

SBI-IFUSP



305M810T3277

Universidade de São Paulo

Instituto de Física

Estudos de Partículas de Aerossóis e Gases
Traços na Atmosfera da Bacia Amazônica:
Influências das Circulações Regionais
e de Larga Escala

Karla Maria Longo

Tese apresentada ao Instituto de Física
da Universidade de São Paulo para
obtenção do título de Doutor em Ciências.

Banca Examinadora

Prof. Dr. Paulo Artaxo (IFUSP)
Prof. Dr. Mauro Cattani (IFUSP)
Prof. Dr. Carlos Nobre (INPE)
Prof. Dr. Plínio Alvalá (INPE)
Profa. Dra. Tânia Tavares (UFBA)



Orientador:

Prof. Dr. Paulo Eduardo Artaxo Neto

depois 03/11

São Paulo, novembro de 1999

Armando Corbani Ferraz
Presidente da Comissão de Pós Graduação

628.53.P

L 856 e

D
ex. 1

FICHA CATALOGRÁFICA

Preparada pelo Serviço de Biblioteca e Informação
do Instituto de Física da Universidade de São Paulo

Longo, Karla Maria

Estudos de Partículas de Aerossóis e Gases Traços na
Atmosfera da Bacia Amazônica: Influências das
Circulações Regionais e de Larga Escala.
São Paulo. 1999

Tese (Doutorado) - Universidade de São Paulo.
Instituto de Física - Departamento de Física Aplicada

Orientador: Prof. Dr. Paulo Eduardo Artaxo Neto
Área de Concentração: Física Aplicada

Unitermos: 1. Mudanças Climáticas Globais;
2. Partículas de Aerossóis Biogênicos e de Queimadas;
3. Transporte Atmosférico; 4. Modelos Atmosféricos
Regionais; 5. Poluição do ar.

USP/IF/SBI-067/99

À memória de um baiano ilustre, ao
meu filho Pedro e ao meu esposo Saulo.

Agradecimentos

Ao Dr. Paulo Artaxo, pela orientação deste trabalho, pelas oportunidades proporcionadas ao longo do período do doutoramento e pelas excelentes condições de trabalho. E pelos quatro meses de suporte financeiro adicional, ao final da minha bolsa de doutorado.

À Dra. M. Assunção F. Silva Dias, pela orientação e acompanhamento da evolução deste trabalho, e pela revisão de parte deste texto.

À Dra. Anne Thompson, ao Dr. Yoram Kaufman e à Dra. Lorraine Remer, pela orientação de parte deste trabalho, e pela acolhida durante meu estágio na NASA.

Ao Departamento de Ciências Atmosféricas (DCA) do Instituto Astronômico e Geofísico da Universidade de São Paulo, pela utilização de sua infra-estrutura e facilidades computacionais. E ao pessoal técnico do DCA, em especial Elícia, Yann e Márcio, pelo apoio em diversos problemas técnicos.

À Dayse Figueiredo do Laboratório de Liminologia da Manaus Energia, em Balbina, pelo apoio logístico durante o período do experimento LBA-CLAIRE.

À CAPES, pelo apoio financeiro através da bolsa de doutorado.

Ao CNPq, pelo apoio financeiro durante o estágio no exterior.

À FAPESP, pelo apoio financeiro aos projetos do GEPA ao longo do período de desenvolvimento deste trabalho.

Aos técnicos do GEPA, Alcides, Ana e Tarsis, pelo apoio técnico e pela amizade.

Aos amigos do GEPA, pelas importantes discussões, pelo bom ambiente de trabalho e pela amizade. Em especial, à Marcia, pelas discussões ao longo do desenvolvimento deste trabalho, importantes no meu aprendizado e, principalmente, pela amizade. E à Andrea, pela inestimável ajuda na impressão deste trabalho.

À Lindalva, pelo carinho e dedicação, principalmente no período de escrita da tese.

À minha família, em especial meus pais, pelo incentivo e apoio incondicionais.

E, por último, meu sincero reconhecimento às duas pessoas fundamentalmente importantes em todas as fases do processo de doutorado, desde as motivações até o presente momento. Meu esposo Saulo, pela trabalho em conjunto ao longo dos últimos anos, pela revisão deste texto, mas sobretudo pelo seu amor. E, meu filho Pedro, pela imensa capacidade de compreensão demonstrada durante o período de preparação da tese, incomum em uma criança.

Resumo

Neste trabalho apresenta-se um estudo sobre os mecanismos de transporte atmosférico de gases traços e de partículas de aerossóis na bacia Amazônica. As influências da meteorologia regional e de larga escala na composição da atmosfera Amazônica é investigada. Estudos de casos durante as estações úmida e seca são abordados, evidenciando as características peculiares a cada período.

Resultados do experimento LBA-CLAIRE "Cooperative LBA Airborne Regional Experiment", na região Amazônica durante a estação chuvosa de 1998, são apresentados. A análise da composição elementar de aerossóis da região Amazônica identificou a ocorrência de um episódio no qual as concentrações de aerossóis minerais, contendo majoritariamente Na, Al, Si, Ca, Ti, Mn, Fe, entre outros, foram, por fatores entre 6 e 20 vezes maiores que os valores de "background". Análises estatísticas e de retro-trajetórias de parcelas de ar possibilitaram a identificação e caracterização deste episódio como sendo um evento de transporte e deposição de aerossóis minerais do Saara na bacia Amazônica. Índices de aerossóis, derivados a partir de medidas de radiação ultra-violeta pelo sensor Nimbus-7/TOMS "Total Ozone Mapping Spectrometer", sobre o oceano Atlântico, fornecem um suporte adicional às interpretações dadas às observações locais. Neste trabalho, evidencia-se também as propriedades dos aerossóis biogênicos e a importância do transporte de aerossóis do Saara nos ciclos biogeoquímicos. São também apresentados e discutidos resultados de medidas de gases realizados no Suriname, quando foram detectados sinais de transporte de emissões de queimadas da baixa para a alta troposfera via convecção profunda.

Apresenta-se um estudo dos mecanismos de transporte atmosférico de aerossóis e gases emitidos em queimadas, durante a estação seca. Resultados do experimento SCAR-B "Smoke, Clouds, and Radiation-Brazil", realizado durante os meses de agosto e setembro de 1995, são discutidos. Uma análise de trajetórias baseadas em uma simulação numérica do período de estudo foi realizada. Evidenciou-se que as características fisiográficas e da circulação de grande escala produzem dois corredores de exportação de poluentes emitidos por queimadas: em direção ao oceano Pacífico, entre as latitudes 10°N e 10°S ; e em direção ao oceano Atlântico, na altura da latitude 30°S . Sondagens de ozônio lançadas a partir de Cuiabá, entre os dias 16 de agosto e 10 de setembro, mostraram um enriquecimento do O_3 troposférico (entre 40 e 90 ppbv), em relação aos valores observados durante a estação úmida (~ 15 ppbv). O O_3

troposférico e traçadores de aerossóis de queimadas, tais como medidas da espessura óptica de aerossóis na coluna atmosférica e medidas de “black-carbon” ao nível da superfície, apresentaram uma correlação mútua porém, sensível ao padrão de circulação. A análise de trajetórias e medidas do “Cloud LIDAR System” a bordo da aeronave ER-2 indicaram que o enriquecimento do ozônio troposférico observado deve-se, não apenas a emissões diretas de queimadas locais, mas também a contribuições de áreas urbano/industriais e a recirculação de fumaça envelhecida.

Abstract

This a study on the mechanisms of atmospheric transport of trace gases and aerosols in the Amazon basin. The influences of the regional and large scale meteorology in the Amazon atmospheric composition is investigated. Cases studies during the wet and dry season are performed, evidencing the characteristics of each period.

The first case study are results of the LBA-CLAIRE "Cooperative LBA Regional Airborne Experiment", in the Amazon basin during the wet season of 1998. Analysis of the elementary composition of aerosols of the Amazon region, identified the occurrence of an episode in which the concentrations of mineral aerosols, major contents are Na, Al, Si, Ca, You, Mn, Fe, among others, they were, for factors among 6 to 20 larger than the background values. Statistical analyses and backward trajectories of air parcels possibilited the identification and characterization of this episode as being a transport and deposition of Saharan aerosols event in the Amazon basin. Aerosol index, derived from measurements of ultra-violet radiation of the Nimbus-7/TOMS " Total Ozone Mapping Spectrometer " on the ocean Atlantic, supplied an additional support to the interpretations given to the local observations.

In this work, it is also evidenced some properties of the biogenic aerosols and the importance of the Saharan aerosols transported to the Amazon basin in the biogeochemical cycles. Results of airborne trace gases measurements at Suniname, where signs of biomass burning emission were detected on high levels, transported from the low to the high troposphere through deep convection, are also presented and discussed.

A study on the mechanisms of atmospheric transport of aerosols and gases emitted by biomass burning, during the dry season, is the second part of this work. Results of the SCAR-B " Smoke, Clouds, and Radiation-Brazil " experiment, during the months of August and September of 1995, are discussed. Trajectory analyses based on a numerical simulation of the atmospheric period was performed. It was evidenced that the fisiographics and the large scale circulation characteristics, during the winter in Southern Hemisphere, produce two corridors of pollutants export: to the Pacific ocean, between the latitudes 10°S and 10°N ; and to the Atlantic ocean, around 30°S latitude. Ozonesondes launched from Cuiabá, between August 16 and September 10, have showed an enrichment of tropospheric ozone (values between 40 and 90 ppbv), compared to the values observed during the wet season (~ 15 ppbv). Tropospheric ozone and tracers of biomass burning aerosols, such as aerosol optical thickness in the atmospheric

column and black-carbon at the surface level, presented a mutual correlation sensitive to the circulation pattern. Trajectory analyses and measures of the Cloud to Lidar System on board of the ER-2 airborne indicated that the tropospheric ozone enrichment observed is not just due local biomass burning direct emissions, but also contributions of urbano/industriais areas and recirculação of aged smoke plume.

Índice

1	Introdução	1
1.1	A composição da atmosfera Amazônica	3
1.1.1	Estação úmida	3
1.1.2	Estação seca	11
1.2	Objetivos deste trabalho	15
1.3	Estrutura da Tese	16
2	Metodologia	21
2.1	Modelo de trajetórias de parcelas de ar	22
2.2	Modelo Atmosférico RAMS	26
2.2.1	Sistema de equações primitivas	27
2.2.2	Procedimento de Reynolds: formulação do modelo	29
2.2.3	Advecção na escala resolvida	32
2.2.4	Parametrização da difusão turbulenta	33
2.2.5	Parametrização de cumulus	35
2.2.6	Parametrização de superfície	38
2.2.7	Opções gerais	39
2.3	Incertezas associadas ao cálculo de trajetórias de parcelas de ar	42
2.4	Técnicas experimentais	43
2.4.1	Medidas <i>In Situ</i> de partículas de aerossóis atmosféricos	43
2.4.2	Radiosondagens de ozônio	47
2.4.3	Fotômetros solares e celestes	47
2.4.4	O monitoramento de aerossóis por sensoriamento remoto - Índice de Aerossóis - TOMS	48

2.4.5	Sistema CLS "Cloud Lidar System"/ER-2	50
3	Um estudo de caso na estação chuvosa: O Experimento LBA-CLAIRE	52
3.1	Introdução	52
3.2	Condições meteorológicas do período	54
3.2.1	O fenômeno ENSO - El Niño	56
3.2.2	Simulação atmosférica do período	58
3.2.3	Balbina: meteorologia local	63
3.3	Medidas da composição das partículas de aerossóis no experimento LBA-CLAIRE	66
3.3.1	Concentração absoluta dos aerossóis	66
3.3.2	Composição elementar dos aerossóis detectada pela análise PIXE	69
3.3.3	Origem das massas de ar em Balbina durante o experimento LBA-CLAIRE	76
3.3.4	Relação entre as concentrações elementares dos aerossóis em Balbina e a meteorologia local	78
3.4	Análise de trajetórias de parcelas de ar	89
3.5	Transporte de emissões de queimada via convecção profunda	98
3.5.1	Medidas de gases no Suriname	100
4	Um estudo de caso na estação seca: Experimento SCAR-B.	105
4.1	Introdução	105
4.2	Condições meteorológicas do período	107
4.2.1	Observações de focos de queimadas	109
4.2.2	Simulação atmosférica do período	110
4.3	Análise de trajetórias de massas de ar	111
4.4	Medidas de ozônio e aerossóis em Cuiabá durante o SCAR-B	117
4.4.1	Sondagens de ozônio - resultados	117
4.4.2	Fotômetro solar e aetalômetro - resultados	121
4.5	Relação observada entre os parâmetros medidos	121
4.6	Origem das massas de ar em Cuiabá	123

4.7	Evidências experimentais: observações do “Cloud Lidar System” .	126
5	Conclusões e perspectivas futuras	128
5.1	Resultados do experimento LBA-CLAIRE: estação úmida	128
5.2	Resultados do experimento SCAR-B: estação seca	131
5.3	Sugestões de projetos futuros	132
A	Artigo: “Numerical modeling of air mass trajectories from biomass burning areas of the Amazon basin”	148
B	Artigo: “The Smoke Cloud and Radiation Experiment in Brazil (SCAR-B)”	163
C	Artigo: “Correlation between smoke and tropospheric ozone concentration in Cuiabá during SCAR-B”	190
D	Artigo: “Large-scale source apportionment in Amazonia”	208
E	Artigo: “Transport of biomass burning smoke to the upper troposphere by deep convection in the equatorial region”	220

Lista de Figuras

- 1.1 *Produção de partículas de aerossóis a partir de precursores gasosos orgânicos [Hoffman et al., 1997]. Em câmaras de laboratório, observou-se uma formação rápida de aerossóis a partir de precursores gasosos de COV's. Estas reações são mediadas por O_3 e NO_x ($NO + NO_2$). Figura adaptada de Hoffman et al., [1997]. 4*
- 1.2 *Estimativas de taxas de emissões globais de isopreno (g C/ m² mês) para os meses de (a) janeiro e (b) julho. A emissão de isopreno em regiões tropicais é estimada em 57% das emissões globais de COV's. Adaptado de [Guenther et al., 1995]. 5*
- 1.3 *Variação sazonal de uma camada de ar do Saara (CAS) sobre Dakar, Senegal, baseada em dados diários de radiossondagem durante 1997. Os asteriscos denotam a altitude central de cada camada de inversão encontrada nos dados de radiossondagem. A área não sombreada representa uma camada de ar de estabilidade neutra, limitada acima e abaixo por duas camadas de inversão na baixa troposfera. Adaptado de [Hsu et al., 1999]. 9*
- 1.4 *Medidas de espessura ótica de aerossóis utilizando o sensor AVHRR-NOAA sobre áreas oceânicas. Observa-se um forte transporte de poeira do deserto do Saara para a parte norte da Amazônia nos meses de março, abril e maio. 10*
- 1.5 *Série temporal da concentração de massa de aerossóis nas frações fina e grossa, medidas em Alta Floresta-MT, entre os anos de 1992 e 1999. Resultados obtidos na estação de monitoramento atmosférico mantida pelo Grupo de Estudos de Poluição do Ar (GEPA) da Universidade de São Paulo (USP). 13*

1.6	<i>Imagem do satélite GOES-8 “Geostationary Operational Environmental Satellites” no canal visível, a linha verde contornando a cobertura de fumaça no dia 29 de agosto de 1995 às 11:45 UTC. .</i>	14
2.1	<i>Fluxograma do modelo de trajetórias cinemáticas.</i>	25
2.2	<i>Grade tipo Arakawa C.</i>	40
2.3	<i>Diagrama esquemático do posicionamento da amostra e outros componentes do sistema PIXE. Adaptado de Correia [1998]. . . .</i>	45
3.1	<i>Área de abrangência do experimento LBA-CLAIRE.</i>	53
3.2	<i>Desvios de precipitação (em mm) em relação à média climatológica (1961-1990) para (a) março de 1998 e (b) abril de 1998. Extraído de (Climanálise, março e abril de 1998).</i>	54
3.3	<i>Imagens no canal infra-vermelho do sensor NOAA/AVHRR. Focos de queimadas, localizados principalmente em Roraima, são indicados por pontos mais claros e brilhantes.</i>	55
3.4	<i>Efeitos conhecidos do fenômeno ENSO em diversas partes do globo para o período de verão no hemisfério Sul. (Fonte: NCEP/NOAA)</i>	57
3.5	<i>Diagrama esquemático das variações do padrão de convecção na região do oceano Pacífico, em (a) condições normais e (b) condições El-Niño. (Fonte: NOAA)</i>	58
3.6	<i>Campo de vento médio, entre os dias 23 e 28 de março de 1998, em 1000 hPa, 850 hPa, 500 hPa e 200 hPa. Resultados da simulação numérica. A escala de cores indica a intensidade da velocidade do vento.</i>	60
3.7	<i>Campo de vento médio, entre os dias 01 e 15 de abril de 1998, em 1000 hPa, 850 hPa, 500 hPa e 200 hPa. Resultados da simulação numérica. A escala de cores indica a intensidade da velocidade do vento.</i>	61
3.8	<i>Sequência de imagens do satélite GOES-8 no dia 25 de março às 12:00, 15:00 e 18:00 UTC e no dia 26 de março às 00:00 UTC. . .</i>	62
3.9	<i>Estatística da direção do vento em Balbina, medida local no período de 23 de Março à 15 de abril de 1998.</i>	63

3.10	<i>Série temporal da velocidade do vento de superfície em Balbina. Os valores noturnos são indicados pelo símbolo (●) e os valores diurnos por (×).</i>	64
3.11	<i>Série temporal da umidade relativa ao nível da superfície e precipitação observadas em Balbina.</i>	65
3.12	<i>Concentração de massa do material particulado, nas frações fina e grossa, por amostra.</i>	68
3.13	<i>Razão da concentração da massa do material particulado na fração fina para a concentração da massa do material particulado total.</i>	68
3.14	<i>Participação percentual dos elementos inorgânicos ($Z \geq 11$) em relação à massa total do material particulado, nas frações fina e grossa do material particulado, detectado pelo método PIXE, por amostra.</i>	70
3.15	<i>Razão das concentrações médias observadas durante o episódio I para as concentrações medidas durante o período II, para as frações fina e grossa do aerossol.</i>	71
3.16	<i>Concentração de massa dos elementos Si, Al, Fe e Ca, para cada amostra. No detalhe é colocada a ampliação do mesmo gráfico no setor de amostras correspondentes ao período II.</i>	72
3.17	<i>Concentração de massa dos elementos Na, Cl e S, por amostra.</i>	72
3.18	<i>Série temporal das concentrações totais medidas de Cl e Na (gráficos linha) e frações de Cl e Na associadas ao componente marinho, de solo e outros (gráficos barra).</i>	74
3.19	<i>Concentração de massa dos elementos K e P, por amostra.</i>	75
3.20	<i>Retro-trajetórias com 8 dias de integração iniciadas em Balbina no dia 05 de abril de 1998, a partir de 1750 metros de altitude. A escala de cores indica a altitude (em km) das parcelas de ar ao longo da integração.</i>	77
3.21	<i>Dendogramas obtidos a partir da análise de grupos considerando o agrupamento de casos (amostras) nas frações (a) fina e (b) grossa do material particulado. A nomenclatura dos grupos relacionados com o período de coleta das amostras: D-Diurno, N-Noturno, S-Episódio Saara e PS-Pico do Episódio Saara.</i>	80

3.22	<i>Dendogramas obtidos a partir da análise de grupos considerando o agrupamento dos elementos traços medidos na fração fina do material particulado: (a) considerando todas as amostras coletadas e (b) excluindo as amostras do período Saara. A nomenclatura dos grupos relaciona-os com o componente do particulado: s-solo, m-marinho, b-biogênico e q-queimadas.</i>	81
3.23	<i>Dendogramas obtidos a partir da análise de grupos considerando o agrupamento dos elementos traços medidos na fração grossa do material particulado: (a) considerando todas as amostras coletadas e (b) excluindo as amostras do período Saara. A nomenclatura dos grupos relaciona-os com o componente do particulado: s-solo, m-marinho, b-biogênico e q-queimadas.</i>	83
3.24	<i>(a) Razão da soma das concentrações elementares de [Al, Si, Ca, Ti e Fe] na fração grossa para a concentração de massa do material particulado na fração grossa versus velocidade do vento medido na superfície. (b) O mesmo para [Na, Cl e S]. O símbolo (●) foi utilizado para designar as amostras 01-05 (episódio I) e o símbolo (○) para as amostras 07-22 (período II). Em (a) o ajuste exclui as amostras do episódio Saara e em (b) são consideradas todas as amostras no ajuste.</i>	84
3.25	<i>Concentração de massa do material particulado grosso versus (a) temperatura e (b) umidade relativa medidas na superfície. O símbolo (●) foi utilizado para designar as amostras referente ao episódio I (episódio Saara) e o símbolo (○) para as amostras do período II. O ajuste exclui as amostras do episódio Saara.</i>	86
3.26	<i>Concentração do P versus concentração de “black-carbon”, ambos na fração grossa. O ajuste exclui as amostras noturnas.</i>	87
3.27	<i>Concentração de massa do (a) P e (b) K versus concentração de massa do material particulado grosso. O símbolo (●) foi utilizado para designar as amostras noturnas e o símbolo (○) para as amostras diurnas. As amostras referentes ao episódio I (episódio Saara) são salientadas por círculos duplos.</i>	88

