrado por Gonçalves (1997) utilizando o mesmo modelo de remoção.

- Foram realizadas melhorias em algumas parametrizações do modelo de remoção B. V. 2, como por exemplo, na representação do espectro de distribuição de gotículas de nuvem, através da implementação da função gama de distribuição e da velocidade terminal destas gotículas, através do equacionamento proposto por Pruppacher & Klett (1997).

No entanto, ressalta-se ainda, a importância de melhor representar o perfil vertical dos aerossóis atmosféricos no modelo de remoção, principalmente dentro da nuvem. Para isto, sugere-se uma adaptação do método proposto por Freitas *et al.* (2000), em que o autor considera o processo de convecção no interior da nuvem, o que faria com que os aerossóis fossem transportados para alturas mais elevadas, aumentando ainda mais a quantidade de poluentes removida por processos que ocorrem dentro da nuvem e melhorando os resultados antes subestimados pelo modelo.

Portanto, um dos mais significativos resultados desta pesquisa foi a verificação da necessidade de se conhecer bem as características específicas da região de estudo, já que se observou na região amazônica, um comportamento dos processos de remoção bem diferente do encontrado em regiões industrializadas de latitudes médias já bem estudadas como São Paulo, por exemplo. No caso, verificou-se uma predominância dos processos de remoção que ocorrem dentro da nuvem, sendo o mecanismo principal, o

processo de nucleação de gotículas, mostrando assim, a maior disponibilidade de núcleos de condensação de nuvens em período de queimada sobre a floresta tropical.

Os resultados demonstram ainda, a grande relevância dos mecanismos de deposição úmida na transferência da poluição atmosférica para outros ecossistemas naturais, o que pode trazer um forte impacto ecológico na região estudada.

6 REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

ALBUQUERQUE, T. T. A., 2005: "*Distribuição de Tamanho, Composição Química e Identificação das Fontes do Aerossol Atmosférico de São Paulo: Um Estudo de caso Para o Inverno de 2003*". Dissertação de Mestrado, IAG/USP.

ANDREAE, M. O., et al., 2002: "*Biogeochemical cycling of carbon, water, energy, trace gases, and aerosols in Amazonia: The LBA-EUSTACH experiments*." J. Geophys. Res.-Atmos., 107, D20, 8066, doi: 10.1029/2001JD000524.

ANDREAE, M. O.; ROSENFELD, D.; ARTAXO, P.; FRANK, G. P.; LONGO, K. M. and SILVA-DIAS, M. A. F., 2004: "Smoking rain clouds over the Amazon". *Science*, vol 303, 1337-1342.

ASMAN, W. A. H., SUTTON, M. A., SCHIÖRRING, J. K., 1998: "*Ammonia: emission, atmospheric transport and deposition*". *New Phytol.*, 139, 27–48.

BATTAN, L. J. & REITAN, C. H., 1957: "*Droplet size measurements in convective clouds. In artificial Stimulation of rain*". Pergamon Press, New York, 184-191.

BEHENG, K.D. & HERBERT, F., 1987: "*Mathematical studies on the aerosol concentration in drops changing due to particle scavenging and redistribution by coagulation*." *Meteorol. and Atm. Phys.*, **35**, : 212-219.

CARO, D., WOBROCK, W., FLOSSMANN, A. I., CHAUMERLIAC, N., 2004: "A two-moment parameterization of aerosol nucleation and impaction scavenging for a warm

cloud microphysics: description and results from a two-dimensional simulation". Atmos. Res. Vol. 70, p. 171-208 (Elsevier).

CHAMBERLAIN, A. C., 1960: "*Aerodynamics and extend of air pollution problems*". Richardson, E. G.; Ed. Pergamon Press, London, 63-68.

CHEN, C. e W. R. COTTON, 1983: "A one-dimensional simulation of the stratocumulus-capped mixed layer." *Bound.-Layer Meteor.*, 25: 289-321.