3.28	Número normalizado de parcelas de ar, ao longo de 8 dias de integração de retro-trajetórias iniciadas durante o período de coleta da amostra 03D, nas camadas (a) entre 0 e 1 km, (b) entre 1 e 2 km, (c) entre 2 e 3 km, e (d) acima de 3 km.	90
3.29	Número normalizado de parcelas de ar, ao longo de 8 dias de integração de retro-trajetórias iniciadas durante o período de coleta da amostra 07D, nas camadas (a) entre 0 e 1 km, (b) entre 1 e 2 km, (c) entre 2 e 3 km, e (d) acima de 3 km.	91
3.30	Número normalizado de parcelas de ar, ao longo de 8 dias de integração de retro-trajetórias iniciadas durante o período de coleta da amostra 14D, nas camadas (a) entre 0 e 1 km, (b) entre 1 e 2 km, (c) entre 2 e 3 km, e (d) acima de 3 km.	92
3.31	Dados de índices de aerossóis (IA-TOMS) entre os dias 20 e 27 de março de 1998, inclusive.	93
3.32	Dados de índices de aerossóis (IA-TOMS) entre os dias 28 de março e 04 de abril de 1998, inclusive.	94
3.33	Concentrações de massa do material particulado, "black-carbon", Na, Cl, Al, Fe, K, P, S e Ca, na fração fina, versus o número percentual de parcelas de ar provenientes de níveis superiores a 2 km para o grupo de trajetórias conectado a cada uma das amostras (conforme a descrição do texto). O símbolo (●) designa as amostras do episódio Saara.	96
3.34	Concentrações de massa do material particulado, "black-carbon", Na, Cl, Al, Fe, K, P, S e Ca, na fração grossa, versus o número percentual de parcelas de ar provenientes de níveis superiores a 2 km para o grupo de trajetórias conectado a cada uma das amostras (conforme a descrição do texto). O símbolo (●) designa as amostras do episódio Saara.	97
3.35	Trajetoárias (a) convectivas e (b) não-convectivas, iniciadas a partir da área onde foram detectados pontos de queimada em Roraima e na Venezuela. Em ambos os conjuntos as trajetórias foram integradas por 10 dias a partir do dia 16 de março de 1998	99

3.36	<i>Perfil de concentrações de O₃ e CO medidos durante o vôo CLAIRE-08 sobre o Suriname, em 26 de março de 1998. A rota do vôo está indicada no detalhe da figura. Figura extraída da versão preliminar de [Andreae et al., 1999] obtida em comunicação pessoal com o primeiro autor (Apêndice E).</i>	102
3.37	<i>Trajetórias de massas de ar (3-D convectivas) com 8 dias de integração a partir de Roraima; e retro-trajetórias com 2 dias de integração a partir do Suriname. A escala de cores indica a altitude das trajetórias. Figura extraída da versão preliminar de [Andreae et al., 1999] obtida em comunicação pessoal com o primeiro autor (Apêndice E).</i>	103
3.38	<i>Imagem do satélite GOES-8, no canal IR, no dia 18 de março as 18:00 UTC. O sistema convectivo responsável pelo transporte vertical das massas de ar provenientes de Roraima está demarcado.</i>	103
3.39	<i>Altitude das posições das parcelas de ar ao longo das trajetórias inicializadas em Roraima no dia 16 de março.</i>	104
4.1	<i>Campo de vento médio para o período do experimento SCAR-B, de 16 de Agosto a 11 de Setembro de 1995, derivado a partir de quatro re-análises globais diárias (00, 06, 12, 18 UTC) do NCEP "National Center for Environmental Prediction", em (a) 700 hPa e (b) 500 hPa. A área de abrangência do experimento e Cuiabá estão identificadas em (a).</i>	108
4.2	<i>Distribuição de número de pixels de fogo detectados pelo sistema GOES-8 ABBA durante (a) a estação de queimadas (junho a outubro) de 1995 e (b) durante o período do experimento SCAR-B, ambos às 17:45 UTC. O número de fogos detectados durante o SCAR-B corresponde a ~ 40% do total detectado entre os meses de junho a outubro de 1995. Adaptado de [Prins et al., 1998].</i>	110
4.3	<i>Imagem do satélite GOES-8, no canal visível, nos dias (a) 29 de agosto de 1995 e (b) 04 de setembro de 1995, ambas às 11:45 UTC. A linha de contorno verde identifica a cobertura de fumaça.</i>	112

4.4	<i>Distribuição das posições das parcelas de ar calculadas ao longo de trajetórias com seis dias de integração. Em (a), (b) e (c) as trajetórias foram iniciadas a partir do nível de 700 hPa, sobre as principais áreas de queimadas, identificadas em cada um dos mapas. E, (d) inclui as trajetórias iniciadas em todas as três áreas anteriores. Nos mapas estão identificadas as posições de Porto Velho - RO, Cuiabá e Alta Floresta - MT e Porto Nacional - TO.</i>	114
4.5	<i>Grupamento de trajetórias de parcelas de ar, com 6 dias de integração, iniciadas a partir das principais áreas de queimadas à 1000 metros de altitude. Período de integração (a) 22 - 29 de agosto e (b) 28 agosto à 04 de setembro. A escala de cores indica a altitude das trajetórias.</i>	116
4.6	<i>Concentrações médias de ozônio entre 1000 e 500 hPa, ponderadas pela nível de pressão, a partir dos resultados das sondagens de ozônio em Cuiabá entre 16 de agosto e 10 de setembro de 1995.</i>	118
4.7	<i>Resultados das sondagens de ozônio (ppbv), umidade relativa (%), e temperatura ($^{\circ}C$) em Cuiabá para o período 1: (a) 26 de agosto, (b) 27 de agosto, (c) 29 de agosto, (d) 31 de agosto. As setas indicam os níveis a partir dos quais foram inicializadas retro-trajetórias. A data e horário de lançamento é mostrado acima de cada gráfico.</i>	119
4.8	<i>Resultados das sondagens de ozônio (ppbv), umidade relativa (%), e temperatura ($^{\circ}C$) em Cuiabá para o período 2: (a) 7 de setembro, (b) 8 de setembro, (c) 9 de setembro, (d) 10 de setembro. As setas indicam os níveis a partir dos quais foram inicializadas retro-trajetórias. A data e horário de lançamento é mostrado acima de cada gráfico.</i>	120
4.9	<i>Série temporal com médias diárias de "black-carbon", espessura óptica de aerossóis ($0.669 \mu m - AOT$), e vapor d'água precipitável. No cálculo das médias foram considerados medidas entre 12:00 e 18:00 UTC.</i>	122

4.10	Concentrações médias de “black-carbon” para um “dia médio” entre 16 de agosto e 10 de setembro. Os círculos indicam horários com concentrações e variabilidade mais baixas.	122
4.11	(a) Medidas ao nível da superfície de “black-carbon” e (b) vapor d’água precipitável versus espessura óptica de aerossóis ($0.669 \mu\text{m}$ - AOT). O símbolo (\circ) é utilizado em dias com baixo AOT. O símbolo (+), no interior das elipses duplas, indica dias em que o AOT aumentou devido ao acúmulo de fumaça durante um período de alta subsidência. Os dias em que o aumento no AOT correspondem a um aumento no vapor d’água são representados por (\bullet) no interior das elipses simples.	124
4.12	Ozônio médio (entre 1000 e 500 hPa) como função da espessura óptica de aerossóis ($0,669 \mu\text{m}$ - AOT). Um padrão similar de separação que ocorreu para o “black-carbon” e vapor d’água (figura elipses) se repete para o ozônio.	125

Abreviações	
ABBA	“Automated Biomass Burning Algorithm”
ABLE	“Amazon Boundary Layer Experiment”
AERONET	“AErosol RObotic NETwork”
AFG	Amostrador de particulado Fino e Grosso
AOT	“Aerosol Optical Thickness”
AVHRR	“Advancend Very High Resolution Radiometer”
BC	“Black-Carbon”
CIMSS	“Cooperative Institute for Meteorological Satellite Studies”
COV	Composto Orgânico Volátil
CAS	Camada de Ar do Saara
CARMA	“Community Aerosol Model”
CLAIRE	“Cooperative LBA Airborne Regional Experiment”
CLS	“Cloud Lidar System”
ECC	“Electrochemical Concentration Cell”
ENSO	“El-Niño - Southern Oscilation”
EOS	“Earth Observing System”
GEPA	Grupo de Estudos de Poluição do Ar
GOES	“Geostationary Operational Environmental Satellites”
IA	Índice de Aerossóis
INMET	Instituto Nacional de METeorologia
INPE	Instituto Nacional de Pesquisa Espaciais
ISAN	“Isentropic ANalysis package”
LBA	“Large scale Biosphere Atmosphere experiment in Amazonia”
LI	Linha de Instabilidade
MODIS	“MODerate resolution Imaging Spectroradiometer”
MPF	Massa do Particulado Fino
MPG	Massa do Particulado Grosso
MPT	Massa do Particulado Total
NASA	“National Aeronautics & Space Administration”
NCEP	“National Center for Environmental Prediction”
NCL	Nível de Condensação por Levantamento

Abreviações (cont.)	
NCN	Núcleo de Condensação de Nuvens
NOAA	“National Oceanic and Atmospheric Administration”
PIXE	“Particle - Induced X-Ray Emission”
RAMS	“Regional Atmospheric Modeling System”
SCAR-B	“Smoke, Clouds, and Radiation-Brazil”
TOMS	“Total Ozone Mapping Spectrometer”
TRACE-A	“TRansport and Atmospheric Chemistry near the Equator-Atlantic”
VAS	“Visible infrared spin scan Radiometer Sounder”
ZCIT	Zona de Convergência Inter-Tropical

Capítulo 1

Introdução

A região Amazônica tem sofrido nas últimas décadas rápidas mudanças quanto ao uso da terra [Fearnside, 1987; 1991]. A intensa atividade de desflorestamento e suas potenciais consequências no clima regional e global têm sido alvo de preocupação da comunidade científica [Salati *et al.*, 1984; Andreae, 1991; Kaufman *et al.*, 1998], e a influência das regiões tropicais no clima global do planeta Terra tem sido evidenciada [Andreae & Crutzen, 1997]. Diversos autores têm mostrado que as emissões de gases traços e partículas de aerossóis atmosféricos em regiões tropicais ocorrem em quantidades significativas em relação às emissões globais [Hao *et al.*, 1990; Mueller, 1992; Guenther *et al.*, 1995].

A alta disponibilidade de radiação solar nos trópicos ao longo de todo o ano e as características climáticas associadas, tornam a atmosfera tropical um ambiente de alta reatividade química. A atmosfera mistura e transporta constituintes traços em várias escalas de espaço e tempo. O transporte atmosférico é governado pela velocidade do vento em larga escala e pela turbulência em escala menores. Kley [1997] estima que, trocas inter-hemisféricas ocorrem numa escala de tempo de 1-2 anos; o transporte meridional através de cinturões de latitude, em meses; o transporte zonal em bandas de latitudes constantes, em 2 semanas; e a mistura vertical na troposfera demora, em média, 1 mês. Entretanto, em eventos de convecção profunda o tempo de transporte vertical pode ser reduzido à escala de horas [Freitas, 1999]. A atmosfera de regiões tropicais, por possuir intensa atividade convectiva, é altamente eficiente na exportação de seus constituintes traços para regiões distantes das fontes emissoras.

A variabilidade na precipitação sobre as regiões central do Brasil e Amazônica é dominada por um claro ciclo sazonal. Os meses de primavera e verão no hemisfério Sul caracterizam-se por altas taxas de precipitação, e são referidos como estação úmida ou chuvosa. Enquanto que, a estação seca é característica dos meses de outono e inverno no hemisfério Sul [Nobre *et al.*, 1998].

Em ambas as estações, seca e úmida, os sistemas meteorológicos de larga escala são fatores determinantes no estabelecimento da meteorologia regional Amazônica. Segundo Greco *et al.* [1990] as ocorrências de precipitação na região Amazônica têm nos sistemas de mesoescala à escala sinótica fator dominante, a despeito da aparentemente forte variabilidade diária na cobertura de nuvens observada sobre a região. Em particular, a posição relativa dos anticiclones tropicais da baixa troposfera possui um papel determinante na injeção de ar e na formação de grandes sistemas convectivos no interior da bacia Amazônica [Talbot *et al.*, 1990]. Os principais sistemas responsáveis por eventos de precipitação na região amazônica foram categorizados por Greco *et al.* [1990] em:

- Linhas de Instabilidade (LIs), sistemas na faixa de meso escala à escala sinótica, cuja formação é induzida pela circulação da brisa do mar na costa norte da América do Sul. As LIs são linhas organizadas de cumulus nimbus paralelos à costa, que chegam a atingir um comprimento de 3500 km e, em geral, se propagam em direção ao interior da bacia Amazônica à uma velocidade de 50-60 km/h. A localização meridional inicial das LIs seguem a Zona de Convergência Inter-Tropical (ou ZCIT). De janeiro a maio, quando a ZCIT está ao sul de 6°N, as LIs se formam ao sul desta latitude; de junho a dezembro a ZCIT e as LIs estão ao norte de 6°N [Silva Dias *et al.*, 1992].
- Sistemas de mesoescala à escala sinótica que se formam no interior da bacia Amazônica, cujo tamanho varia de 1000 a 100000 km².
- Pequenos sistemas convectivos formados localmente, em geral de tamanhos inferiores a 1000 km² e que possuem um ciclo de vida curto, em geral, da ordem de algumas horas.

Os sistemas convectivos possuem um papel importante na redistribuição planetária de calor, dos trópicos para latitudes médias. Estes mesmos sistemas in-

fluenciam fortemente no processamento fotoquímico, transporte à longa distância e deposição de gases traços e de partículas de aerossóis produzidos no interior da bacia Amazônica, interferindo na composição química atmosférica local e global.

1.1 A composição da atmosfera Amazônica

Resultados dos experimentos ABLE “Amazon Boundary Layer Experiment” 2A e 2B realizados na região Amazônica durante a estação seca de 1985 e estação úmida de 1987, respectivamente, mostraram que o material orgânico contabiliza em torno de 90% da concentração total de partículas de aerossóis medidos sobre a floresta Amazônica [Artaxo *et al.*, 1990; Talbot *et al.*, 1990]. Entretanto, as concentrações absolutas e as composições das partículas de aerossóis e gases traços na atmosfera Amazônica apresentam características peculiares às estações úmida e seca. A variabilidade sazonal observada na composição química da atmosfera Amazônica deve-se a ocorrência de diferentes fontes emissoras e padrões de circulação atmosférico durante os dois períodos.

1.1.1 Estação úmida

Gases traços e partículas de aerossóis biogênicos

Durante a estação úmida a abundância de partículas de aerossóis orgânicos é, em geral, atribuída à emissão biogênica natural da floresta, através da emissão direta de partículas orgânicas e compostos orgânicos voláteis (COV's). Parte dos COV's são convertidos em partículas por mecanismos de conversão gás-partícula (figura 1.1). Estes processos consistem, em linhas gerais, na formação de partículas a partir da transferência de massa da fase gasosa para a fase de particulado dos produtos resultantes da oxidação de COV's, por compostos tais como OH, O₃ e NO₃, visando estabelecer o equilíbrio entre as fases gasosa e de particulado [Seinfeld & Pandis, 1997].

O rendimento das reações de produção de partículas de aerossóis orgânicos a partir da oxidação de COV's é extremamente variável e dependente de inúmeros fatores. O rendimento da reação de produção de partículas de aerossóis orgânicos via foto-oxidação diurna de terpenos varia de 5 a 100% [Andreae & Crutzen,

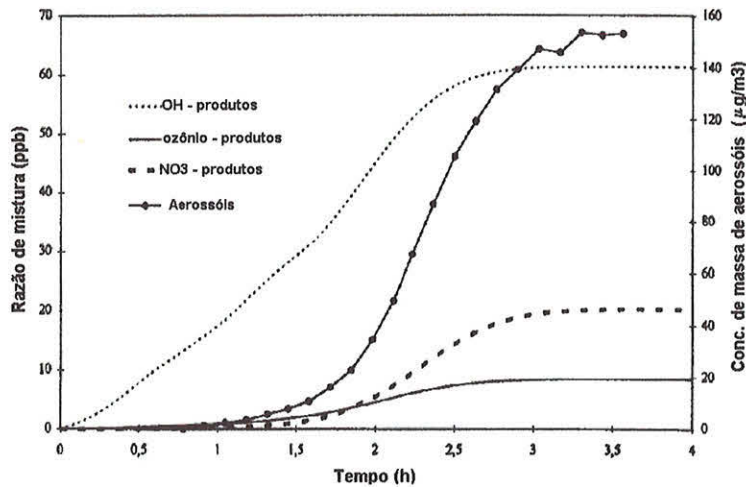


Figura 1.1: Produção de partículas de aerossóis a partir de precursores gasosos orgânicos [Hoffman *et al.*, 1997]. Em câmaras de laboratório, observou-se uma formação rápida de aerossóis a partir de precursores gasosos de COV's. Estas reações são mediadas por O_3 e NO_x ($NO + NO_2$). Figura adaptada de Hoffman *et al.*, [1997].

1997]. Entretanto, Hoffmann *et al.* [1997] observaram que, para a grande maioria dos compostos, a oxidação noturna por O_3 é, via de regra, muito mais eficiente que os processos fotoquímicos diurnos. Embora a ocorrência de processos de transformação de COV's em partículas sejam bem estabelecidos, a compreensão destes processos ainda é bastante limitada. Uma questão particularmente importante, e ainda não respondida, é se os produtos resultantes da oxidação de COV's apenas acrescentam massa por condensação em partículas pré-existentes na atmosfera ou se contribuem (e o quanto contribuem) efetivamente na concentração do número de partículas [Hoffmann *et al.*, 1998].

De acordo com Guenther *et al.* [1995], a emissão natural de COV's pela vegetação de regiões tropicais contribui com metade do total global das emissões naturais de COV's (figura 1.2). Inventários globais de emissões naturais de COV's indicam que a emissão natural anual de isoprenos e monoterpenos excedem à emissão antropogênica de COV's [Mueller, 1992]. Em regiões tropicais, o isopreno é o composto dominante, sendo sua emissão relacionada à atividade fotossintética da planta. Medidas de isopreno, em uma região de floresta na Pen-

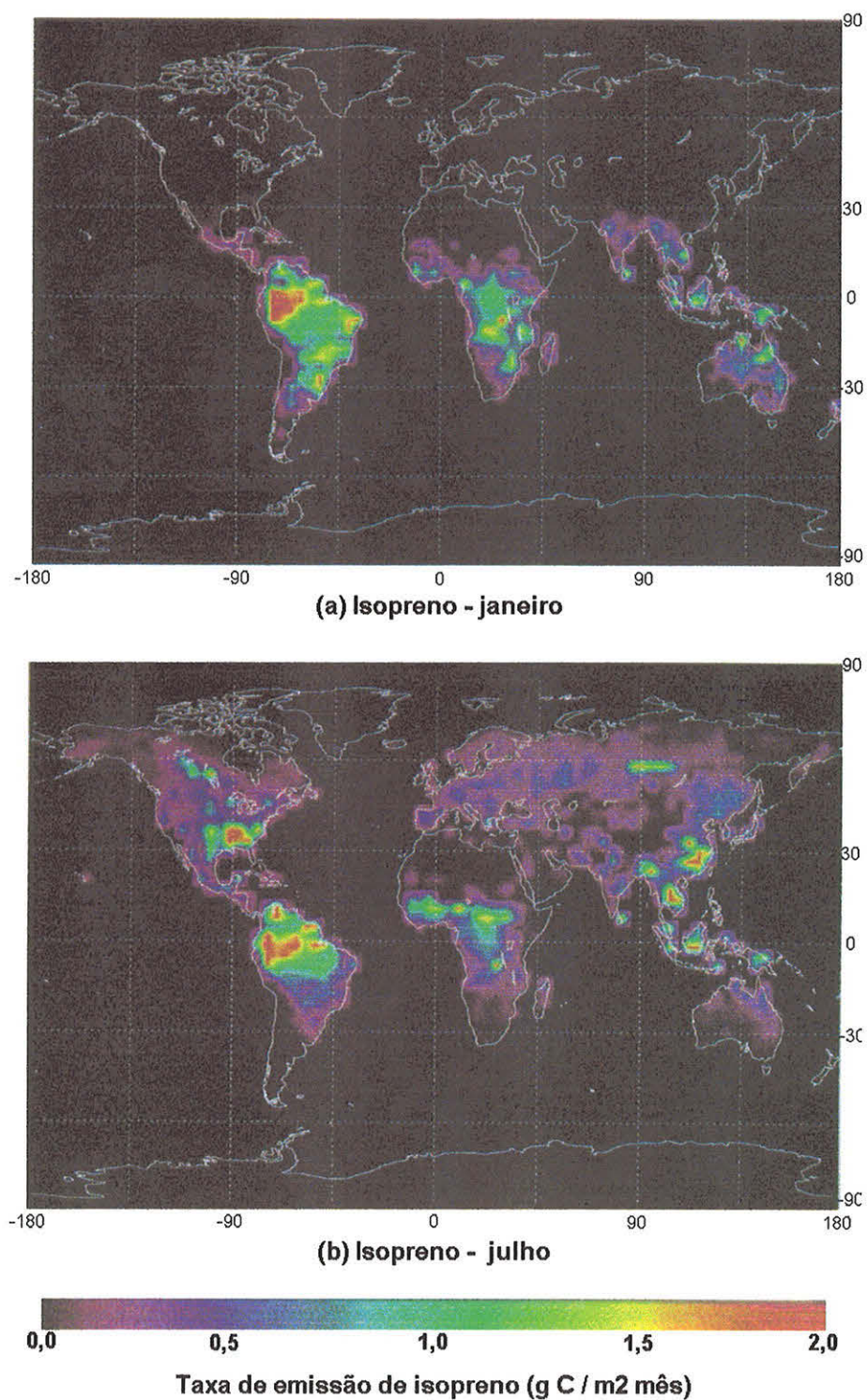


Figura 1.2: Estimativas de taxas de emissões globais de isopreno (g C/ m² mês) para os meses de (a) janeiro e (b) julho. A emissão de isopreno em regiões tropicais é estimada em 57% das emissões globais de COV's. Adaptado de [Guenther et al., 1995].

silvânia, Estados Unidos, mostraram que a taxa de emissão deste composto é altamente dependente da intensidade de luz e da temperatura ambiente [Fehsenfeld, 1992]. A emissão de isopreno é, predominantemente, diurna e favorecida por altas temperaturas. Em regiões tropicais, segundo estimativas de Guenther *et al.* [1995], estas emissões naturais ocorrem continuamente ao longo do ano, não possuindo um claro padrão de emissão sazonal (figura 1.2). As altas taxas de emissão de COV's, em particular dos terpenos, pela vegetação de florestas tropicais e as condições de temperatura e disponibilidade de radiação solar nos trópicos, indicam que estas áreas possuem um alto potencial para formação de partículas de aerossóis orgânicos a partir da oxidação de COV's.

A taxa de emissão de COV's é crítica no controle da concentração do radical OH troposférico, possuindo um papel importante na determinação da taxa de crescimento das concentrações atmosféricas de compostos como o CH₄ e O₃, [Fehsenfeld, 1992; Guenther *et al.*, 1995]. É importante ressaltar que tais compostos participam do balanço radiativo da atmosfera e, portanto, a taxa de emissão natural de COV's da floresta pode estar relacionada com o clima regional. Além destes efeitos indiretos, Andreae e Crutzen [1997] sugerem que, como as partículas de aerossóis biogênicos, ambos primários e secundários, atuam como núcleos de condensação de nuvens e as partículas orgânicas primárias podem atuar como núcleos de condensação de gelo, as propriedades da microfísica das nuvens em regiões continentais tropicais são fortemente influenciadas por estas partículas. Em geral, o padrão de emissão natural de compostos orgânicos é regulado por fatores climáticos, por exemplo, temperatura e radiação solar, e seria radicalmente alterado por mudanças na cobertura vegetal e uso da terra. O conjunto destes fatores sugerem que os efeitos das emissões naturais de aerossóis pela floresta Amazônica possam extrapolar a escala regional, podendo, inclusive, ser fator determinante no padrão de redistribuição planetária de calor dos trópicos para latitudes médias e altas via convecção profunda [Andreae & Crutzen, 1997].

Os mecanismos de emissão direta de partículas biogênicas ainda não são completamente compreendidos, mas provavelmente incluem mecanismos tais como a abrasão pelo vento, a atividade biológica de micro-organismos na superfície da floresta, e processos fisiológicos das plantas, como por exemplo a transpiração. As partículas biogênicas primárias incluem pólen, fragmentos de folhas, fungos,

bactérias, germes, fragmentos de insetos, materiais húmicos. Material particulado contendo Zn, Pb, e Cu são produzidos pelas plantas mais altas [Beauford, 1977]. Elementos biogênicos, tais como K, P, S, Zn, e Rb, são essenciais para as plantas superiores. Eles estão presentes nos fluidos vegetais e são liberados pela folhagem para a atmosfera [Nemwruyk, 1970].

As propriedades de absorção de radiação das partículas de aerossóis biogênicos na estação úmida são provavelmente relacionadas à presença de matéria húmica. Durante a estação chuvosa, o componente do material particulado que eficientemente absorve radiação solar aparece associado ao S, K, Ca, Zn na fração fina e além destes ao P na fração grossa do material particulado [Yamasoe, 1984; Echalar *et al.*, 1998].

Estudos anteriores mostraram que a vegetação é uma importante fonte natural de material particulado [Artaxo *et al.*, 1988; 1990; 1994], e que as partículas de aerossóis biogênicos representam um parcela significativa das partículas de aerossóis atmosféricos que participam dos ciclos biogeoquímicos de elementos tais como o carbono [Marenco & Delauney, 1980], o enxofre [Delmas & Servant, 1983], e o potássio [Croizat, 1979].

Aerossóis do Saara na Amazônia

Na composição elementar das partículas de aerossóis observados na região Amazônica durante a estação úmida, além da fração dominante atribuída as emissões biogênicas, observa-se também uma fração identificada como solo em suspensão e outra atribuída a aerossóis de origem marinha. Gerab [1996] analisou a composição elementar de partículas de aerossóis coletados, de 1991 a 1994, em uma estação de monitoramento atmosférico em Serra do Navio (0.9°N, 52°O), no Estado do Amapá, região de floresta tropical primária, aproximadamente à 250 km da costa litorânea. A concentração de massa do particulado na fração grossa teve uma atribuição de 44% aos componentes de solo em suspensão e emissão biogênica, e 51% ao componente marinho. A fração grossa da massa do particulado não apresentou sazonalidade. Entretanto, foram observados picos isolados, nos quais a concentração do material particulado grosso chegou a ser 3 vezes superior a média observada. Ainda, aproximadamente 10% do Al e 7% do Si aparecem associados ao componente marinho, indicando a possibilidade de

transporte de partículas de aerossóis do Saara sobre o oceano Atlântico.

No interior da bacia Amazônica, em locais mais distantes da costa litorânea, também existem relatos de ocorrências de episódios caracterizados por um acréscimo na concentração dos elementos associados aos componentes de solo e marinho durante a estação chuvosa (Talbot *et al.*, 1990; Swap *et al.*, 1992]. Na estação chuvosa de 1987, Talbot *et al.* [1990] registraram que durante um destes episódios, o componente de solo contabilizou de 75-80% da massa de partículas de aerossóis na camada limite planetária, emissões biogênicas somaram 15-20%, e sal marinho e sulfatos contribuíram com o restante. Tal enriquecimento de elementos associados ao componente de solo não é esperado durante a estação chuvosa na região Amazônica e sugerem fortemente a possibilidade de eventos de transporte de longa distância. O padrão de circulação atmosférica na região Amazônica, entre outros fatores, sugere que o transporte de poeira do deserto do Saara seja o responsável por esses episódios. De fato, o transporte de poeira do deserto do Saara através do oceano Atlântico, sobre distâncias superiores a 5000 km, tem sido bem documentado. As partículas de aerossóis do Saara chegam a atingir o Caribe [Prospero & Carlson, 1972; Savoie *et al.*, 1989], a costa sul dos Estados Unidos [Savoie & Prospero, 1977], a Europa [DeAngelis & Gaudichet, 1991], e a costa nordeste da América do Sul [Swap *et al.*, 1992; 1996].

O transporte das partículas de aerossóis do Saara sobre o oceano Atlântico ocorre em camadas de ar seco de estabilidade neutra, confinadas entre duas camadas de inversão térmica. Estas camadas de estabilidade são comumente conhecidas como Camadas de Ar do Saara (CAS) e estão situadas em níveis relativamente baixos, em geral abaixo de 3 km (700 hPa). Hsu *et al.* [1999], utilizando radiossondagens diárias durante o ano de 1997, mostraram a variabilidade sazonal da altitude de uma CAS. A figura 1.3 indica uma CAS sobre Dakar, Senegal, situada entre 0.5 e 3.0 km (950 - 700 hPa) durante os meses de inverno no hemisfério norte; e entre 1.5 e 5.5 km (850 - 550 hPa) durante os meses de verão.

Uma CAS sobre o oceano Atlântico chega a produzir uma espessura óptica de extinção¹ da ordem de 1 sobre extensas áreas de até 10⁶ km² [Prospero & Nees,

¹A espessura óptica de extinção τ , ou simplesmente espessura óptica, é uma medida da quantidade de matéria opticamente ativa na coluna atmosférica. ($L_\lambda = L_{0\lambda}e^{-\tau}$, onde $L_{0\lambda}$ é

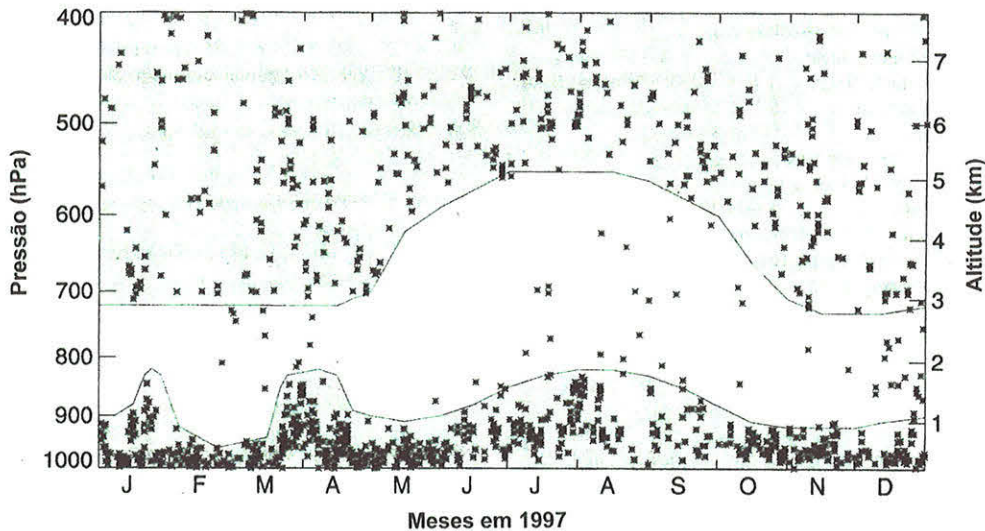


Figura 1.3: Variação sazonal de uma camada de ar do Saara (CAS) sobre Dakar, Senegal, baseada em dados diários de radiossondagem durante 1997. Os asteriscos denotam a altitude central de cada camada de inversão encontrada nos dados de radiossondagem. A área não sombreada representa uma camada de ar de estabilidade neutra, limitada acima e abaixo por duas camadas de inversão na baixa troposfera. Adaptado de [Hsu et al., 1999].

1986]. A convecção é fortemente inibida nestas condições, e a CAS retro-alimenta suas condições de estabilidade ao longo do transporte. Sobre o continente, estas condições podem ser ainda mais severas. Na Nigéria foram relatados eventos em que a suspensão e advecção de poeira de solo chegou a produzir uma espessura óptica da ordem de 2, resultando em uma redução média da radiação solar da ordem de 28% e um conseqüente decréscimo na temperatura de até 6°C [Prospero & Nees, 1986].

Técnicas de sensoriamento remoto têm sido utilizadas com frequência no monitoramento do transporte de poeira do deserto do Saara sobre o oceano Atlântico [Swap et al., 1996; Chiapello et al., 1999; Hsu et al., 1999]. Na figura 1.4 medidas de espessura óptica de aerossóis, utilizando o sensor AVHRR/NOAA “Advanced Very High Resolution Radiometer”, sobre áreas oceânicas, indicam um a radiância espectral no topo da atmosfera ($Wm^{-2}sr^{-1}\mu m^{-1}$) e L_{λ} é a radiância espectral ao nível da superfície, desprezando os efeitos de curvatura da Terra).

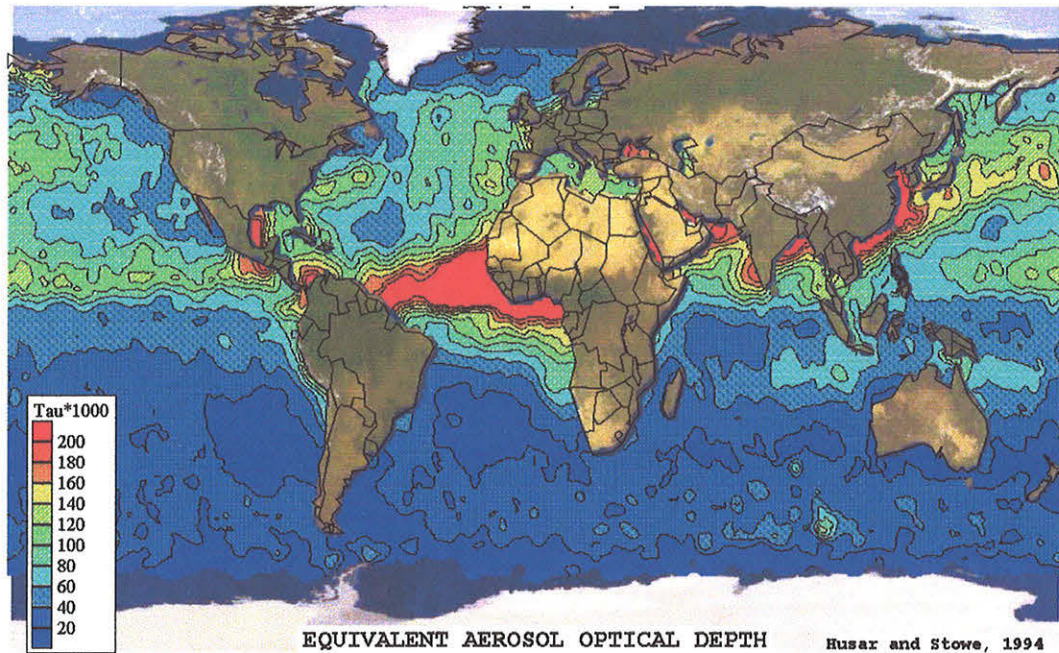


Figura 1.4: Medidas de espessura óptica de aerossóis utilizando o sensor AVHRR-NOAA sobre áreas oceânicas. Observa-se um forte transporte de poeira do deserto do Saara para a parte norte da Amazônia nos meses de março, abril e maio.

forte transporte de poeira do deserto do Saara para a parte norte da Amazônia nos meses de março, abril e maio. Este influxo pode ter influência ainda não conhecida nas propriedades atmosféricas e na ciclagem de nutrientes na Amazônia.

Estudos de longo termo possibilitaram a caracterização da distribuição espacial e temporal destes episódios. Swap *et al.* [1996] determinaram, utilizando dados de espessura óptica de aerossóis do sensor AVHRR/NOAA, as características espaciais e temporais destes episódios de transporte. Ao longo de todo o ano, observa-se que nuvens de areia, com uma largura média de 10^0 em latitude, deixam a costa noroeste da África entre as latitudes 5^0S e 20^0N e são transportadas, preferencialmente, em direção a oeste. A intensidade, frequência e posição das CAS's sofrem variações mensais. Os episódios de suspensão e transporte de poeira do Saara são mais intensos e frequentes durante os seis primeiros meses do ano, sendo que durante este período a área sobre o oceano Atlântico impactada pelas CAS's é superior à área impactada nos seis meses subsequentes. Durante o verão

austral, quando a zona de convergência inter-tropical, ou ZCIT, se move para o sul em direção ao equador e atinge uma maior penetração na bacia Amazônica, as CAS's se localizam em sua posição mais ao sul. Seu ponto de localização mais próximo do equador, entre 0° e 5°N , ocorre no mês de janeiro. Durante os meses de agosto e setembro, acompanhando o movimento da ZCIT para norte, as CAS's chegam a atingir a faixa de latitudes 20° e 25°N .

Suspeita-se que a penetração das CAS's e subsequente deposição das partículas de aerossóis na bacia Amazônica ocorre durante a formação e eclosão de fortes eventos convectivos no interior da região Amazônica, desde que estes sejam intensos o suficiente para perturbar a estabilidade de uma CAS que porventura se encontre próxima à costa norte/nordeste da América do Sul. Alguns autores levantam a possibilidade do transporte de poeira do deserto do Saara ser uma fonte importante de nutrientes para a floresta Amazônica [Reichholf, 1986; Swap *et al.*, 1992]. Swap *et al.* [1992] estimam que este transporte é responsável por um fluxo de depósito de fósforo da ordem de $0.011 - 0.047 \text{ (kg ha}^{-1}\text{ano}^{-1}\text{)}$. E sugere que, embora este fluxo pareça não ser importante em uma escala curta de tempo (10^1 - 10^2 anos), seria suficiente para afetar o ciclo biogeoquímico deste nutriente após 10^2 - 10^3 anos de efeito acumulativo. A baixa disponibilidade de fósforo no solo da região Amazônica constitui um fator limitante para o crescimento da floresta [Jordan, 1985].

1.1.2 Estação seca

Durante a estação seca, a alta taxa de emissão de matéria orgânica na região Amazônica está associada à intensa atividade de queima de biomassa. Nas regiões Amazônica e central do Brasil, entre os meses de julho a outubro, ocorrem intensas queimadas antropogênicas [Andreae, 1991; Crutzen & Goldammer, 1993]. Estas queimadas ocorrem em vegetações do tipo cerrado, pastagens e floresta tropical. Em sua maior parte, atingem a região de transição entre os dois ecossistemas, na qual o processo de desflorestamento é mais intenso. Queimadas em regiões tropicais constituem uma importante fonte de poluição atmosférica, emitindo uma grande quantidade de gases, tais como CO, CO₂, NO_x (NO + NO₂), hidrocarbonetos, entre outros [Crutzen *et al.*, 1979]; e de partículas de

aerossóis Artaxo *et al.*, 1998].

Gases que não são emitidos diretamente durante a queima de biomassa, mas que resultam de reações secundárias dos produtos de emissões de queimada, mostram um enriquecimento na concentração durante a estação seca, ou estação de queimadas. A concentração de ozônio troposférico na bacia Amazônica, que durante a estação úmida é geralmente inferior a 10 ppbv [Gregory *et al.*, 1990], pode chegar a exceder uma centena de ppbv durante a estação seca [Kirchhoff *et al.*, 1992; Thompson *et al.*, 1996; Longo *et al.*, 1999]. O ozônio troposférico é produto da oxidação fotoquímica de hidrocarbonetos e CO na presença de NO_x , emitidos abundantemente durante a queima de biomassa. A intensa atividade de queimadas, na América do Sul e na África, é responsável por altos níveis de ozônio e CO na região do oceano Atlântico equatorial. Durante o experimento TRACE-A “Transport and Atmospheric Chemistry near the Equator-Atlantic” foram observadas concentrações de ozônio na média e alta troposfera (4-13 km) superiores a 75 ppbv [Browell *et al.*, 1996]. Observou-se que a composição química destas massas de ar, ricas em ozônio, era bastante próxima da composição química das plumas de queimadas, exceto quanto a uma redução significativa nas concentrações de gases solúveis e de partículas de aerossóis e quanto ao aumento nas concentrações de ozônio. A convecção profunda foi identificada como o principal mecanismo inicial de transporte à longa distância de emissões de queimada. Estimativas indicam que o transporte, via convecção profunda, das emissões de queimada na América do Sul é responsável por 20-30% do excesso de ozônio observado sobre o oceano Atlântico Sul [Thompson *et al.*, 1996; 1997]. Este excesso de ozônio sobre o Atlântico possui um tempo de vida estimado em 1-2 semanas. O ozônio troposférico pode, também, ser originário da estratosfera. Entretanto, resultados do experimento TRACE-A mostraram que o fluxo de ozônio da estratosfera para a troposfera na região do Atlântico Equatorial é desprezível [Jacob *et al.*, 1996].

A concentração de material particulado inalável, medido ao nível da superfície na região Amazônica, apresenta forte sazonalidade (figura 1.5). Concentrações de partículas de aerossóis, ao nível do solo, que podem ser superiores a $300 \mu\text{g}/\text{m}^3$, e altos valores de espessura óptica de aerossóis, chegando a 4.0 (em $0.440 \mu\text{m}$), medidos na região durante a estação de queimadas [Echalar *et al.*, 1998], indicam

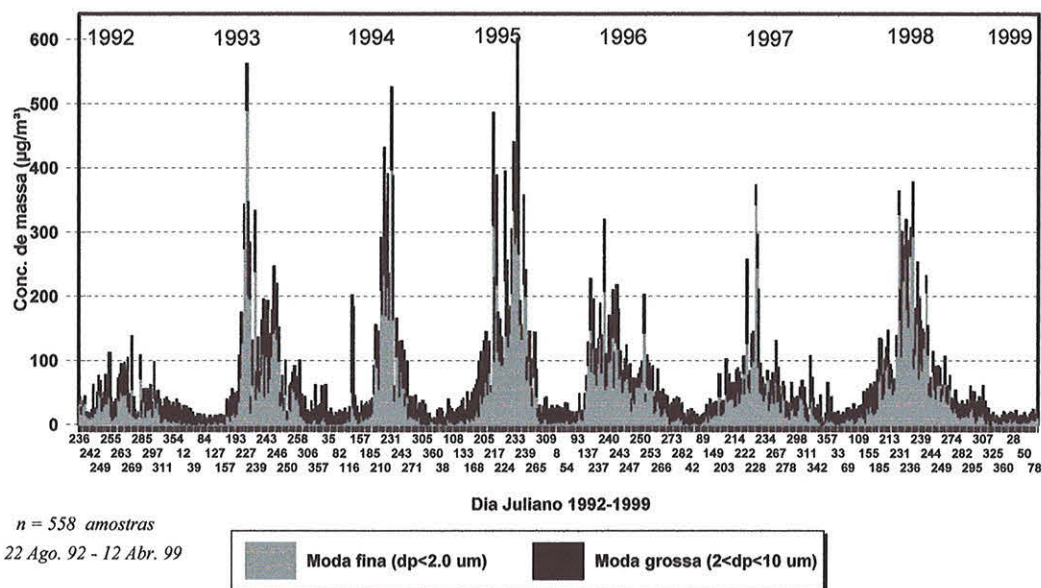


Figura 1.5: Série temporal da concentração de massa de aerossóis nas frações fina e grossa, medidas em Alta Floresta-MT, entre os anos de 1992 e 1999. Resultados obtidos na estação de monitoramento atmosférico mantida pelo Grupo de Estudos de Poluição do Ar (GEPA) da Universidade de São Paulo (USP).

uma quantidade significativa de partículas de aerossóis em toda a coluna atmosférica. Reid *et al.* [1998], avaliaram que o albedo simples, a fração da atenuação óptica correspondente ao espalhamento, de partículas de aerossóis provenientes da queima de biomassa é aproximadamente 0,82; ou seja, estes aerossóis absorvem 18% da radiação incidente. Todos estes fatores sugerem uma significativa forçante radiativa associada à estes aerossóis, aquecendo ou esfriando a atmosfera, dependendo da refletância da superfície [Martins, 1999].