CRAM, J. M.; R. A. PIELKE e W. R. COTTON, 1992: "*Numerical simulation and analysis of a prefrontal squall line. Part I: Observations and basic simulation results*". *J. Atmos. Sci.*, 49 (3): 189-208.

CUTRIM, E.; MARTIN, D. W.; RABIN, R., 1995: "*Enhancement of cumulus clouds over deforested lands in Amazonia*." *Bulletin of American Meteorological Society*, 76(10), 1801-1805,.

ENGELMANN, R. J., 1968: "*The calculation of precipitation scavenging*". In *Meteorology and Atomic Energy*, 208-218.

FLATAU. P. J.; G. J. TRIPOLI; J. VERLINDE e W. R. COTTON, 1989: "*The CSU – RAMS Cloud Microphysics Module: General Theory and Code Documentation*." Colorado State University – Atmospheric Science Paper No. 451. 88 p.

FRANK, G., TSCHIERSCH, J., BEHRENS, H., 1990: "*Wet deposition of trace-marked aerosol*." *J. Aerosol Science*, Vol. 21, 213-216.

FREITAS, S. R.; SILVA DIAS, M. A. F.; SILVA DIAS, P. L.; LONGO, K. M.; ARTAXO, P.; ANDREAE, M. O.; FISCHER, H., 2000: "A Convective kinematic trajectory technique for low-resolution atmospheric models". Jour. Geo. Res. Vol 105, 24375-24386.

GAL-CHEN, T. & SOMERVILLE, R. C. J., 1975: "On the use of a coordinate transformation for the solution of the Navier-Stokes equations". J. Comput. Phys., 17, 209-228

GONÇALVES, F.L.T., MASSAMBANI O., VAUTZ, W., SCHILLING, M., KLOCKOW, D., 1996: "Um Modelo Numérico para os Processos de Remoção de Poluentes Atmosféricos por Gotas de Chuva na Região de Cubatão – São Paulo." IX Congresso Brasileiro de Meteorologia, Vol 2, 1056-1059.

GONÇALVES, F. L. T., 1997: "Uma análise dos processos de remoção de poluentes atmosféricos por gotas de chuva". Tese de Doutorado defendida do DCA - IAG/USP, 240pp.

GONÇALVES, F.L.T., MASSAMBANI O., BEHENG, K.D., VAUTZ, W., SCHILLING, M., SOLCI, M.C., ROCHA, V., KLOCKOW, D., 2000: "Modeling and measurements of below cloud processes in the highly industrialized region of Cubatão - Brazil." *Atmospheric Environment*, **34**, 4113-4120.

GONÇALVES, F.L.T., MALHEIROS, A. R., FREITAS, R. S., ASSUNÇÃO, M. A. F., MASSAMBANI, O., 2002: "In-cloud and below-cloud numerical simulation of scavenging processes at Serra do Mar region, SE Brazil." *Atmospheric Environment*, vol.36, fasc.:33, págs:5245-5255.

GONÇALVES, F.L.T., M. F. ANDRADE, M. C. FORTI, R. ASTOLFO, A. M. RAMOS, O. MASSAMBANI, A. J. MELFI, 2003: "Preliminary estimation of the rainfall chemical composition evaluated through the scavenging modeling for north-eastern Amazonian region (Amapá state – Brazil)." *Env. Pollution*, vol.121, págs:63-73.

GOUVEIA, M. L., L. L. LARA, T. M. PAULIQUEVIS JUNIOR, P. ARTAXO, 2004: "*Precipitation chemistry in Amazônia – Inorganic components.*" Anais da III Conferência Científica do LBA, Brasília, julho de 2004.

GUYON P. , G. FRANK, M. WELLING, D. CHAND, P. ARTAXO, L. RIZZO, G. NISHIOKA, O. KOLLE, H. FRITSCH, M. A. F. SILVA DIAS, L. V. GATTI, M. CORDOVA, M. O. ANDREAE, 2005: "*Airborne measurements of trace gases and aerosol particle emissions from biomass burning in Amazonia.*" *Atmos. Chem. Phys. Discussion* 5, 2791-2831.