Estudos sobre a composição elementar das partículas de aerossóis na região Amazônica têm mostrado que, durante a estação seca, a emissão de “black-carbon”², o qual sabe-se ser majoritariamente fuligem proveniente da combustão, está associada à conhecidos elementos traçadores de emissões de queimadas como,

²A definição de “black-carbon” inclui as diversas espécies de carbono particulado, que eficientemente absorvem radiação. Uma das possíveis traduções para o português do termo “black-carbon” seria ‘negro de fumo’, entretanto, neste trabalho optou-se por manter o termo em inglês.

por exemplo, S, K, Cl, Ca e Zn, na fração fina do material particulado [Yamasoe, 1994; Echalar *et al.*, 1998; Artaxo *et al.*, 1998]. Echalar *et al.* [1998] compararam a composição elementar de partículas de aerossóis atmosféricos em duas estações de monitoramento atmosférico de longo termo na região Amazônica: uma delas em região de floresta (Alta Floresta) e a outra em área de vegetação predominante de cerrado (Cuiabá). É interessante observar que, na região de cerrado, a razão da concentração de “black-carbon” (BC) para a concentração de massa do particulado fino (MPF) ou seja, a participação de BC na moda fina, apresenta uma marcante sazonalidade associada à periodicidade das queimadas. Por outro lado, na região onde há predominância de floresta esta variabilidade é muito discreta, a despeito da abundância de queimadas durante o período de seca também na região de floresta.

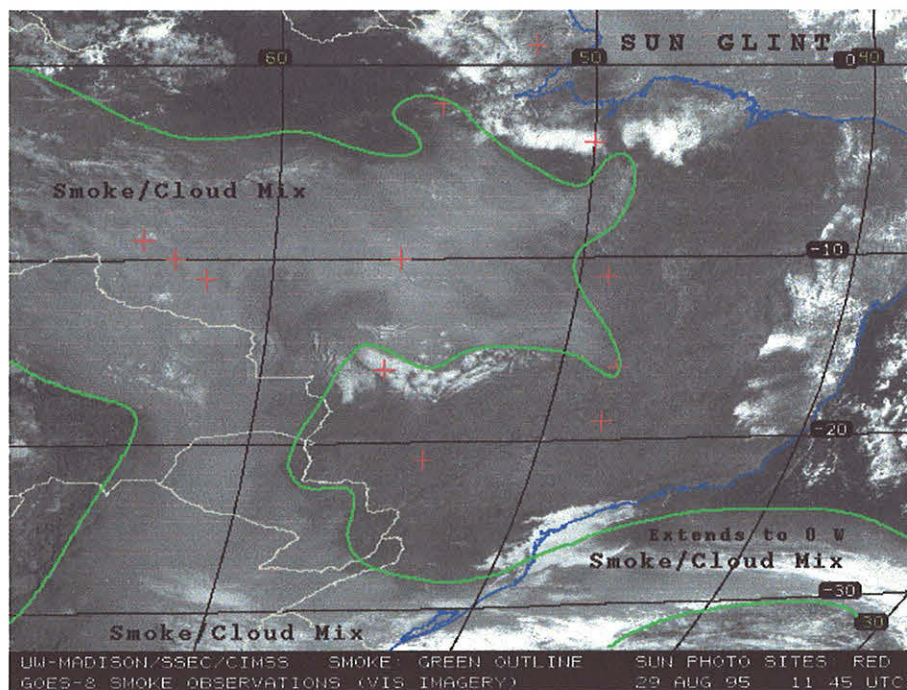


Figura 1.6: Imagem do satélite GOES-8 “Geostationary Operational Environmental Satellites” no canal visível, a linha verde contornando a cobertura de fumaça no dia 29 de agosto de 1995 às 11:45 UTC.

A emissão quase contínua de aerossóis de queimada para a atmosfera, que possuem um tempo de subsidência de aproximadamente uma semana [Kaufman,

1995], durante um período da ordem de quatro meses, promove uma espessa camada de fumaça sobre as regiões Norte e Centro Oeste do Brasil (figura 1.6). Ainda, as altas temperaturas envolvidas na fase de chamas da combustão e os sistemas convectivos, comuns na região Amazônica mesmo durante a estação seca, são responsáveis por transportar estes poluentes da camada limite para a média e alta troposfera. Por exemplo, a entrada de frentes frias provenientes da região sul do país, favorecem o movimento convectivo ascendente e são responsáveis pela elevação destes poluentes até altitudes suficientes (acima de 10 km) para serem transportados com eficiência para regiões distantes das fontes emissoras, em direção ao oceano Atlântico Sul (figura 1.6). Este transporte resulta em uma persistente camada de fumaça espacialmente distribuída sobre uma extensa área, ao redor de 4 milhões de km², em muito superior à área onde estão distribuídas as queimadas. Os efeitos destas emissões excedem a escala local, afetando a composição da atmosfera no hemisfério Sul [Thompson *et al.*, 1996; Fishman *et al.*, 1996]. Em escalas regional e global os produtos emitidos por queimadas e lançados à atmosfera alteram o balanço radiativo da atmosfera e o ciclo hidrológico, através dos efeitos diretos das partículas de aerossóis ao absorver, refletir e retroespalhar a radiação solar, e indiretamente por alterações na microfísica e dinâmica de formação de nuvens [Kaufman, 1995; Kaufman *et al.*, 1998].

1.2 Objetivos deste trabalho

O transporte atmosférico de gases e partículas de aerossóis atmosféricos na Amazônia exercem fortes influências nos ciclos biogeoquímicos da floresta, possuindo papel importante na manutenção, das condições de equilíbrio do ecossistema local. A influência das condições meteorológicas, local e de larga escala, faz-se notar nas medidas de concentrações e composições químicas de gases traços e das partículas de aerossóis atmosféricos na região Amazônica. A exportação dos produtos das emissões atmosféricas naturais da floresta e de queimadas, da Amazônia para regiões distantes, afetam a atmosfera em uma escala global, em especial alterando significativamente a composição da atmosfera no hemisfério Sul.

Os objetivos gerais deste trabalho consistem em:

- Estudar a relação existente entre a meteorologia, de larga escala e regional, e a química e física da atmosfera da região Amazônica. Através da avaliação das influências que variações no padrão atmosférico exercem sobre as concentrações e composições elementares das partículas de aerossóis e gases traços atmosféricos nesta região.
- Compreender os mecanismos de transporte atmosférico de gases e de partículas de aerossóis em larga escala na região Amazônica.

Os objetivos específicos incluem:

- A elaboração e implementação de um modelo de transporte Lagrangeano, adequado às condições atmosféricas da região Amazônia.
- Utilização do modelo de transporte desenvolvido na compreensão dos mecanismos de transporte de emissões de queimadas na região Amazônica.
- A utilização do modelo de transporte desenvolvido na interpretação de medidas de composição química da atmosfera na região Amazônica, utilizando retro-trajetórias de parcelas de ar como indicativos das fontes emissoras das partículas de aerossóis e gases traços.
- A utilização do modelo de transporte no estudo do fluxo de aerossóis do Saara para a Amazônia.

1.3 Estrutura da Tese

Este trabalho consiste de cinco capítulos e cinco apêndices. O capítulo 2 descreve a metodologia utilizada. Nos capítulos 3 e 4 são discutidos dois estudos de casos. E, finalmente, o capítulo 5 apresenta uma síntese dos resultados e conclusões obtidos.

Capítulo 2: Metodologia utilizada neste trabalho

O capítulo 2 contém uma descrição do modelo RAMS - "Regional Atmospheric Modeling System" e do modelo de trajetórias de parcelas de ar, utilizados nas

simulações atmosféricas, as quais são partes constituintes das análises apresentadas nos capítulos 3 e 4. O modelo RAMS será apresentado de maneira resumida, por ter sido exaustivamente apresentado e discutido em teses anteriores a esta, defendidas no Departamento de Ciências Atmosféricas e no Instituto de Física da Universidade de São Paulo [Freitas *et al.*, 1999]. O modelo de trajetórias de parcelas de ar é apresentado com um maior nível de detalhamento, por ter sido desenvolvido e implementado ao longo da evolução deste trabalho. São também descritas as técnicas analíticas experimentais, através das quais foram obtidos os resultados das medidas de gases e de partículas de aerossóis analisados neste trabalho.

Capítulo 3: O experimento LBA/CLAIRE

No capítulo 3 são discutidos resultados do experimento LBA-CLAIRE “Co-operative LBA Airborne Regional Experiment”. São apresentadas medidas de concentração e composição elementares de partículas de aerossóis atmosféricos, coletados ao nível da superfície, na região Amazônica durante a estação úmida de 1998. Os resultados das medidas das partículas de aerossóis são analisados em função da meteorologia local e de larga escala. A variabilidade observada nas medidas de concentração e composição elementar das partículas de aerossóis, em conjunção com análises meteorológicas e de trajetórias, evidenciaram um claro episódio de penetração e deposição de partículas de aerossóis do Saara na bacia Amazônica. Índice de aerossóis, derivados a partir de medidas de radiação ultra-violeta pelo sensor Nimbus-7/TOMS “Total Ozone Mapping Spectrometer”, sobre o oceano Atlântico, fornecem um suporte adicional às interpretações dadas às observações locais em Balbina. São também apresentados e discutidos resultados de medidas de gases realizados no Suriname, quando foram detectados sinais de transporte de emissões de queimadas da baixa para a alta troposfera via convecção profunda. Estas queimadas ocorreram, principalmente, no estado de Roraima e na Venezuela, em decorrência da longa estiagem no norte da região Amazônica.

Capítulo 4: O experimento SCAR-B

No capítulo 4 é apresentado um estudo dos mecanismos de transporte atmosférico de partículas de aerossóis e gases emitidos em queimadas, durante a estação seca. Resultados do experimento SCAR-B “Smoke, Clouds, and Radiation-

Brazil” são discutidos. Uma análise de trajetórias baseadas em uma simulação numérica do período de estudo foi realizada. Foram calculadas trajetórias a partir das principais áreas de focos de queimadas e retro-trajetórias a partir dos locais de medidas de gases e de partículas de aerossóis. Os efeitos da meteorologia ao dispersar/advectar as emissões de queimadas são discutidos. A análise apresentada neste capítulo é baseada na variabilidade diária de perfis verticais de ozônio, obtidos a partir de sondagens. As origens das parcelas de ar, no local de lançamento das sondagens, são examinadas em vários níveis verticais. A variabilidade diária de traçadores de fumaça, medidos ao nível da superfície, e da espessura óptica de aerossóis é também considerada. Observou-se uma correlação entre as concentrações de ozônio e os traçadores de fumaça, sensível à variações no padrão de circulação e na estrutura vertical da atmosfera.

Capítulo 5: Conclusões

No capítulo 5 são sintetizados os principais resultados e conclusões deste trabalho, posicionando-os dentro do contexto dos objetivos pré-estabelecidos. Apresenta-se ainda, uma análise crítica do trabalho, objetivando apontar futuras direções a serem seguidas.

Apêndices

Os apêndices A-E contêm 5 artigos que foram publicados ou se encontram em fase final de preparação, resultados do trabalho desenvolvido ao longo do período do doutoramento. Alguns resultados discutidos na tese encontram-se também em alguns dos artigos. Na maioria das vezes em que isto ocorreu, optou-se por repetir, ao longo do desenvolvimento da tese, resultados e ilustrações que também constavam nos artigos. Apenas em casos esporádicos, o texto recorre as figuras dos artigos. Esta estratégia foi adotada com o objetivo de preservar a estrutura de corpo auto-suficiente do texto, tanto quanto possível.

Apêndice A

Artigo 1: “Numerical modeling of air mass trajectories from biomass burning areas of the Amazon basin”

Autores: Freitas S. R., *K. M. Longo*, M. A. F. Silva Dias, P. Artaxo

Publicado em **Annais da Academia Brasileira de Ciências**,
Vol. 68, 193-206, 1996.

Apêndice B

Artigo 2: “The Smoke Cloud and Radiation experiment in Brazil (SCAR-B)”

Autores: Kaufman Y. J., P. V. Hobbs, V. W. J. H. Kirchhoff, P. Artaxo, L. A. Remer, B. N. Holben, M. D. King, D. E. Ward, E. M. Prins, *K. M. Longo*, L. F. Mattos, C. A. Nobre, J. D. Spinhirne, Q. Ji, A. M. Thompson, J. F. Gleason, S. A. Christopher, S.-C. Tsay.

Publicado em **Journal of Geophysical Research**, 103, D24, 31783-31808, 1998.

Apêndice C

Artigo 3: “Correlation between smoke and tropospheric ozone concentration in Cuiabá during SCAR-B”

Autores: *Longo K. M.*, A. M. Thompson, V. W. J. H. Kirchhoff, L. A. Remer, S. R. Freitas, M. A. F. Silva Dias, P. Artaxo, W. Hart, J. D. Spinhirne, M. A. Yamasoe.

Publicado em **Journal of Geophysical Research**, 104, D10, 12113-12129, 1999.

Apêndice D

Artigo 4: “Large-scale aerosol source apportionment in Amazonia”

Autores: Artaxo P., E. T. Fernandes, J. V. Martins, M. A. Yamasoe, P. V. Hobbs, W. Maenhaut, *K. M. Longo*, A. Castanho.

Publicado em **Journal of Geophysical Research**, 103, D24, 31837-31847, 1998.

Apêndice E

Artigo 5: “Transport of biomass burning smoke to the upper troposphere by deep convection in the equatorial region”

Autores: Andreae M. O., P. Artaxo, H. Fischer, J. P. F. Fortuin, J.-M. Grégoire, P. Hoor, R. Kormann, R. Krejci, L. Lange, J. Lelieveld, *K. M. Longo*, W. Peters, M. de Reus, B. Scheeren, M. A. de Silva Dias, J. Strøm, and J. Williams

Artigo em preparação para ser submetido à revista **Science**.

Capítulo 2

Metodologia

Diversos estudos de química e física da atmosfera frequentemente utilizam trajetórias de parcelas de ar como ferramenta auxiliar na interpretação de resultados de medidas experimentais. Trajetórias de parcelas de ar tem sido usadas intensivamente em estudos atmosféricos, principalmente com relação ao transporte de gases e material particulado emitidos por queimadas. Vários autores têm trabalhado com cálculos de trajetórias nos modos avançado (integração num intervalo de tempo crescente, referido aqui apenas como trajetórias) e retrógrado no tempo (integração num intervalo de tempo decrescente, referido como retro-trajetórias). Trajetórias são usadas em planejamentos de vôos de pesquisas atmosféricas e em modelagem Lagrangeana, enquanto que retro-trajetórias são tipicamente utilizadas na interpretação de medidas químicas.

Duas técnicas são largamente utilizadas, trajetórias isentrópicas e trajetórias cinemáticas. O método de cálculo de trajetórias isentrópicas impõe o movimento das parcelas de ar com temperatura potencial constante [Pickering *et al.*, 1996] e tem a vantagem de não requerer a velocidade vertical do vento. As trajetórias cinemáticas utilizam as três componentes do campo de vento para o cálculo das trajetórias e não requerem nenhuma hipótese explícita sobre o movimento da parcela de ar.

Neste capítulo apresenta-se uma descrição do modelo de trajetórias de parcelas de ar utilizado neste trabalho. Implementou-se um modelo de trajetórias cinemáticas em três dimensões e uma interface deste com o modelo atmosférico RAMS - "Regional Atmospheric Modeling System", possibilitando o cálculo

de trajetórias de parcelas de ar mais realistas, a partir da integração de campos de vento simulados. Os campos de ventos utilizados são, desta forma, adequados à resolução e características de problemas específicos. Uma descrição do modelo RAMS é apresentada e maiores detalhes da parametrização utilizada são referenciados à bibliografias pertinentes. Os apêndices deste trabalho são publicações que incluem a utilização do modelo de trajetórias implementado no estudo do transporte de emissões de gases e aerossóis por queimadas na região Amazônica.

Ainda neste capítulo, descreve-se as técnicas analíticas experimentais, através das quais foram obtidos os resultados das medidas de gases e aerossóis analisados neste trabalho.

2.1 Modelo de trajetórias de parcelas de ar

O modelo utilizado neste trabalho, segue o formalismo cinemático, obtendo-se trajetórias a partir da seguinte equação

$$\vec{r}(t) = \vec{r}(t_0) + \int_{t_0}^t \vec{V}[\vec{r}(t'), t'] dt' \quad (2.1)$$

onde $\vec{r}(t)$ é a posição da parcela de ar no tempo t , partindo da posição $\vec{r}(t_0)$ no tempo t_0 e sendo transportada pelo campo de vento $\vec{V} = (u, v, w)$. Retro-trajetórias são obtidas invertendo a equação 2.1 para obter $\vec{r}(t_0)$

$$\vec{r}(t_0) = \vec{r}(t) - \int_{t_0}^t \vec{V}[\vec{r}(t'), t'] dt'. \quad (2.2)$$

A integração numérica das equações 2.1 e 2.2 é realizada utilizando-se o esquema de Pettersen descrito em Seibert [1993]. Trata-se de um esquema iterativo onde o deslocamento em um dado passo de tempo é obtido na seguinte forma

- 1^a iteração

$$\vec{r}_1(t + \Delta t) = \vec{r}(t) + \vec{V}[\vec{r}(t), t] \Delta t \quad (2.3)$$

- η -ésima iteração

$$\vec{r}_\eta(t + \Delta t) = \vec{r}(t) + \frac{1}{2} \left\{ \vec{V}[\vec{r}(t), t] + \vec{V}[\vec{r}_{\eta-1}(t + \Delta t), t + \Delta t] \right\} \Delta t \quad (2.4)$$

Com a posição da parcela no tempo $t + \Delta t$ obtida impondo o critério

$$\vec{r}(t + \Delta t) = \vec{r}_\eta(t + \Delta t) \text{ quando } |\vec{r}_\eta - \vec{r}_{\eta-1}| < \varepsilon \quad (2.5)$$

utilizando $\varepsilon = 10^{-6}$ no presente trabalho.

A precisão do esquema pode ser avaliada expandindo a velocidade \vec{V} em série de Taylor em torno de $\vec{r}(t)$ e t

$$\vec{V}[\vec{r}(t), t + \Delta t] = \vec{V}[\vec{r}(t), t] + \vec{a}_1 \Delta t + \vec{a}_2 \Delta t^2 + \vec{a}_3 \Delta t^3 + \dots, \quad (2.6)$$

com a solução exata sendo dada por

$$\Delta \vec{r}_{\text{exata}} = \int_t^{t+\Delta t} \vec{V}[\vec{r}(t'), t'] dt' = \vec{V}[\vec{r}(t), t] \Delta t + \frac{\vec{a}_1}{2} \Delta t^2 + \frac{\vec{a}_2}{3} \Delta t^3 + \dots \quad (2.7)$$

O esquema de Pettersen converge na segunda iteração para

$$\Delta \vec{r}_{\text{numérica}} = \vec{V}[\vec{r}(t), t] \Delta t + \frac{\vec{a}_1}{2} \Delta t^2 + \frac{\vec{a}_2}{2} \Delta t^3 + \dots \quad (2.8)$$

de modo que o esquema é exato até 2ª ordem

$$\Delta \vec{r}_{\text{exata}} - \Delta \vec{r}_{\text{numérica}} = \frac{\vec{a}_2}{6} \Delta t^3 + \dots \quad (2.9)$$

O modelo usa o sistema de coordenadas polar-estereográficas na horizontal (x, y) e sigma-z (σ_z) na vertical. As equações de transformação de coordenadas geográficas de latitude φ , longitude λ e altura cartesiana z para as coordenadas (x, y, σ_z) são dadas por

$$\begin{aligned} x &= 2R \frac{\cos \varphi \sin(\lambda - \lambda_0)}{1 + \sin \varphi \sin \varphi_0 + \cos \varphi \cos \varphi_0 \cos(\lambda - \lambda_0)} \\ y &= 2R \frac{\cos \varphi \sin \varphi - \sin \varphi_0 \cos \varphi \cos \varphi \sin(\lambda - \lambda_0)}{1 + \sin \varphi \sin \varphi_0 + \cos \varphi \cos \varphi_0 \cos(\lambda - \lambda_0)} \\ \sigma_z &= H \left(\frac{z - z_{\text{top}}}{H - z_{\text{top}}} \right) \end{aligned} \quad (2.10)$$

onde R é o raio da Terra, (φ_0, λ_0) são as coordenadas geográficas do pólo de projeção do plano polar-estereográfico, z_{top} é a altura cartesiana da topografia em relação ao nível médio do mar e H é a altura do topo do modelo. O fator de transformação (métrica) horizontal é dado por

$$F_{\text{métrica-hh}} = \frac{2}{1 + \sin \varphi \sin \varphi_0 + \cos \varphi \cos \varphi_0 \cos(\lambda - \lambda_0)}, \quad (2.11)$$

enquanto que na vertical é dado por

$$F_{\text{métrica-zz}} = \left[1 - \frac{z_{\text{top}}}{H} \right]^{-1}. \quad (2.12)$$

As equações de transformação para o campo de vento são dadas por:

- horizontal

$$\begin{pmatrix} \dot{x} \\ \dot{y} \end{pmatrix} = F_{\text{métrica-hh}} \begin{pmatrix} \cos \alpha & -\sin \alpha \\ \sin \alpha & \cos \alpha \end{pmatrix} \begin{pmatrix} u \\ v \end{pmatrix} \quad (2.13)$$

com

$$\alpha = \arccos \left(\frac{\cos(\lambda - \lambda_0)(1 + \sin \varphi \sin \varphi_0) + \cos \varphi \cos \varphi_0}{1 + \sin \varphi \sin \varphi_0 + \cos \varphi \cos \varphi_0 \cos(\lambda - \lambda_0)} \right) \quad (2.14)$$

e u e v são os componentes zonal e meridional do campo de vento, respectivamente.

- vertical

$$\dot{\sigma}_z = F_{\text{métrica-zz}}(w + b_1 \dot{x} + b_2 \dot{y}) \quad (2.15)$$

onde w é a velocidade vertical cartesiana, e b_1 e b_2 são fatores de transformação dados por

$$\begin{pmatrix} b_1 \\ b_2 \end{pmatrix} = \left(\frac{\sigma_z}{H} - 1 \right) \begin{pmatrix} \frac{\partial z_{\text{top}}}{\partial x} \\ \frac{\partial z_{\text{top}}}{\partial y} \end{pmatrix} \quad (2.16)$$

A disponibilidade de recursos computacionais adequados e a utilização de modelos atmosféricos de mesoescala, permitem o cálculo de trajetórias mais realísticas através de simulações atmosféricas com assimilação de dados observacionais, melhores resoluções espaciais e temporais e com parametrizações físicas mais completas. Este trabalho segue esta linha utilizando o modelo atmosférico regional RAMS (descrito na seção 2) para a simulação do campo de vento. Para que isto fosse possível, foi desenvolvida uma interface entre os dois modelos visando duas tarefas: (1) o armazenamento do campo de vento simulado em arquivos binários, durante a execução do modelo RAMS; (2) leitura dos campos de vento e transformação destes para o sistema de coordenadas utilizado, durante a execução do modelo de trajetórias. A figura 2.1 mostra o fluxograma do algoritmo desenvolvido para o cálculo de trajetórias.

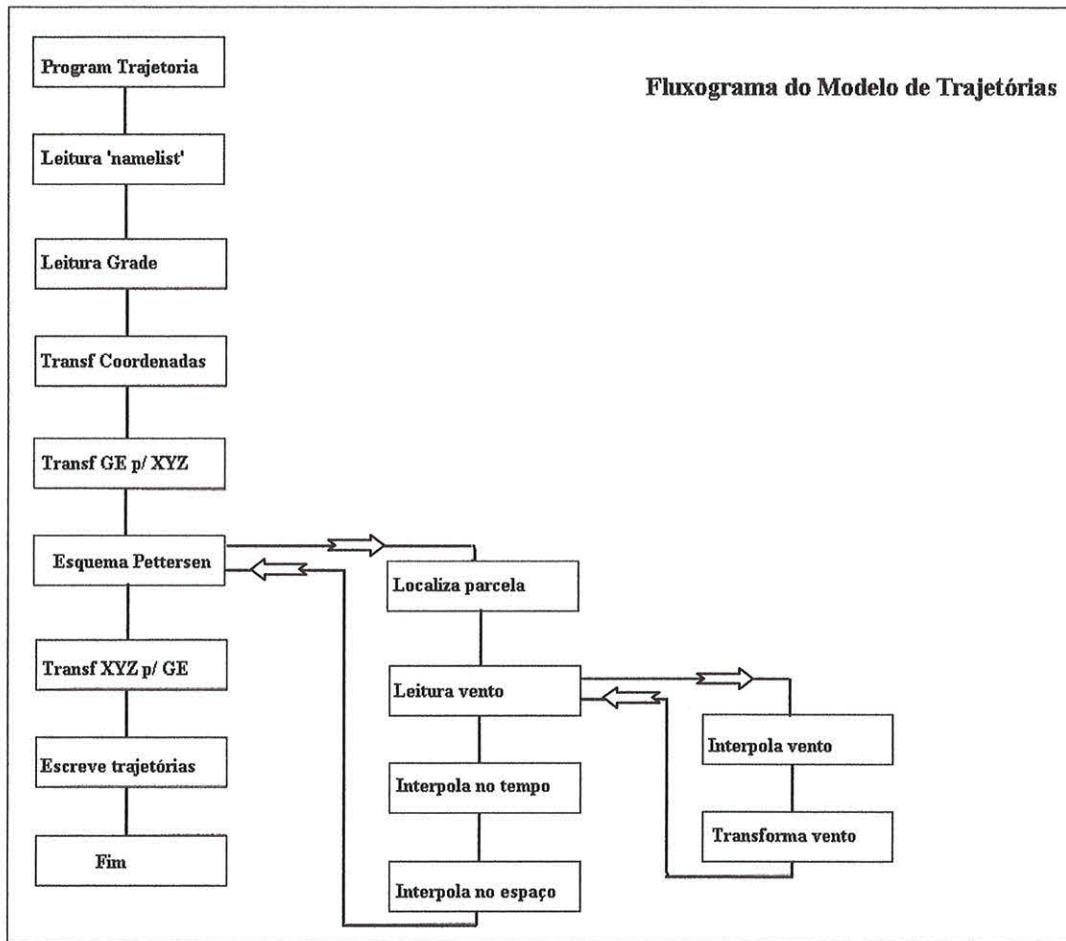


Figura 2.1: Fluxograma do modelo de trajetórias cinemáticas.

Em geral, o campo de vento utilizado pelo modelo de trajetórias se refere a escala resolvida pelo modelo $(\bar{u}, \bar{v}, \bar{w})$. Porém, este trabalho também utiliza a metodologia desenvolvida por Freitas [1999] para obtenção do cálculo de trajetórias em regiões com convecção úmida e profunda. Estas trajetórias são referidas como trajetórias cinemáticas 3D convectivas e possuem um termo que reforça o efeito da convecção na velocidade vertical da escala resolvida. Isto é realizado utilizando o método ‘top-hat’¹ e um modelo 1D de nuvem que forneça os parâmetros a (a fração de área coberta pela nuvem) e \bar{w}_c (a velocidade vertical média na escala da nuvem). Em função destes parâmetros e da velocidade vertical na escala resolvida do modelo (\bar{w}), obtêm-se a seguinte velocidade vertical para o cálculo de trajetórias [Freitas 1999].

$$\bar{w}_{conv_traj} = a\bar{w}_c + (1 - a)\bar{w}, \quad (2.17)$$

de modo que estas são obtidas a partir da seguinte equação

$$\vec{r}(t) = \vec{r}(t_0) + \int_{t_0}^t (\bar{u}, \bar{v}, \bar{w}_{conv_traj}) dt' \quad (2.18)$$

Neste trabalho as trajetórias convectivas foram utilizadas no estudo de caso da estação úmida (apresentado no Capítulo 3). Em particular, no manuscrito apresentado no Apêndice E, discute-se um evento de transporte de emissões de queimadas via convecção profunda utilizando as trajetórias convectivas de massas de ar.

2.2 Modelo Atmosférico RAMS

O código RAMS “Regional Atmospheric Modeling System”, desenvolvido na Universidade do Estado do Colorado (EUA), destina-se à simulação e previsão de fenômenos meteorológicos regionais [Tripoli & Cotton, 1982; Mahrer & Pielke,

¹No método ‘top-hat’, a média de uma dada quantidade ϕ é calculada separando o domínio da média em partes associadas às nuvens (a) e ao ambiente ($1 - a$). Assim,

$$\bar{\phi}(x) = a\bar{\phi}_n + (1 - a)\bar{\phi}_{am}^{am}$$

com $\bar{\phi}_n$ e $\bar{\phi}_{am}^{am}$ sendo médias de ϕ nos sub-domínios de nuvem e ambiente, respectivamente.

1977]. O RAMS está escrito, quase que exclusivamente, na linguagem FORTRAN 77 e inclui, além do modelo atmosférico propriamente dito, o módulo ISAN "Isentropic ANalysis package". O ISAN possibilita a assimilação de dados observacionais e/ou de modelos globais para serem utilizados como condições iniciais e de contorno do modelo atmosférico.

2.2.1 Sistema de equações primitivas

O modelo atmosférico RAMS baseia-se no conjunto completo de equações que governam a evolução do estado atmosférico, incluindo parametrizações dos diversos processos físicos presentes nestas equações. Este conjunto de equações básicas é obtido a partir da aplicação das leis clássicas do movimento de Newton e da termodinâmica à um fluido (atmosfera da Terra), observado a partir de um sistema de coordenadas em rotação (Terra). Considerando-se também, a lei de conservação da massa do fluido e de seus constituintes. Dado um sistema de coordenadas independentes espaciais e tempo $(x, y, z; t)$, e N variáveis dependentes $(\rho, \theta, T, T_V, p, \vec{V}, r_n)$, cujos significados são descritos a seguir, tem-se o seguinte conjunto de N equações diferenciais parciais não lineares que descrevem a evolução do estado atmosférico:

- Equação de movimento

$$\frac{\partial \vec{V}}{\partial t} = -\vec{V} \cdot \nabla \vec{V} - \frac{1}{\rho} \nabla p - g\hat{k} - 2\vec{\Omega} \times \vec{V} + \vec{F}_{visc} \quad (2.19)$$

onde \vec{V} é a velocidade da parcela de ar e ρ sua densidade e

$-\vec{V} \cdot \nabla \vec{V}$ é o termo de advecção,

$-\frac{1}{\rho} \nabla p$ é a força associada ao gradiente de pressão,

$-g\hat{k}$ é a força da gravidade,

$-2\vec{\Omega} \times \vec{V}$ é a força de Coriolis, e

\vec{F}_{visc} é a força de atrito entre as camadas atmosféricas.

- Primeira lei da termodinâmica

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} = -\vec{V} \cdot \nabla \theta + Q_\theta \quad (2.20)$$

onde θ é a temperatura potencial do ar definida como

$$\theta = T \left(\frac{p_0}{p} \right)^{R_d/C_p} \quad (2.21)$$

com p_0 sendo a pressão atmosférica ao nível da superfície, R_d a constante de gás do ar seco, C_p o calor específico a pressão constante e T a temperatura do ar. E Q_θ resume os vários processos que atuam aquecendo ou resfriando a atmosfera.

- Lei dos gases ideais

$$p = \rho R_d T (1 + 0.61 r_v) = \rho R_d T_V, \quad (2.22)$$

r_v é a razão de mistura de vapor d'água; e o termo T_V é definido como sendo a temperatura virtual, isto é, a temperatura que o ar seco teria que ter em um dado nível de pressão p a fim de ter a mesma densidade que o ar úmido, assumindo válido o comportamento de gás ideal .

- Equação de conservação da massa do ar

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = -\vec{\nabla} \cdot \rho \vec{V} \quad (2.23)$$

- Conservação de massa do constituinte água

$$\frac{\partial r_n}{\partial t} = -\vec{V} \cdot \vec{\nabla} r_n + Q_{r_n}, \quad n = 1, 2, 3. \quad (2.24)$$

onde r_n é a razão de mistura da água na fase n (sólida, líquida ou gasosa), e Q_{r_n} resume os processos físicos de transformação de fase da água e perda (ou ganho) de água por precipitação nas fases sólida e líquida.

O conjunto destas expressões resultam em 11 equações diferenciais parciais não lineares com 11 variáveis dependentes (ρ , θ , T , T_V , p , \vec{V} , r_n), expressas em função das coordenadas independentes ($x, y, z; t$), que devem ser resolvidas simultaneamente. Este conjunto de equações é passível de simplificações, em

função da escala do fenômeno a ser estudado [Dutton & Fichtl, 1969]. O código RAMS é um modelo de área limitada, e inclui opções diversas, adequadas à simulação de sistemas atmosféricos e fenômenos ambientais de escalas de metros a centenas de quilômetros.

2.2.2 Procedimento de Reynolds: formulação do modelo

A solução numérica do conjunto de equações descrito acima, implica em uma transformação do contínuo espaço-tempo em um espaço discretizado. Esta discretização do problema originalmente contínuo possibilita o cálculo computacional da solução numérica do problema. As variáveis independentes $(x, y, z; t)$ são discretizadas em uma grade de espaçamentos $\Delta x, \Delta y, \Delta z$ e Δt . E as variáveis dependentes $\phi(x, y, z; t) = (\rho, \theta, T, T_V, p, \vec{V}, r_n)$ são decompostas em

$$\phi = \bar{\phi} + \phi' \quad (2.25)$$

onde

$$\bar{\phi} = \frac{1}{\Delta x \cdot \Delta y \cdot \Delta z \cdot \Delta t} \int_t^{t+\Delta t} \int_x^{x+\Delta x} \int_y^{y+\Delta y} \int_z^{z+\Delta z} \phi dz dy dx dt \quad (2.26)$$

com $\bar{\phi}$ representando o valor médio de ϕ dentro do intervalo de tempo Δt e dos intervalos espaciais $\Delta x, \Delta y$ e Δz . A quantidade ϕ' é o desvio da quantidade ϕ de sua média, associado aos processos de escalas menores que a escala resolvida explicitamente (ditos processos sub-grades). Este procedimento é conhecido como procedimento de Reynolds e a dimensão l do espaço discreto ($l = [\Delta x \cdot \Delta y \cdot \Delta z]^{1/3}$) define a separação de escalas que são numericamente resolvidas ($> 2l$) daquelas que não são resolvidas.

No modelo RAMS - versão 3b, uma vez definida a escala de estudo e feitas as devidas simplificações no conjunto de equações 2.20 a 2.24, aplica-se o procedimento de Reynolds e um novo conjunto de equações, em termos das médias e dos desvios das variáveis dependentes, é gerado [Tripoli & Cotton, 1982]. A equação 2.25 pode ser reescrita, incluindo uma nova decomposição da variável $\bar{\phi}$, resolvida no espaço de dimensão $l \sim [\Delta x \cdot \Delta y \cdot \Delta z]^{1/3}$, em duas contribuições básicas ϕ_0 e ϕ_m :

$$\phi = \bar{\phi} + \phi' = (\phi_0 + \phi_m) + \phi' \quad (2.27)$$

o termo ϕ_0 é referido como valor do estado básico da atmosfera, ou estado de referência (associado a escala sinótica), e ϕ_m refere-se ao desvio do estado de referência (associado ao desvio da mesoescala). Considera-se o estado básico da atmosfera como sendo horizontalmente homogêneo e seco, obedecendo a lei dos gases ideais, o equilíbrio hidrostático e estando em balanço geostrófico.

No estado médio, considera-se, (1) o termo de transporte como sendo a soma das contribuições associadas a advecção na escala resolvida e ao transporte turbulento na camada limite planetária; e (2) que os termos Q_θ e Q_{r_n} nas equações 2.20 e 2.24, respectivamente, possuem contribuições do transporte convectivo, convergência de radiação e de microfísica, na escala não resolvida. As seguintes relações são válidas para o estado médio (onde o índice 0 refere-se ao estado básico e o índice m ao desvio):

- A equação de momento, escrita como

$$\frac{\partial \bar{u}_i}{\partial t} = \left(\frac{\partial \bar{u}_i}{\partial t} \right)_{adv} + \left(\frac{\partial \bar{u}_i}{\partial t} \right)_{turb} - \frac{1}{\rho_0} \frac{\partial \bar{p}_m}{\partial x_i} - \left(\frac{\bar{p}_m}{\rho_0} + \bar{r}_T \right) g \delta_{i,3} + \epsilon_{ijk} f_k \bar{u}_i \quad (2.28)$$

onde x_i é uma das coordenadas espaciais, \bar{u}_i é uma das componentes da velocidade na escala resolvida, f_k é o parâmetro de Coriolis, e \bar{r}_T é a razão de mistura da água total que inclui as razões de mistura da água nas fases sólida (\bar{r}_{gelo}), líquida (\bar{r}_{liq}) e gasosa (\bar{r}_v), ou seja

$$\bar{r}_T = \bar{r}_{gelo} + \bar{r}_{liq} + \bar{r}_v \quad (2.29)$$

Os símbolos $\delta_{i,3}$ e ϵ_{ijk} se referem aos tensores

$$\delta_{i,3} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}$$

$$\epsilon_{ijk} = \begin{pmatrix} 0 & 1 & 1 \\ -1 & 0 & 1 \\ -1 & -1 & 0 \end{pmatrix} \quad (2.30)$$

- A equação termodinâmica

$$\frac{\partial \bar{\theta}_{il}}{\partial t} = \left(\frac{\partial \bar{\theta}_{il}}{\partial t} \right)_{adv} + \left(\frac{\partial \bar{\theta}_{il}}{\partial t} \right)_{turb} + \left(\frac{\partial \bar{\theta}_{il}}{\partial t} \right)_{con} + \left(\frac{\partial \bar{\theta}_{il}}{\partial t} \right)_{rad} + \left(\frac{\partial \bar{\theta}_{il}}{\partial t} \right)_{microf} \quad (2.31)$$

onde $\bar{\theta}_{il}$ é a temperatura potencial de água líquida e gelo, a qual se conserva em mudanças de fase da água, definida através da relação semi-empírica [Tripoli & Cotton, 1982]:

$$\bar{\theta} = \bar{\theta}_{il} \left[1 + \frac{L_{lv}\bar{r}_{liq} + L_{gv}\bar{r}_{gelo}}{C_p \max(\bar{T}, 253)} \right] \quad (2.32)$$

com L_{lv} e L_{gv} sendo o calor latente ($J.kg^{-1}$) de vaporização e de sublimação, respectivamente.

- Equação de Poisson

$$\bar{T} = \bar{\theta} \left(\frac{\bar{p}}{p_{\infty}} \right)^{R/C_p} \quad (2.33)$$

com p_{∞} sendo a pressão de referência, usualmente tomada em 1000 hPa.

- Lei de gas ideal

$$\bar{p} = \bar{\rho}_m (1 + 1.61\bar{r}_v) R\bar{T} \quad (2.34)$$

- Equação de continuidade para o ar

$$\frac{\partial \bar{\rho}_m}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} (\rho_0 \bar{u}_i) = 0 \quad (2.35)$$

- Equação de continuidade para a água total

$$\frac{\partial \bar{r}_T}{\partial t} = \left(\frac{\partial \bar{r}_T}{\partial t} \right)_{adv} + \left(\frac{\partial \bar{r}_T}{\partial t} \right)_{turb} + \left(\frac{\partial \bar{r}_T}{\partial t} \right)_{microf} + \left(\frac{\partial \bar{r}_T}{\partial t} \right)_{con} \quad (2.36)$$

Nas seções seguinte são descritas algumas das parametrizações utilizadas para as contribuições de advecção na escala resolvida e transporte turbulento (indexadas por *adv* e *turb*, nas equações 2.28, 2.31 e 2.36) e para as contribuições de radiação e microfísica (indexadas por *rad* e *microf*, nas equações 2.31 e 2.36).

2.2.3 Advecção na escala resolvida

A contribuição para a taxa de variação local de um escalar (ξ) devida ao transporte advectivo na escala resolvida é dada por

$$\left(\frac{\partial \bar{\xi}}{\partial t}\right)_{adv} = - \sum_{i=1}^3 \bar{u}_i \frac{\partial \bar{\xi}}{\partial x_i} \quad (2.37)$$

onde $\bar{\xi}$ é o valor médio do escalar ξ , \bar{u}_i é o componente i da velocidade média do vento. Reescrevendo a equação 2.37 na forma de fluxo, combinando-a com a equação 2.35, tem-se

$$\left(\frac{\partial \bar{\xi}}{\partial t}\right)_{adv} = \sum_{i=1}^3 \left(-\frac{1}{\rho_0} \frac{\partial}{\partial x_i} (\rho_0 \bar{u}_i \bar{\xi}) + \frac{\bar{\xi}}{\rho_0} \frac{\partial}{\partial x_i} (\rho_0 \bar{u}_i) \right) \quad (2.38)$$

Dentre as opções de esquemas numéricos para a advecção, oferecidas pelo modelo RAMS-3b, neste trabalho utilizou-se o esquema numérico híbrido. A advecção na forma híbrida combina a utilização do esquema ‘leapfrog’ para a advecção dos componentes do vento com o esquema ‘forward-upstream’ para as grandezas escalares, baseando-se no trabalho de Tremback *et al.* [1987].