HINDS, W.C., 1982: "*Aerosol technology: properties, behavior, and measurement of airborne particles*". John Wiley & Sons, N.Y.

HOBBS, P. V.; HARRISON, H.; ROBINSON, E., 1974: "*Atmospheric effects of pollutants*". *Science*, 183, 909-915.

JAENICKE, R. & DAVIES, C. N., 1976: "*The mathematical expression of the size distribution of atmospheric aerosol*". *J. Aerosol Sci.* 7, 255-259.

JAFREZZO, J. L.; COLIN, J. L.; GROS, J. M., 1990: "*Some Physical factors influencing scavenging ratios*". *Atmos. Env.* Vol. 24A, 3073-3083.

JUNGE, C. E., 1963: "*Air chemistry and radioactivity*". Academic Press Inc. N. York. In *Meteorology and Atomic Energy*, 208-209.

KALNAY E., KANAMITSU M., KISTLER R., COLLINS W., DEAVEN D., GANDIN L., IREDEL M., SAHA S., WHITE G., WOOLLEN J., ZHU Y., CHELLIAH M., EBISUZAKI W., HIGGINS W., JANOWIAK J., MO KC., ROPOLEWSKI C., WANG J., LEETMAA A., REYNOLDS R., JENNE R., and, JOSEPH D., 1996: "*The NCEP/NCAR 40-year Reanalysis Project.*" *Bull. Amer. Met. Soc.* 77, 437-471.

KLEINMAN, K. G., 1984: "*Oxidant requirements for acidification of precipitation*". *Atmos. Env.* Vol 18 (7), p. 1453-1457.

LARA, L. L., P. ARTAXO, E. A. HOLLAND, T. M. PAULIQUEVIS JÚNIOR, 2004: "*Biomass burning and implications for the pattern of nitrogen deposition in the Amazon Basin*". *Anais da III Conferência Científica do LBA*, Brasília, julho de 2004.

LEVINE, S. Z. & SCHWARTZ, S. E., 1982: "*In cloud and below-cloud scavenging of nitric acid vapor*". *Atmos. Env.* Vol 77, 402-417.

MARSH, A. R. W., 1978: "*Sulphur and nitrogen contribution to the acidity of rain*". *Atmos. Env.* Vol 12, p 401-406

MARSHALL, J. S. & PALMER W. McK., 1948: "*The distribution of raindrops with size*". *J. Met.* Vol 5, p 165-166.

MARTINS, C. R. & ANDRADE, J. B., 2002: "*Química atmosférica do enxofre (IV): emissões, reações em fase aquosa, e impacto ambiental.*" *Quim. Nova*, Vol. 25, Nº2, 259-272.

MELLOR, G. L. & YAMADA, T., 1982: "*Development of a turbulence closure model for geophysical fluid problems*". *Reviews of Geophysics and Space Physics*, 20, 851-875.

MESSINGER, F., & A. ARAKAWA, 1976: "*Numerical Methods Used in Atmospheric Model*", 64 pp., GARP Publ. SCIV., World Meteorol. Org., Geneva,

MIRCEA M. & S. STEFAN, 1998: "*A Theoretical Study of the Microphysical Parameterization of the Scavenging Coefficient as a Function of Precipitation Type and Rate*". *Atmos. Env.*, vol: 32, nº17, pp2931-2938.

MOHR, K. I., J. S. FAMIGLIETTI, AND E. J. ZIPSER, 1999: "*The contribution to tropical rainfall with respect to convective system type, size, and intensity estimated from the ice scattering signature.*" *J. Appl. Meteor.*, 38, 596-606.

MOLINARI, J. e M. DUDEK, 1992: "*Parameterization of convective precipitation in mesoscale numerical models: a critical review*". *Mon. Wea. Rev.*, 120 (2): 326-344.

MORALES, C. A. R., 1991: "*Distribuição de tamanho de gotas de chuva nos trópicos: ajuste de uma função gama e aplicações*". Dissertação de Mestrado, IAG-USP.