Reescrevendo a Eq. 2.38 na forma discretizada teremos

$$\left(-\bar{u}_i \frac{\partial \bar{\xi}}{\partial x_i}\right)_j \approx \sum_{i=1}^3 \left\{ -\frac{1}{\rho_{0j} \Delta x_i} \left[\left((\rho_0 F_i)_{j+1/2} - (\rho_0 F_i)_{j-1/2} \right) - \bar{\xi}_j \left((\rho_0 \bar{u}_i)_{j+1/2} - (\rho_0 \bar{u}_i)_{j-1/2} \right) \right] \right\} \quad (2.39)$$

onde $F_i = \bar{u}_i \bar{\xi}$ é o fluxo do escalar $\bar{\xi}$ na direção x_i , o índice j denota a posição do ponto de grade onde os valores estão sendo tomados, e Δx_i é o espaçamento de grade nesta direção.

Para a advecção de momento \bar{u}_i é utilizado o esquema ‘leapfrog’ de segunda ordem, no qual os fluxos são escritos como

$$(F_i)_{j+1/2} = (\bar{u}_i \bar{u}_i)_{j+1/2} \quad (2.40)$$

Para o esquema ‘forward-upstream’ utiliza-se a aproximação de segunda ordem. Nesta aproximação, o fluxo escalar $F_i = \bar{u}_i \bar{\xi}$ é dado por

$$(F_i)_{j+1/2} = \frac{\Delta x_i}{\Delta t} \left[\frac{\alpha_i}{2} (\bar{\xi}_j + \bar{\xi}_{j+1}) + \frac{\alpha_i^2}{2} (\bar{\xi}_j - \bar{\xi}_{j+1}) \right] \quad (2.41)$$

onde $\alpha_i = (\bar{u}_i)_{j+1/2} \Delta t / \Delta x_i$ e Δt é o passo de tempo do modelo.

2.2.4 Parametrização da difusão turbulenta

A difusão turbulenta, ou seja a contribuição do transporte não resolvido pela escala do modelo às tendências das variáveis prognosticadas nesta escala, é dada pela convergência do fluxo turbulento:

$$\left(\frac{\partial \bar{\xi}}{\partial t} \right)_{turb} = -\frac{1}{\rho_0} \sum_{i=1}^3 \frac{\partial (\rho_0 \overline{u'_i \xi'})}{\partial x_i} \quad (2.42)$$

e

$$\left(\frac{\partial \bar{u}_j}{\partial t} \right)_{turb} = -\frac{1}{\rho_0} \sum_{i=1}^3 \frac{\partial (\rho_0 \overline{u'_i u'_j})}{\partial x_i} \quad (2.43)$$

onde $\overline{u'_i \xi'}$ é o fluxo turbulento transportando o escalar ξ através do momento u_i , e $\overline{u'_i u'_j}$ é o fluxo turbulento transportando o momento u_j através do momento u_i , e i, j são índices que designam as três dimensões espaciais (1, 2, 3).

O fluxo turbulento de uma quantidade escalar ξ na direção x_i é expresso como

$$\overline{u'_i \xi'} = -K_{\xi_i} \frac{\partial \bar{\xi}}{\partial x_i} \quad (2.44)$$

com K_{ξ_i} o coeficiente de difusividade turbulenta para o escalar ξ na direção x_i .

A determinação do fluxo turbulento de momento é dependente da escala do movimento resolvido pela grade do modelo. Quando $(\Delta x, \Delta y \sim \Delta z)$, e portanto o movimento vertical é resolvido explicitamente, os fluxos turbulentos de momento, conhecidos como tensor de Reynolds, são expressos por

$$\overline{u'_i u'_j} = -K_{m_{ij}} \left(\frac{\partial \bar{u}_i}{\partial x_j} + \frac{\partial \bar{u}_j}{\partial x_i} \right)_{ij} = -K_{m_{ij}} \left(\overleftrightarrow{D} \right)_{ij} \quad (2.45)$$

o qual se aplica a direção i , para $i, j = (1, 2, 3)$, $K_{m_{ij}}$ é o coeficiente de difusividade turbulenta do momento u_i na direção x_i , e $\left(\overleftrightarrow{D} \right)_{ij}$ é o gradiente da quantidade média de momento transportada, o qual denomina-se tensor de deformação média. Impõe-se que

$$K_{m_{ij}} = K_{m_{ji}} \quad (2.46)$$

e conseqüentemente, garante-se a simetria do tensor de Reynolds em todas as direções

$$\overline{u'_i u'_j} = \overline{u'_j u'_i} \quad (2.47)$$

Se $(\Delta x, \Delta y \gg \Delta z)$, caso do presente trabalho, aplica-se a condição de simetria do tensor de Reynolds apenas para as direções horizontais ($i, j = 1, 2$), com um coeficiente de difusividade único para o momento na horizontal

$$K_{m_{ij}} = K_{m_{ji}} = K_{mh} \quad (2.48)$$

Na direção vertical, o fluxo turbulento de momento é expresso na seguinte forma

$$\overline{u'_i u'_j} = -K_{mv} \frac{\partial \bar{u}_i}{\partial x_j} \quad (2.49)$$

onde i e/ou $j = 3$, também com um único coeficiente de difusividade de momento na vertical K_{mv} .

A parametrização de deformação anisotrópica calcula os coeficientes de difusividade na horizontal relacionando-os com a taxa de deformação do fluido [Smagorinsky, 1963]. Genericamente

$$K_{mi} = \frac{(cs_i \Delta x_i)^2}{\sqrt{2}} \left| \overleftrightarrow{D} \right| \quad (2.50)$$

onde cs_i é um coeficiente de ajuste previamente calibrado, Δx_i é o espaçamento de grade na direção x_i , e supõe-se que o comprimento de mistura, ou seja, tamanho do maior turbilhão não resolvido é da ordem de Δx_i . A magnitude do tensor de deformação $\left| \overleftrightarrow{D} \right|$ é dada por

$$\left| \overleftrightarrow{D} \right| = \left[\sum_i \sum_j \left(\overleftrightarrow{D} \right)_{ij}^2 \right]^{1/2} \quad (2.51)$$

Na horizontal

$$K_{mh} = (cs_x \Delta x)^2 \sqrt{\left(\frac{\partial \bar{u}}{\partial x} \right)^2 + \left(\frac{\partial \bar{v}}{\partial y} \right)^2 + \frac{1}{2} \left(\frac{\partial \bar{v}}{\partial x} + \frac{\partial \bar{u}}{\partial y} \right)^2} \quad (2.52)$$

Na prática, impõe-se um valor mínimo para K_{mh} , estabelecido por

$$K_{mh_{min}} = 0.075 K_\alpha (\Delta x)^{4/3} \quad (2.53)$$

e verificado empiricamente válido para espaçamentos de grade da ordem de 2 cm até 100 km, e $K_a \sim 1$.

Na vertical, inclui-se algumas correções no coeficiente de difusividade segundo Smagorinski (equação 2.50). Uma das correções inclui uma dependência com a estabilidade atmosférica, através do número de Richardson gradiente [Lilly, 1962]; e segunda correção refere-se a inclusão da contribuição da convecção na produção de turbulência, em termos da frequência de Brunt-Vaisala [Hill, 1974].

$$K_{mv} = (cs_z \Delta z)^2 \left\{ |D_v| + \sqrt{\max[0, -N^2]} \right\} \sqrt{\max\left[0, 1 - \frac{K_{hv}}{K_{mv}} Ri\right]} \quad (2.54)$$

onde cs_z é um coeficiente de ajuste, pré-calibrado, Δz é o espaçamento de grade na direção vertical, correspondente ao tamanho do maior turbilhão não resolvido.

O termo

$$|D_v| = \left[\left(\frac{\partial \bar{u}}{\partial z} \right)^2 + \left(\frac{\partial \bar{v}}{\partial z} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}} \quad (2.55)$$

é a magnitude do tensor de deformação na vertical.

O termo $\sqrt{\max[0, -N^2]}$ é a contribuição da convecção na produção de turbulência, intensificando-a em situação de estratificação instável, e é expresso em termos da frequência de Brunt-Vaisala

$$N^2 = \frac{g}{\bar{\theta}} \frac{\partial \bar{\theta}}{\partial z} \quad (2.56)$$

O termo $\sqrt{\max\left[0, 1 - \frac{K_{hv}}{K_{mv}} Ri\right]}$ impõe uma dependência do coeficiente K_{mv} com a estabilidade vertical. Nesta expressão $\frac{K_{hv}}{K_{mv}}$ (em geral ~ 3) é a razão entre os coeficientes de difusividade de calor e momento, especificada pelo usuário, Ri é o número de Richardson gradiente definido por

$$Ri = \frac{\frac{g}{\bar{\theta}} \frac{\partial \bar{\theta}}{\partial z}}{|D_v|^2}. \quad (2.57)$$

2.2.5 Parametrização de cumulus

A parametrização de cumulus se destina a contabilizar os efeitos da convecção úmida e profunda na dinâmica e energética de movimentos de escalas maiores. É

utilizada em configurações do modelo que não permitem resolver explicitamente as circulações associadas a estes tipos de convecção.

No modelo RAMS 3b a parametrização de cumulus é baseado no trabalho de Kuo [1965]. Vários autores descrevem a observação de uma forte correlação entre a precipitação convectiva e a convergência total de larga escala de vapor d'água em uma coluna atmosférica [Molinari & Corsetti, 1985; Tremback, 1990]. Esta correlação observada é utilizada no estabelecimento da parametrização de cumulus utilizada, considerando-se a hipótese do equilíbrio. Ou seja considera-se que a ocorrência da convecção, transportando calor e umidade, destina-se a consumir a instabilidade convectiva fornecida pela grande escala.

As contribuições às tendências locais de temperatura potencial de água líquida e razão de mistura total de água devidas à convecção úmida são dadas por

$$\left(\frac{\partial \bar{\theta}_{il}}{\partial t}\right)_{con} = \frac{L(1-b)I}{\rho_0 \pi} \frac{Q_1}{\int_{z_g}^{z_{ct}} Q_1 dz} \quad (2.58)$$

e

$$\left(\frac{\partial \bar{r}_T}{\partial t}\right)_{con} = \frac{bI}{\rho_0} \frac{Q_2}{\int_{z_g}^{z_{ct}} Q_2 dz} \quad (2.59)$$

Nestas equações, L é o calor latente de condensação, π é a função de Exner definida como

$$\pi = c_p \left(\frac{\bar{p}}{p_\infty}\right)^{R_d/C_p} = c_p \frac{T_v}{\theta}. \quad (2.60)$$

E I é a taxa com que a larga escala fornece umidade, sendo expressa como o fluxo através do nível de condensação por levantamento (NCL), na seguinte forma

$$I = (\rho_0 \bar{r}_v \bar{w})_{NCL} \quad (2.61)$$

com ρ_0 a densidade do ar do estado básico, \bar{r}_v razão de mistura de vapor e \bar{w} a velocidade vertical na escala resolvida, todos tomados no NCL.

A partição do suprimento de umidade I é definida pelo parâmetro b , o qual é estimado empiricamente de acordo com Fritsch e Chappel [1980]. A fração b de I umedece a atmosfera e o restante $(1-b)I$ condensa e precipita, e seu calor latente aquece a atmosfera. Q_1 e Q_2 são os perfis verticais de aquecimento e umedecimento da atmosfera devido a convecção, respectivamente.

A parametrização é acionada ou não em função das condições atmosféricas do ambiente (modelo) e dos perfis convectivos. A instabilidade convectiva é verificada através do perfil da energia estática úmida e da ocorrência de movimento vertical ascendente, na escala resolvida, acima de um valor crítico. Uma sondagem do ambiente é obtida através de uma interpolação para a grade convectiva, de melhor resolução que a grade da escala resolvida, possibilitando a determinação do *NCL*, e da taxa de suprimento de umidade pela larga escala *I* no *NCL*.

O perfil de aquecimento, Q_1 , é obtido na seguinte forma

$$Q_1 = \theta_{con} - \theta_{amb} \quad (2.62)$$

onde θ_{amb} é a temperatura potencial do ambiente (do modelo interpolada para a grade convectiva) e θ_{con} , é calculado através de uma média ponderada entre as temperaturas potenciais equivalentes das correntes ascendentes e descendentes. A corrente ascendente possui temperatura potencial equivalente constante (não há entranhamento) e é saturado com respeito à água, sem fase sólida e com o topo da nuvem um nível acima do nível de perda de empuxo. A profundidade da nuvem precisa ser, de no mínimo, 3 km, com topo estando acima de 500 mb. A corrente descendente começa no nível de temperatura potencial equivalente mínima e, na base da nuvem está 2 K mais frio que o ambiente e 5 K mais frio na superfície. Os níveis intermediários são obtidos através de uma interpolação linear.

O perfil de umidescimento, Q_2 , é obtido desconsiderando as correntes descendentes e assumindo que o umidescimento só ocorre na região da bigorna. O nível de desentranhamento (z_{det}) ocorre em alturas acima de 2/3 do topo da nuvem (z_{ct}). Nesta região é suposto um perfil de umidescimento constante e igual a 1. Abaixo do nível do NCL (z_{NCL}) a atmosfera é secada com um perfil convectivo proporcional à razão de mistura de vapor do ambiente, $r_{v_{amb}}$. Desta forma, tem-se

$$Q_2 = \begin{cases} 1, & \text{para } z_{det} \leq z \leq z_{ct} \\ 0, & \text{para } z_{NCL} \leq z < z_{det} \\ \frac{-r_{v_{amb}}}{b}, & \text{para } z_g \leq z < z_{NCL} \end{cases} \quad (2.63)$$

Substituindo o termo Q_2 , definido pela equação 2.63, na equação 2.59 tem-se o termo de tendência local da razão de mistura total de água devido à convecção

$$\left(\frac{\partial \overline{r_T}}{\partial t} \right)_{con} = \left\{ \begin{array}{ll} \frac{bI}{\rho_0(z_{ct} - z_{det})}, & z_{det} \leq z \leq z_{ct} \\ 0, & z_{NCL} \leq z < z_{det} \\ -\frac{I}{\rho_0} \int_{z_g}^{z_{icl}} r_{amb} dz, & z_g \leq z < z_{NCL} \end{array} \right\} \quad (2.64)$$

E a taxa de precipitação convectiva é dada por

$$conpcp = (1 - b)I . \quad (2.65)$$

2.2.6 Parametrização de superfície

Os fluxos turbulentos de momento, calor sensível e latente trocados entre a atmosfera e a superfície, são obtidos a partir da teoria de similaridade para a camada superficial descrita em Louis [1979], em função dos gradientes da magnitude do campo de vento horizontal, da temperatura potencial e da razão de mistura de vapor entre a superfície e o primeiro nível do modelo. Cada célula do modelo é dividida em três classes de superfície:

- água
- solo nu
- vegetação sobre solo sombreado

Para cada uma destas classes, é introduzida um modelo prognóstico para os valores de temperatura e umidade da superfície. Para a superfície de água, a temperatura é mantida constante no tempo, podendo ser inicializada via parâmetro (constante) do RAMSIN ou interpolada a partir de dados de temperatura da superfície do mar, para inicialização horizontal heterogênea. A umidade na superfície é a razão de mistura de saturação definida na pressão e temperatura da água em superfície. Para a superfície solo nu, os fluxos de calor e umidade dentro do solo são obtidos com base em McCumber e Pielke [1981] e Tremback e Kessler [1985]. Um modelo de multi-camadas é resolvido prognosticando temperaturas e umidades. Para a superfície vegetação, o modelo de interação vegetação-atmosfera é baseado em Avissar e Pielke [1989]. O RAMS 3b usa a aproximação 'big leaf' onde existe uma camada de vegetação sobre um solo

sombreado. Um perfil de raízes é parametrizado, permitindo que a transpiração remova água da região de raízes. Para cada uma destas superfícies são calculados os fluxos turbulentos sendo que, os fluxos efetivos trocados entre a superfície e o primeiro nível do modelo, são obtidos através de uma média dos fluxos individuais ponderada pela área que cada classe ocupa na célula. Uma descrição detalhada da parametrização de superfície utilizada neste trabalho pode ser vista em Freitas [1999].

2.2.7 Opções gerais

Esquemas de Radiação

Neste trabalho foi utilizado o esquema de radiação de ondas curta e longa de Chen e Cotton [1983]. Além deste, o RAMS 3b oferece também a opção de utilização de um esquema de radiação mais simples e com menor custo operacional, o qual é atribuído a Mahrer e Pielke [1977]. A diferença básica entre eles consiste no fato que no esquema de Mahrer e Pielke a interação da radiação com a campos de água líquida não é levada em conta.

Microfísica

Optou-se pela microfísica nível 2, a qual consiste em um ajuste da condensação de grande escala. Utiliza-se um procedimento iterativo no cálculo de $\bar{\theta}$, \bar{r}_v e \bar{r}_{liq} . Calcula-se inicialmente os valores da pressão, temperatura e razões de mistura de vapor e total. Então, compara-se a razão de mistura de vapor de saturação com a razão de mistura total, e o excedente é condensado, liberando calor latente. Calcula-se a temperatura novamente e repete-se o procedimento até a obtenção da convergência para $\bar{\theta}$ e \bar{r}_{liq} . Uma vez obtida a convergência a razão de mistura de vapor é calculada como sendo

$$\bar{r}_v = \bar{r}_T - \bar{r}_{liq}.$$

Estrutura de grade

O RAMS 3b utiliza uma grade escalonada tipo Arakawa C [Arakawa & Lamb, 1977]. Neste tipo de grade todas as variáveis termodinâmicas e de umidade são

definidas no ponto médio de cada volume da célula de grade. E as componentes da velocidade do vento são definidas nos pontos médios das faces do volume perpendicular a componente da direção da velocidade (figura 2.2).

A versão 3b do RAMS possibilita ainda a utilização de grades aninhadas, e conseqüentemente a resolução simultânea e interativa de movimentos em escalas distintas. O uso de grades aninhadas permite a resolução de circulações de mesoescala em um domínio extenso, onde a baixa resolução é adequada, e ao mesmo tempo resolver estruturas turbulentas e convectivas em um subdomínio da simulação.

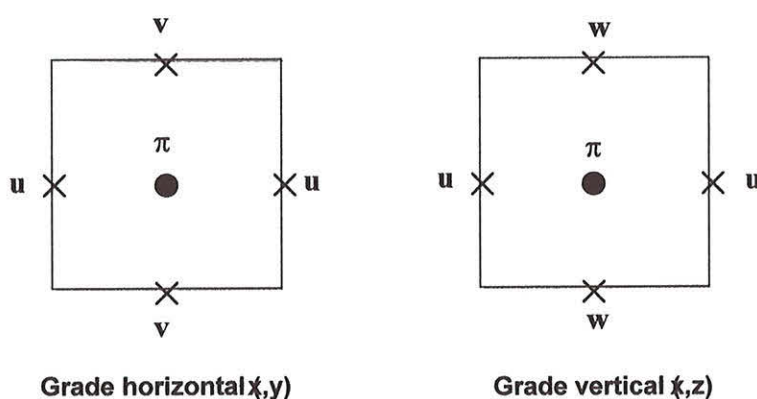


Figura 2.2: Grade tipo Arakawa C.

Sistema de Coordenadas

Dentre as opções oferecidas pelo RAMS 3b, neste trabalho optou-se pela utilização do sistema de coordenadas polar-estereográficas na horizontal (x, y) e sigma-z (σ_z) na vertical. As transformações de coordenadas geográficas de latitude φ , longitude λ , e altura cartesiana z são dadas pelas equações 2.10, 2.11 e 2.12.

Assimilação de dados observacionais

A solução do sistema de equações 2.28 a 2.36 requer condições iniciais e de contorno. Neste trabalho, as análises do NCEP “National Center for Environmental Prediction - EUA” forneceram as condições iniciais e de contorno. Utilizou-se

o módulo ISAN do RAMS para a assimilação das análises do NCEP. Dados de componentes horizontais do vento, temperatura e umidade relativa com uma resolução espacial de $2,5^0$ por $2,5^0$, em 13 níveis verticais (de 1000 hPa a 70 hPa), e com espaçamento temporal de 6 horas são acessados e interpolados para níveis isentrópicos e de σ_z . Com uma análise objetiva de Barnes [1973], a partir destes dois conjuntos de dados emerge um conjunto interpolado para a grade do modelo atmosférico, que fornecerá a condição inicial e de contorno para a integração numérica. A assimilação deste conjunto pelo modelo, utiliza o procedimento conhecido como relaxação Newtoniana [Hoke & Anthes, 1976]. Na relaxação Newtoniana os componentes horizontais do vento, a temperatura potencial, a razão de mistura total e a função de Exner são forçados em direção aos correspondentes valores observados contidos nas análises. Um termo de tendência artificial é adicionado às tendências locais de cada uma das quantidades na seguinte forma

$$\left(\frac{\partial \bar{\phi}}{\partial t}\right)_{nud} = \varpi(k, i, j) \frac{(\phi_0 - \bar{\phi})}{\tau} \quad (2.66)$$

onde $\bar{\phi}$ é o valor atual da variável calculada pelo modelo, ϕ_0 é o valor desta variável na análise, τ é a escala de tempo da forçante, que define a sua intensidade, e $\varpi(k, i, j)$ é um termo 3D, determinando as regiões do domínio que este procedimento se realizará. Em um certo instante de tempo t do modelo, o valor da variável 'observada' $\phi_0(t)$ é obtido através de uma interpolação linear no tempo entre os valores de ϕ_0 em duas análises consecutivas. As escalas de tempo são divididas em três: no centro (tnudcent), numa banda lateral (tnudlat) e numa banda no topo do modelo (tnudtop). As escalas de tempo são definidos pelo usuário e possibilitam a construção do termo $\varpi(k, i, j)/\tau$ da Eq. 2.66.

Em simulações de longo termo, como é o caso das simulações apresentadas neste trabalho, o procedimento de relaxação Newtoniana permite que a simulação seja conduzida com as grandezas simuladas reproduzindo as mesmas características de larga escala, representadas nas análises globais do NCEP. Permitindo, porém, que o modelo também resolva a física de escalas menores.

2.3 Incertezas associadas ao cálculo de trajetórias de parcelas de ar

O modelo de trajetórias desenvolvido neste trabalho utiliza um esquema numérico exato até 2ª ordem em Δt . Comparações realizadas com campos de vento analíticos e que apresentam solução analítica (exata) para as trajetórias, mostraram que o método é bastante preciso para integrações temporais da ordem de semanas na mesma escala espacial utilizada neste estudo. Entretanto, a incerteza no cálculo de trajetórias de parcelas de ar está associada às incertezas na determinação do campo de vento em situações reais. Entre os inúmeros fatores que influenciam na determinação dos campos de ventos devemos ressaltar:

1. Incertezas associadas às análises do NCEP, utilizadas como condições iniciais e de contorno. Estas incertezas são particularmente importantes no hemisfério Sul devido a escassez de medidas meteorológicas.
2. Limitação computacional e conseqüente limitação na definição da resolução espacial e temporal da simulação. Resultando na exclusão de importantes processos físicos da escala resolvida do modelo, os quais são parametrizados e carregam as incertezas associadas com estas parametrizações.
3. Processos físicos ainda não completamente compreendidos e não incluídos (ou incluídos apenas precariamente) no problema. Por exemplo: influências diretas e indiretas das partículas de aerossóis no balanço radiativo da atmosfera, processos de microfísica de nuvens, entre outros.

A complexidade dos fatores enumerados acima inviabilizam uma avaliação numérica da incerteza associada à determinação dos campos de ventos e conseqüentemente ao cálculo de trajetórias de parcelas de ar. Entretanto, conforme será evidenciado ao longo das aplicações discutidas nos capítulos 03 e 04, as trajetórias calculadas segundo a metodologia proposta apresentaram um alto grau de confiabilidade na sua utilização como ferramenta complementar na interpretação de medidas de física e química da atmosfera.

2.4 Técnicas experimentais

Nesta seção descreve-se as principais técnicas experimentais de medidas de aerossóis e gases, através das quais obtiveram-se os resultados apresentados e discutidos neste trabalho. Apresenta-se a seguir a metodologia de amostragem de aerossóis e as técnicas analíticas destinadas a determinação de concentrações e composições elementares de aerossóis; uma descrição das radiosondagens de ozônio e das medidas com fotômetros solares e celestes. Discute-se ainda medidas de aerossóis via sensoriamento remoto, tais como, o Índice de Aerossóis do TOMS “Total Ozone Mapping Spectrometer”; e medidas da estrutura vertical da coluna de aerossóis com o sistema CLS “Cloud Lidar System”, a bordo da aeronave ER-2 da NASA.

2.4.1 Medidas *In Situ* de partículas de aerossóis atmosféricos

Resultados de medidas de concentração e composição elementar de aerossóis coletados e analisados segundo a metodologia e técnicas descritas a seguir são apresentados no capítulo 3 deste trabalho.

Metodologia de amostragem de aerossóis e análise gravimétrica

As partículas de aerossóis atmosféricos foram coletadas em filtros de polícarbonato, da marca Nuclepore, com 47 mm de diâmetro. Utilizou-se filtros com poros de 8,0 μm de diâmetro (denominados ‘grossos’), e filtros com poros de 0,4 μm de diâmetro (denominado ‘finos’). Os filtros, acondicionados em um corpo plástico denominado Amostrador de particulado Fino e Grosso (AFG), o qual é acoplado à um sistema de aquisição de ar, com fluxo da ordem de 16 l/min, possibilitam a coleta do material particulado presente na atmosfera em duas modalidades distintas. A moda fina, correspondente à fração do material particulado coletado nos filtros finos, retém partículas com diâmetro aerodinâmico² inferior a 2 μm . A moda grossa refere-se a fração do material particulado total coletado nos filtros

²O diâmetro aerodinâmico de uma partícula é o diâmetro de uma esfera de densidade unitária que possui a mesma velocidade de deposição que a partícula em questão [Baron & Willeke, 1992].

grossos, os quais retêm partículas com diâmetro aerodinâmico entre 2 e 10 μm . A soma das frações fina e grossa é usualmente denominada particulado inalável e corresponde as partículas com diâmetro aerodinâmico inferior a 10 μm .

Obtem-se a massa total do material particulado nos filtros fino e grosso através de um procedimento sistemático de pesagem dos filtros, antes e após a amostragem. Utilizou-se uma balança microanalítica eletrônica com sensibilidade nominal de 1 μg . Antes da pesagem os filtros foram mantidos por 24 horas em condições ambientais estáveis, a uma temperatura de 20°C e umidade relativa do ar de 50 %. Os filtros foram expostos à radiação ionizante de fontes radioativas de ^{210}Po , afim de neutralizar a carga eletrostática acumulada. A massa das partículas amostradas, nas duas frações, é a diferença dos resultados das pesagens dos filtros, antes e após a exposição, subtraindo-se a massa média acumulada em filtros de controle, isto é, não amostrados. A medida do volume total de ar amostrado, permite a obtenção da concentração média de aerossóis presentes na atmosfera, durante o período de amostragem. O limite de detecção para a concentração da massa do material particulado é de 0,3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Uma descrição detalhada da metodologia de amostragem pode ser encontrada em Yamasoe [1994] e Correia [1998].

A análise elementar através do método PIXE

Na determinação da composição elementar dos aerossóis coletados utilizou-se a técnica PIXE "Particle - Induced X-Ray Emission". O método consiste, basicamente, na indução da produção de raios-x característicos dos elementos da amostra analisada, através da interação de um feixe de partículas de alta energia com a amostra em questão. Uma posterior análise do espectro dos raios-x emitidos permite a identificação e quantificação dos elementos que compõem a amostra. A técnica permite, a princípio, a identificação simultânea de elementos entre Na e U, com limites de detecção que podem chegar a 10^{-7}gg^{-1} [Maenhaut, 1990].

A figura 2.3 mostra um diagrama esquemático da disposição dos vários componentes do sistema PIXE. Utilizou-se um feixe de prótons de 2,4 MeV, fornecido por um ciclotron isócrono compacto (CGR-MeV). Os raios-x emitidos são detectados através de um detector de Si dopado com Li (marca Kevex), cuja resolução

é suficiente para permitir a separação de picos espectrais de elementos próximos na tabela periódica [Johansson, 1995]. O feixe de prótons, após atravessar a amostra, é coletado e a carga elétrica é integrada por um copo de Faraday. Um filtro de “mylar” é posicionado à frente do detector afim de absorver partículas retroespalhadas.

Na quantificação da massa de um dado elemento de número atômico Z , utiliza-se um modelo teórico da interação do feixe de prótons com o elemento em questão, levando-se em conta a geometria do sistema e as informações do sistema de rejeição de contagens [Correia, 1998]. Os espectros dos raios-x obtidos são analisados com o programa AXIL [Van Espen *et al.*, 1979], que através do ajuste das linhas espectrais permite o cálculo das concentrações elementares.

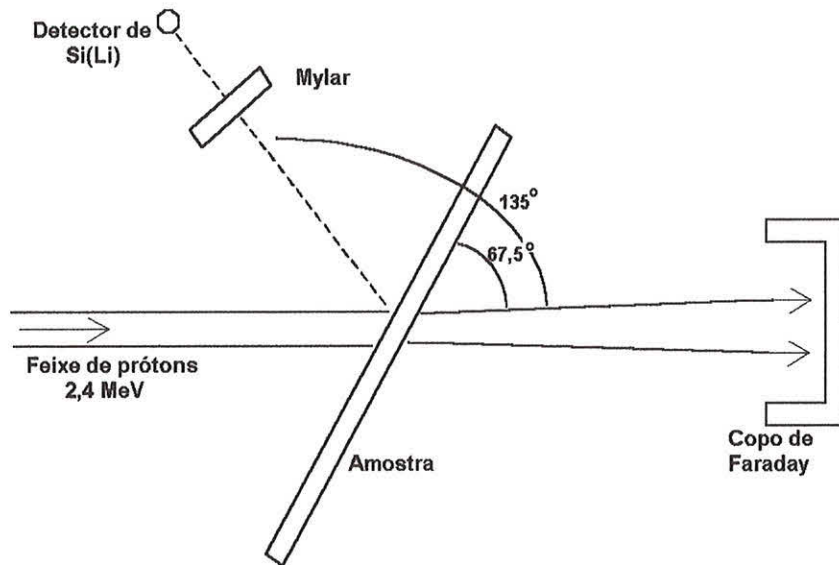


Figura 2.3: Diagrama esquemático do posicionamento da amostra e outros componentes do sistema PIXE. Adaptado de Correia [1998].

Utilizou-se o sistema PIXE da Universidade de Gent, na Bélgica, e as irradiações foram conduzidas sob a coordenação do Dr. Willy Maenhaut. Detalhes da calibração do sistema PIXE de Gent podem ser encontrados em [Maenhaut *et al.*, 1980] e [Maenhaut & Raemdonck, 1984]. A utilização da técnica PIXE na análise de aerossóis atmosféricos coletados em filtros de polícarbonato é freqüente, e diversos autores têm relatado a adequação da técnica para esta aplicação específica

[Yamasoe, 1994; Correia, 1998; Echalar *et al.*, 1998; Artaxo *et al.*, 1998]

Determinação da concentração de “black-carbon”

A definição de “black-carbon” (BC) corresponde às diversas espécies de carbono particulado, que eficientemente absorvem radiação na faixa do visível. O coeficiente de absorção σ_a e a concentração de massa de “black-carbon” c_{mbc} relacionam-se através de

$$\sigma_a = \alpha_{abc}c_{mbc} \quad (2.67)$$

onde α_{abc} é a eficiência de absorção de massa [Reid *et al.*, 1998]. A massa de “black-carbon” em uma amostra de aerossóis pode ser determinada através de medidas de σ_a e estimativas de α_{abc} . Medidas acopladas do fluxo de ar durante a amostragem dos aerossóis permitem a determinação da concentração atmosférica de “black-carbon”.

Neste trabalho utilizou-se duas técnicas distintas na obtenção das concentrações de “black-carbon”. Os resultados das medidas de concentração de “black-carbon” discutidos no capítulo 3, foram obtidos através da técnica de refletância de luz [Delumea, 1980]. No capítulo 4, as concentrações de “black-carbon” referem-se a medidas de “black-carbon” utilizando-se um aetalômetro [Hansen, 1985]. Uma intercomparação entre estas duas técnicas de determinação de “black-carbon” encontra-se em [Reid *et al.*, 1998].

A técnica de refletância de luz consiste na iluminação de um filtro de policarbonato, no qual foram coletadas partículas de aerossóis, e subsequente medição da luz refletida. A quantidade de luz refletida é utilizada na determinação da porção absorvida pelos aerossóis no filtro, através da comparação com uma curva de calibração. Esta curva de calibração é obtida a partir de medidas da refletância de uma série de filtros com diferentes quantidades de carbono gráfico. As medidas de “black-carbon” através de um aetalômetro consistem em medidas da atenuação de luz através de um filtro, no qual aerossóis são continuamente coletados. O aetalômetro opera automaticamente, coletando aerossóis em uma fita de filtros de fibra de quartzo e realizando medidas subsequentes da atenuação óptica através do filtro amostrado, em intervalos regulares.

2.4.2 Radiosondagens de ozônio

No capítulo 4, discute-se a integração de resultados de medidas de sondagens de ozônio em Cuiabá - MT com o transporte atmosférico em larga escala. Utilizou-se sondas ECC “Electrochemical Concentration Cell”, acopladas a sensores meteorológicos convencionais lançadas em balões [Kirchhoff *et al.*, 1996]. Desta maneira, além do perfil vertical de concentração de ozônio, mediu-se a umidade relativa, pressão atmosférica e temperatura ambiente.

O sensor ECC consiste, basicamente, em uma célula com dois eletrodos de platina imersos em solução de iodo, em diferentes concentrações para o ânodo e para o catôdo. Quando o ar atmosférico circula através do catôdo, uma corrente elétrica, proporcional a concentração de ozônio, é gerada e transmitida à um receptor em solo. As sondas de ozônio foram calibradas e lançadas pelo laboratório do INPE - Instituto de Nacional de Pesquisas Espaciais, sob a coordenação do Dr. V. Kirchhoff [Kirchhoff *et al.*, 1991] e consistem em um procedimento de rotina deste laboratório. Uma discussão da acurácia e precisão de diversos tipos de sondagens de ozônio pode ser encontrada em [Barnes *et al.*, 1985].

2.4.3 Fotômetros solares e celestes

Desde 1992 a NASA tem operado uma rede de fotômetros solares e celestes (AERONET “AErosol RObotic NETwork”) em vários pontos da bacia Amazônica, inclusive Cuiabá (MT). Medidas direta da radiação solar foram feitas nos comprimentos de onda 340, 440, 670, 870, 940 e 1020 nm à cada 15 minutos e de radiância celeste à cada 1 hora. No capítulo 4, discute-se resultados de espessura óptica de aerossóis e quantidade de vapor d’água precipitável derivados a partir de medidas da AERONET.

A partir de instrumentos pré-calibrados, medidas diretas de radiação solar são convertidas para valores de espessura ótica de aerossóis em cada um dos canais [Holben *et al.*, 1996]. A espessura ótica de aerossóis³ é a espessura vertical, para componentes não moleculares, de toda a coluna atmosférica derivado a partir das medidas da radiação transmitida através da atmosfera [Kaufman *et al.*, 1983].

³Neste trabalho, algumas vezes, utiliza-se a sigla AOT (do inglês “Aerosol Optical Thickness”) na designação da espessura ótica de aerossóis.

A quantidade de água precipitável presente na atmosfera também é derivada a partir de medidas da mesma instrumentação, na região de absorção do vapor d'água (0,935 - 0,950 μm) [Kaufman *et al.*, 1992]. A determinação do AOT e de vapor d'água precipitável a partir das medidas da AERONET encontra-se descrita com detalhes em [Yamasoe, 1999].

2.4.4 O monitoramento de aerossóis por sensoriamento remoto - Índice de Aerossóis - TOMS

Durante o experimento LBA-CLAIRE (que será discutido no capítulo 3) dados de índice de aerossóis, derivados a partir de medidas de radiação ultra-violeta pelo sensor Nimbus-7/TOMS "Total Ozone Mapping Spectrometer" (IA-TOMS), estiveram disponíveis sobre a região equatorial, permitindo o acompanhamento diário da suspensão e transporte de aerossóis minerais do Saara, bem como a emissão e transporte dos aerossóis emitido pela intensa queimada ocorrida no estado de Roraima (figuras 3.31 e 3.32).

O instrumento TOMS a bordo do satélite Nimbus7 realiza medidas diárias de radiância UV (Ultra-Violeta) retro espalhada em seis comprimentos de onda (313, 318, 331, 340, 360 e 380 nm), tendo sido originalmente desenvolvido com a finalidade de fornecer estimativas globais da coluna total de ozônio na atmosfera da Terra. Nos comprimentos de onda 340, 360 e 380 nm, a absorção gasosa é fraca e a radiação retro-espalhada é controlada primariamente por espalhamento molecular, reflexão da superfície e espalhamento por aerossóis e nuvens. Esta propriedade permitiu a definição do índice de aerossóis (*IA*), baseado no contraste espectral entre os canais 340 e 380 nm, possibilitando a detecção de aerossóis absorvedores de radiação UV, tais como aerossóis minerais de poeira do deserto, aerossóis emitidos em queimada e aerossóis de origem vulcânica [Chiapello *et al.*, 1999; Hsu *et al.*, 1999]. O índice de aerossóis é definido como:

$$IA = -100 \{ \log [(I_{340}/I_{380})_{med}] - \log [(I_{340}/I_{380})_{cal}] \}, \quad (2.68)$$

onde I_{med} é a radiância retro espalhada medida pelo TOMS em um dado comprimento de onda e I_{cal} é a radiância calculada usando um modelo de transferência radiativa para uma atmosfera Rayleigh pura. Definido desta maneira, o *IA* é,

essencialmente, uma medida da redução, dependente do comprimento de onda, da radiância espalhada Rayleigh por absorção por aerossóis relativa à uma atmosfera Rayleigh pura. A baixa e aproximadamente constante refletividade UV da superfície da terra, tanto em áreas continentais quanto em áreas oceânicas, torna esta metodologia aplicável à detecção de aerossóis sobre regiões continentais e sobre regiões oceânicas, permitindo o acompanhamento do transporte à longa distância de plumas de aerossóis. Observou-se que o contraste espectral I_{340}/I_{380} é maior para aerossóis não absorvedores e diminui com o decréscimo da absorção, sendo que aerossóis absorvedores UV produzem um contraste espectral menor que o previsto para uma atmosfera Rayleigh pura [Chiapello *et al.*, 1999]. Assim, valores positivos do índice de aerossóis geralmente correspondem a aerossóis absorvedores UV e valores negativos correspondem a aerossóis não absorvedores.

Aerossóis minerais do deserto do Saara

Comparações de medidas de IA-TOMS com dados de espessura óptica de aerossóis, derivados a partir de medidas de radiação por fotômetros solares em solo, mostram, em geral, uma relação linear entre as duas grandezas na observação de aerossóis de poeira do deserto [Chiapello *et al.*, 1999; Hsu *et al.*, 1999]. Sendo que esta relação linear é quebrada para atmosfera altamente carregada de aerossóis, em geral, para valores de espessura óptica de aerossóis acima de 3, no comprimento de onda de 380 nm.

Mesmo quando a relação linear ocorre, algumas discrepâncias foram observadas, e no caso de aerossóis de deserto estas se devem principalmente à sensibilidade da resposta do TOMS à altitude da camada de aerossóis. A técnica é inábil na detecção de aerossóis em níveis muito baixos (1,5 km ou menos), havendo uma diminuição da acurácia da detecção à medida em que diminui a concentração de aerossóis. Segundo Hsu *et al.* [1999], a inabilidade da técnica na detecção de aerossóis em níveis muito baixos se deve ao fato de que o espalhamento Mie passa a dominar sobre a redução do espalhamento Rayleigh por absorção, resultando em valores negativos do IA. A despeito da baixa altitude com que os aerossóis do Saara são transportados, Chiapello *et al.* [1999] mostraram que, de maneira geral, o IA-TOMS mostrou-se eficiente na detecção de aerossóis do Saara sem, entretanto, quantificar acuradamente a intensidade destes eventos, devido a

sensibilidade do TOMS à altitude dos aerossóis.

Aerossóis emitidos por queimadas

Quanto à habilidade na detecção de aerossóis absorvedores emitidos durante queimadas, um estudo comparativo do IA-TOMS com dados de espessura óptica de aerossóis, derivados a partir de medidas de radiação por fotômetros solares em solo, realizado por Hsu *et al.* [1999], mostra também, em geral, uma relação linear entre as duas grandezas. No caso de aerossóis de queimada esta relação linear também é destruída para valores extremamente altos de espessura óptica de aerossóis, em geral, acima de 4, no comprimento de onda de 380 nm. Abaixo deste limite, a relação entre os dois índices, embora seja boa, se mostrou altamente dependente da localização das fontes emissoras. Por exemplo, foram observadas diferenças significativas entre as propriedades ópticas da fumaça emitida em queimadas na África e na América do Sul. Em particular, observou-se que o albedo simples da fumaça emitida na América do Sul é provavelmente maior (isto é, menos absorvedor) que o da fumaça emitida na África. Estas diferenças são atribuídas à inúmeros fatores, os quais são distintos nas duas localidades: tipos de combustível, condições meteorológicas associadas à combustão, em particular, umidade relativa e estrutura vertical da atmosfera. Segundo Hsu *et al.* [1999], embora estudos adicionais ainda sejam necessários afim de produzir uma relação quantitativa entre os dois parâmetros, a detecção de aerossóis emitidos em queimadas pelo TOMS, do ponto de vista qualitativo, é confiável.