NAIK, M. S., KHEMANI, L. T., MOMIN, G. A., RAO, P. S. P., SAFAI, P. D., 1994: "*Variation in the ionic composition in convective showers in Pune, India.*" *Tellus*, vol. 46B, 68-75.

NAKAEMA, W. M., 2001: "*Modelagem da deposição úmida de poluentes atmosféricos na grande São Paulo durante os meses de inverno*". Dissertação de Mestrado defendida no DCA-IAG/USP, 210pp.

PRUPPACHER H. R. & K. V. BEARD, 1970: "A wind tunnel investigation of the internal circulation and shape of water drops falling at terminal velocity in air". Q. J. A. Met. Soc. 96 pp 247-256.

PANDIS, S. N., SEINFELD, J. H. and PILINIS, C., 1990: "Chemical composition differences among droplets of different sizes". Atmos. Env., 24A, 1957-1969

PILINIS, C., S. N. PANDIS, J. H. SEINFELD, 1995: "Sensitivity of direct climate forcing by atmospheric aerosol to aerosol-size and composition". J. Geophys. Res., 100 (D9), 18.739-18.754.

PRUPPACHER, H. R. & KLETT, J. D., 1978. "Microphysics of cloud and precipitation". Ed.: Reidel, Dordrecht.

PRUPPACHER, H. R., TOPPALIAN, J. H., MITRA, S. K & WALCEK, C., 1983: "A theoretical and experimental study of SO₂ scavenging by cloud and raindrop". In Precipitation Scavenging, Dry Deposition and Resuspension, vol. 1, 445-452.

PRUPPACHER, H. R. & KLETT, J. D., 1997: "Microphysics of cloud and precipitation". Ed.: Reidel Publ. Company, 714pp.

RAMOS, A. M., 2000: "Análise dos processos de remoção de poluentes atmosféricos dentro e abaixo da nuvem na região de Cubatão". Dissertação de Mestrado, IAG-USP.

ROBERTS, G. C., P. ARTAXO, J. C. ZHOU, E. SWIETLICKI, M. O. ANDREAE, 2002: "Sensitivity of CCN spectra on chemical and physical properties of aerosol: A case study from Amazon Basin" J. Geophys. Res., 107 (D20), doi: 10.1029/2001JD000583.

ROGERS, R. R., 1989: "A short course of cloud physics". Pergamon Press, 3^oEd. 225pp.

SAPUCCI, L. F., L. A. T. MACHADO, J. F. G. MÔNICO, A. PLANA-FATTORI, 2004: "Análise da variabilidade temporal do IWV na pré-estação chuvosa utilizando GPS". Anais da III Conferência Científica do LBA, Brasília, julho de 2004.

SCHRODER, L. J.; WILLOUGHBY, T. C.; SEE, R. B.; MALO, B. A., 1989: "The chemical composition of precipitation, dew and frost, and fog in Denver, Colorado". Atmospheric Deposition – 1989. IAHS Publication, N^o197, p.83-90

SEINFELD, J. H. & PANDIS, S. N., 1998: "Atmospheric and physics of air pollution". Ed.: J. Wiley & Sons, 1326pp.

SILVA DIAS, M.A.F., et al., 2002: "Cloud and rain processes in a biosphere-atmosphere interaction context in the Amazon Region". *Journal of Geophysical Research* 107(D20), doi:10.1029/2001 JD000335.

SILVA DIAS, M. A. F., P. ARTAXO, M. O. ANDREAE, 2004: "Aerosol impact clouds in Amazon basin". Published by the International GEWEX project Office Nov/2004: <http://www.gewex.org>

STULL, R. B., 1988: "An introduction to boundary layer meteorology". Kluwer Academic Publishers, 666pp.

TREBS, I., MEIXNER, F. X.; SLANINA, J.; JONGEJAN, P.; ANDREAE, M. O., 2004: "Real-time measurements of ammonia, acidic trace gases and water-soluble inorganic aerosol species at rural site in the Amazon Basin." *Atmos. Chem. Phys.*, 4, 967-987.

TREBS, I. *et al.*, 2005: “*The NH_4^+ , NO_3^- , Cl , SO_4^{2-} , H_2O aerosol system and its gas phase precursors at a pasture site in the Amazon Basin: How relevant are mineral cations and soluble organics acids?*” *J. Geophys. Res.*, 110 (D07303), doi: 10.1029/2004JD005478.

VOLKEN, M. A., 1994: “*A model of below-cloud scavenging of aerosol and trace gases: results and observations*” Dissertação apresentada no Swiss Federal Institute of Technology para a obtenção do grau de Doutor em Ciências Naturais. 157pp.

ZHANG, L., MICHELANGELI, D. V., TAYLOR, P. A., 2004: “*Numerical studies of aerosol scavenging by low-level, warm stratiform clouds and precipitation*”. *Atmos. Env.* Vol. 38, p. 4653- (Elsevier).

WALKO, R. L., W. R. COTTON, M. P. MEYERS e J. Y. HARRINGTON, 1995: “New RAMS cloud microphysics parameterization. Part I: the single-moment scheme. *Atmospheric Research*, 38: 29-62.

WHITBY, K. T., 1978: “*The Physical characteristics of sulfate aerosol.*” *Atmos. Env.*, 12, 135-159.

WILLIAMS E. *et al.*, 2002: “*Contrasting convective regimes over the Amazon: implications for cloud electrification.*” *JGR 102 (D20): 50.1-50.19.*

YAMASOE, M. A.; ARTAXO, P.; MIGUEL, A. H.; ALLEN, A. G., 2000: “*Chemical Composition of aerosol particles from direct emissions of vegetation fires in the Amazon Basin: water-soluble species and traces elements.*” *Atmos. Environ.*, 34, 1641-1653.

Livros Grátis

(<http://www.livrosgratis.com.br>)

Milhares de Livros para Download:

[Baixar livros de Administração](#)

[Baixar livros de Agronomia](#)

[Baixar livros de Arquitetura](#)

[Baixar livros de Artes](#)

[Baixar livros de Astronomia](#)

[Baixar livros de Biologia Geral](#)

[Baixar livros de Ciência da Computação](#)

[Baixar livros de Ciência da Informação](#)

[Baixar livros de Ciência Política](#)

[Baixar livros de Ciências da Saúde](#)

[Baixar livros de Comunicação](#)

[Baixar livros do Conselho Nacional de Educação - CNE](#)

[Baixar livros de Defesa civil](#)

[Baixar livros de Direito](#)

[Baixar livros de Direitos humanos](#)

[Baixar livros de Economia](#)

[Baixar livros de Economia Doméstica](#)

[Baixar livros de Educação](#)

[Baixar livros de Educação - Trânsito](#)

[Baixar livros de Educação Física](#)

[Baixar livros de Engenharia Aeroespacial](#)

[Baixar livros de Farmácia](#)

[Baixar livros de Filosofia](#)

[Baixar livros de Física](#)

[Baixar livros de Geociências](#)

[Baixar livros de Geografia](#)

[Baixar livros de História](#)

[Baixar livros de Línguas](#)

[Baixar livros de Literatura](#)
[Baixar livros de Literatura de Cordel](#)
[Baixar livros de Literatura Infantil](#)
[Baixar livros de Matemática](#)
[Baixar livros de Medicina](#)
[Baixar livros de Medicina Veterinária](#)
[Baixar livros de Meio Ambiente](#)
[Baixar livros de Meteorologia](#)
[Baixar Monografias e TCC](#)
[Baixar livros Multidisciplinar](#)
[Baixar livros de Música](#)
[Baixar livros de Psicologia](#)
[Baixar livros de Química](#)
[Baixar livros de Saúde Coletiva](#)
[Baixar livros de Serviço Social](#)
[Baixar livros de Sociologia](#)
[Baixar livros de Teologia](#)
[Baixar livros de Trabalho](#)
[Baixar livros de Turismo](#)