2.4.5 Sistema CLS “Cloud Lidar System”/ER-2

Durante o experimento SCAR-B (discutido no capítulo 4) um sistema CLS “Cloud Lidar System”, a bordo da aeronave ER-2 da NASA, permitiu uma visualização detalhada de nuvens e da estrutura vertical da coluna de aerossóis abaixo da camada limite na direção do nadir. O CLS utiliza um laser pulsado de Nd:YAG, transmitindo nos comprimentos de onda 1,064 μm e 0,532 μm , com 20 metros de resolução espacial, e resolução vertical máxima de 7,5 metros. As imagens mostradas nas lâminas 6 (a) e (b) do apêndice C (páginas 12126 - 12127) referem-se aos valores do coeficiente de retroespalhamento por aerossóis, deriva-

dos a partir de medidas da radiação retroespalhada, ao longo de dois vôos do ER-2. Uma descrição detalhada do CLS é dada por Spinhirne *et al.* [1982].

Capítulo 3

Um estudo de caso na estação chuvosa:

O Experimento LBA-CLAIRE

3.1 Introdução

Durante a estação úmida do ano de 1998 realizou-se na região Amazônica o experimento LBA-CLAIRE “Cooperative LBA Airborne Regional Experiment”. O LBA-CLAIRE foi um dos experimentos associados ao projeto LBA “Large Scale Biosphere Atmosphere Experiment in Amazonia”. O LBA é uma iniciativa multi-disciplinar e multi-institucional que pretende gerar conhecimentos que possibilitem a compreensão, de maneira integrada, do meio ambiente Amazônico.

O experimento LBA-CLAIRE teve como objetivos gerais:

- Compreender, de maneira integrada e quantitativa, as interações dos fluxos de origem biogênica com o transporte atmosférico, troca vertical e processamento fotoquímico sobre a floresta tropical.
- Investigar o transporte vertical e o processamento de traçadores atmosféricos da camada limite para a média e alta troposfera por convecção profunda.
- Estudar as fontes, composição química e propriedades físicas dos aerossóis sobre a floresta.

O mapa da figura 3.1 mostra a área de abrangência do experimento LBA-CLAIRE, realizado no período de 01 de março à 20 de abril de 1998. A posição de Balbina (1.9°S, 59.5°O), local onde foram realizadas em solo várias medidas de química da atmosfera, gases e física de aerossóis, durante o experimento, está identificada no mapa.

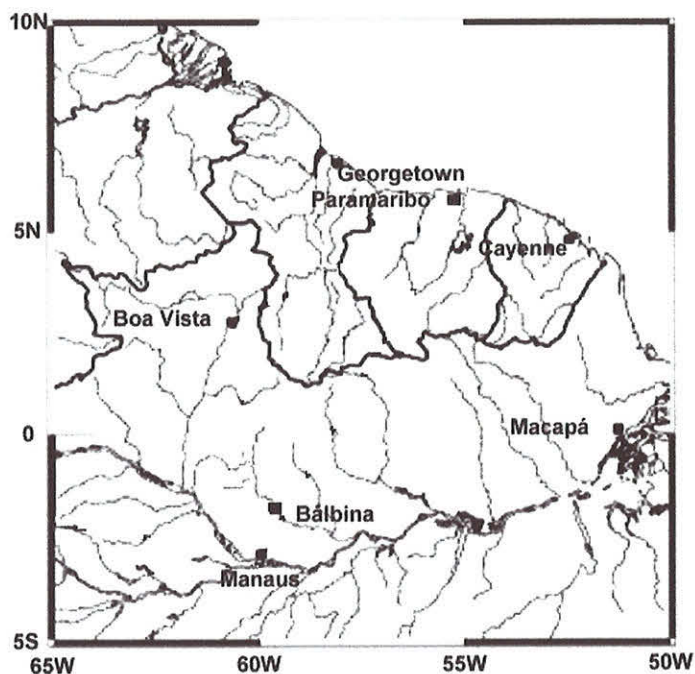


Figura 3.1: Área de abrangência do experimento LBA-CLAIRE.

Neste capítulo, discute-se resultados do experimento LBA-CLAIRE. Serão apresentadas as medidas de concentrações e composições elementares de partículas de aerossóis, no nível da superfície, em Balbina. Uma análise das condições meteorológicas e de retro-trajetórias de parcelas de ar, possibilitaram a identificação e caracterização de um episódio de transporte e deposição de aerossóis minerais do Saara na bacia Amazônica. Discute-se, também, as influências da meteorologia local sobre o padrão das emissões naturais da floresta.

A ocorrência de um caso de exportação de emissões de queimadas, da baixa para a alta troposfera, via convecção profunda é apresentada em conjunção com uma análise de trajetórias.

3.2 Condições meteorológicas do período

Os primeiros meses do ano na região Amazônica são, em condições normais, caracterizados por altos índices de umidade relativa e altas taxas de precipitação. A penetração da ZCIT no interior da região Amazônica, durante esta época do ano, eleva os índices de umidade, favorecendo a nebulosidade na região.

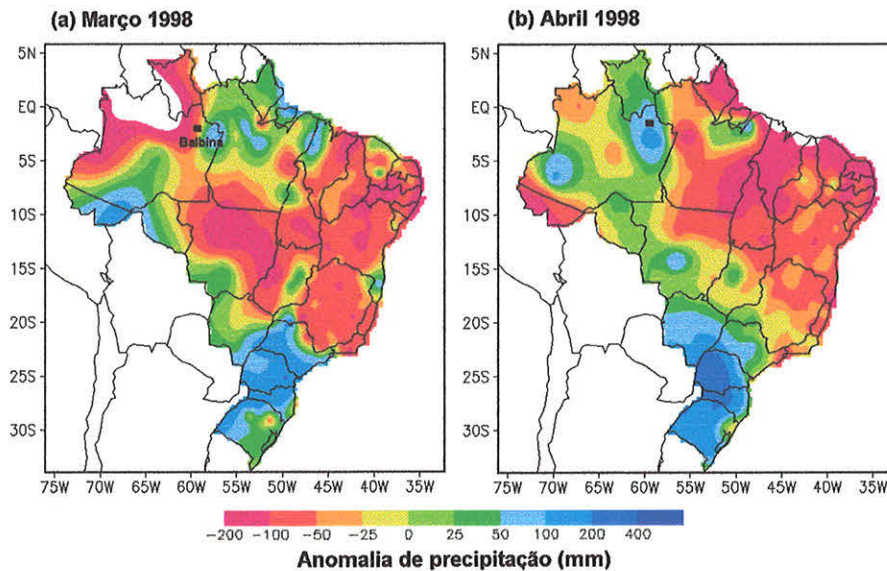


Figura 3.2: Desvios de precipitação (em mm) em relação à média climatológica (1961-1990) para (a) março de 1998 e (b) abril de 1998. Extraído de (Climanálise, março e abril de 1998).

A situação meteorológica no período do experimento LBA-CLAIRE, entretanto, foi anômala em relação à média climatológica tomada entre 1961 e 1990 [Climanálise, março, 1998]. Durante o mês de março de 1998 foram observadas, no norte e nordeste da região Amazônica, temperaturas até $+2^{\circ}\text{C}$ acima da média climatológica e baixos índices de umidade relativa, resultando em baixas taxas de precipitação. O norte da região Amazônica, particularmente, o Estado de Roraima, esteve sob forte subsidência, o que resultou em uma severa estiagem e seca na região, incomuns àquela época do ano. A figura 3.2 mostra os desvios de precipitação observadas (a) em março e (b) abril de 1998, em relação à média climatológica. Em março houve estiagem na faixa leste brasileira de latitudes ao

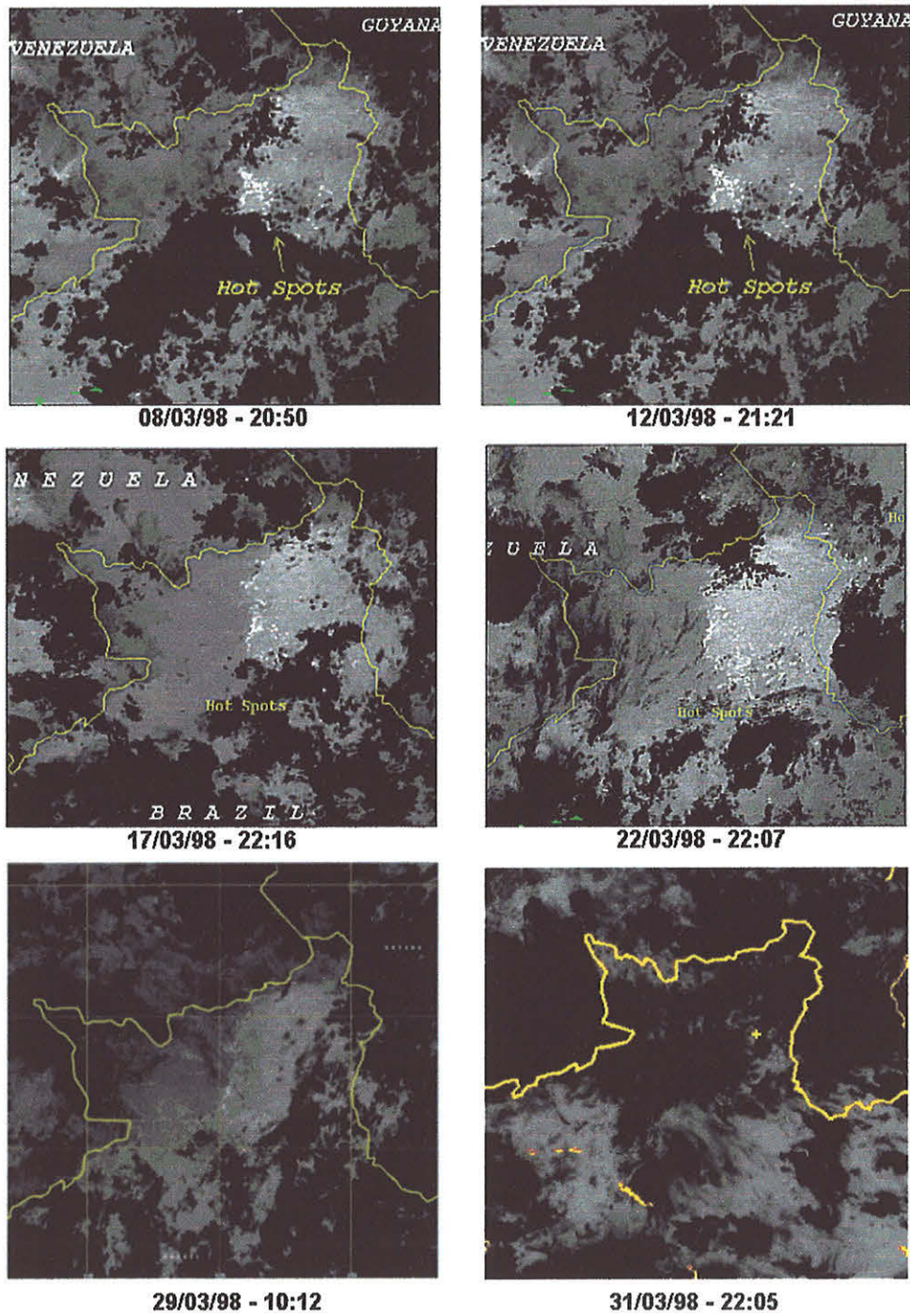


Figura 3.3: Imagens no canal infra-vermelho do sensor NOAA/AVHRR. Focos de queimadas, localizados principalmente em Roraima, são indicados por pontos mais claros e brilhantes.

norte de 20°S, na região centro-oeste e no noroeste da região Amazônica, principalmente no Estado de Roraima. Em abril a estiagem atenuou-se nos Estados do Amazonas e Roraima e passou a atingir o Estado do Pará, além de se manter na faixa leste e região central do Brasil.

Uma das maiores consequências desta estiagem foram as intensas queimadas que ocorreram no Estado de Roraima e na Venezuela. As queimadas no Estado de Roraima atingiram principalmente áreas de cerrado e áreas de transição entre cerrado e floresta, além de incêndios que se propagaram abaixo da copa das árvores na floresta. Na figura 3.3 imagens no canal infra-vermelho do satélite NOAA/AVHRR ilustram a evolução destas queimadas durante o mês de março. Além das queimadas em larga escala, temporal e espacial, observadas em Roraima e na Venezuela, focos de incêndios isolados foram notados na extensa região sob estiagem durante os meses de março e abril [Andreae, 1999].

3.2.1 O fenômeno ENSO - El Niño

As anomalias observadas na região Amazônica, durante os meses de março e abril de 1998, são efeitos resultantes do fenômeno ENSO “El-Niño” - SO (do inglês “Southern Oscillation”), o qual vinha atuando sobre o clima global desde o ano anterior.

O fenômeno “El-Niño”, o qual caracteriza-se por um aquecimento anômalo das águas superficiais do oceano Pacífico, ocorre com uma periodicidade variável de dois a sete anos e prolonga-se por um período de 14 a 22 meses. A ocorrência do “El-Niño”, com suas variações no padrão de circulação e temperaturas da superfície do oceano Pacífico está, em geral, relacionada às oscilações relativas da pressão atmosférica na região do oceano Pacífico equatorial leste e na região da Indonésia/Austrália, conhecidas com Oscilações Sul. Ou seja, quando a pressão atmosférica é alta sobre o oceano Pacífico leste, ela tende a ser baixa no oceano Índico e vice-versa. Daí a terminologia ENSO.

O índice de oscilação sul (ou índice Tahiti-Darwin), definido como sendo a diferença de pressão atmosférica medida no Tahiti (a leste) e em Darwin, Austrália (a oeste), fornece uma medida da intensidade desta oscilação e funciona como um parâmetro na avaliação de seus efeitos globais. Grandes variações,

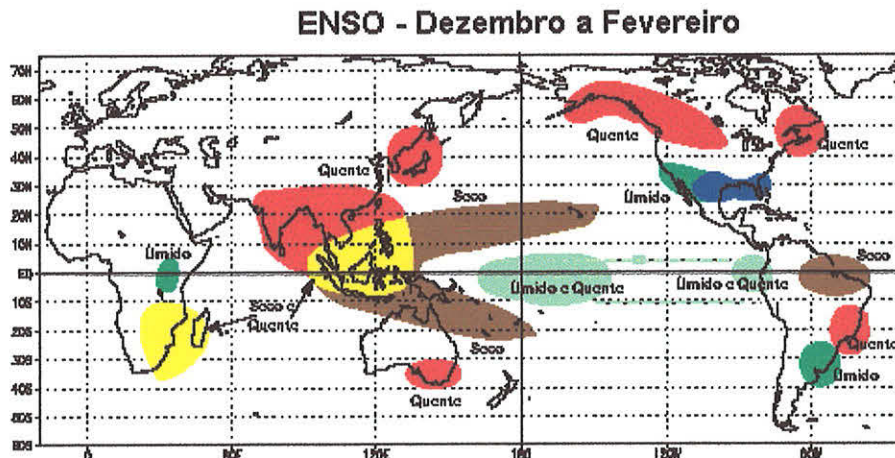


Figura 3.4: *Efeitos conhecidos do fenômeno ENSO em diversas partes do globo para o período de verão no hemisfério Sul. (Fonte: NCEP/NOAA)*

em módulo, neste índice (em geral, superiores a 1) caracterizam alterações no complexo sistema acoplado atmosfera-oceano. Altos valores negativos no índice Tahiti-Darwin caracterizam o fenômeno ENSO. Por outro lado, altos valores positivos deste índice caracterizam a ocorrência do fenômeno “La-Niña”, relacionado com o resfriamento anômalo das águas superficiais do oceano Pacífico.

O ENSO é um fenômeno de escala global e sua ocorrência está relacionada à anomalias climáticas globais; sendo caracterizado por teleconexões, ou seja, interações atmosféricas entre regiões geograficamente distantes. A figura 3.4 mostra efeitos conhecidos do fenômeno ENSO em diversas partes do globo para os meses de dezembro à fevereiro, verão no hemisfério Sul. Estes efeitos afetam majoritariamente as regiões equatoriais e de baixas latitudes. Durante episódios ENSO, as circulações Walker, ao longo do Equador, sofrem variações em intensidade e posição das células, alterando o padrão de convecção e precipitação no oceano Pacífico (figura 3.5). Conseqüentemente, a região leste do oceano Pacífico equatorial, sob condições ENSO, possui temperaturas e índices de umidade relativa acima da média climatológica, e um conseqüente aumento nas atividades convectivas. No norte e nordeste da América do sul, a ocorrência do ENSO, está relacionada a períodos de severas secas na região, na qual em condições normais predominam altos índices de precipitação.

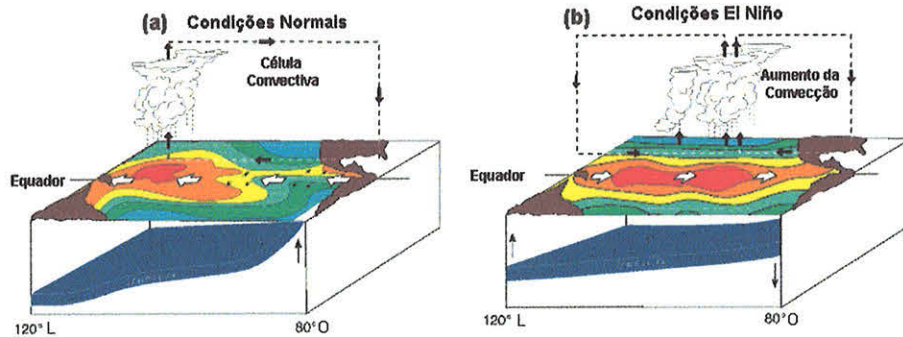


Figura 3.5: Diagrama esquemático das variações do padrão de convecção na região do oceano Pacífico, em (a) condições normais e (b) condições El-Niño. (Fonte: NOAA)

3.2.2 Simulação atmosférica do período

Uma simulação atmosférica do período do experimento LBA-CLAIRE foi realizada utilizando o modelo RAMS. Foram consideradas duas grades e utilizada a capacidade de aninhamento de grades do modelo RAMS. A grade externa com uma resolução horizontal de 200 km por 200 km, inclui a área situada entre as latitudes 23°S e 53°N e longitudes 103°O e 23°L. A grade aninhada, com resolução horizontal de 50 km por 50 km, foi colocada basicamente sobre a região Amazônica, entre as latitudes 14°S e 13°N e longitudes 84°O e 39°O. A resolução vertical da grade externa é de 400 m no nível adjacente à superfície, e diminui gradualmente à uma taxa de 1,2 até o espaçamento vertical máximo de 1100 m, mantendo esta resolução até o topo do modelo, aproximadamente em 20 km. O espaçamento vertical da grade aninhada é a metade do espaçamento vertical da grade externa até a altitude de 3 km, aproximadamente; acima desta altitude ambas as grades possuem a mesma resolução vertical.

A simulação de 30 dias, iniciada em 15 de março de 1998, foi conduzida a partir de condições iniciais supridas por uma interpolação das re-análises globais, com espaçamento temporal de 6 horas, do NCEP - "National Center for Environmental Prediction"; as quais possuem uma resolução espacial de 2,5° por 2,5° e 13 níveis verticais (de 1000 hPa a 70 hPa). O modelo foi forçado na direção das análises do NCEP ao longo da integração temporal, utilizando a opção de

relaxação Newtoniana do modelo (equação 2.63). Embora esta forçante tenha sido aplicada principalmente às fronteiras e ao topo do modelo, o interior do modelo também foi forçado, de maneira significativa, porém com menor intensidade. Esta metodologia permite que a simulação seja conduzida por vários dias, com os ventos simulados reproduzindo as mesmas características de larga escala representadas nas análises globais do NCEP. Permitindo, porém, que o modelo também resolva as circulações de escalas menores.

Os resultados da simulação atmosférica para o período LBA/CLAIRE mostram que o posicionamento relativo dos sistemas de alta e baixa pressão da baixa troposfera tropical, atuam de maneira determinante no padrão de circulação regional da Amazônia e na formação de sistemas convectivos no interior da bacia Amazônica. As figuras 3.6 e 3.7 mostram as médias dos campos de ventos em 1000, 850, 500 e 200 hPa, tomadas entre os dias 23 e 28 de março e entre os dias 01 e 15 de abril de 1998, respectivamente.

Nos últimos dias de março (figura 3.6) observou-se a ocorrência de ventos fortes em níveis baixos em direção à costa N/NE das Guianas e do Brasil, com penetração na bacia Amazônica. Este forte fluxo de NE na baixa troposfera foi resultante da coincidência do núcleo da Alta Subtropical do Oeste Africano estar sobre o oceano Atlântico Central próximo à costa oeste da África e do posicionamento à oeste deste sistema de um anticiclone tropical. Nos níveis altos, uma zona de alta pressão sobre o extremo norte da região Amazônica produziu um período de intensa subsidência na região. Esta subsidência no extremo norte da região Amazônica pode ser notada nas imagens da figura 3.8. A combinação da posição da Alta Subtropical de Atlântico Sul aos sistemas na porção norte equatorial promoveu, ainda, a penetração da ZCIT no interior do continente e a organização do sistema mostrado na figura 3.8, entre os dias 25 e 26 de Março.

Durante a primeira quinzena de abril (figura 3.7) a Alta Subtropical do Oeste Africano não mais se encontrava sobre o oceano Atlântico Central, ocorrendo um redução significativa na velocidade dos ventos de superfície em direção à costa N/NE do continente Sul Americano.

Nesta seção mostrou-se brevemente alguns resultados desta simulação, os quais caracterizam o padrão de circulação de larga escala e algumas características importantes da meteorologia regional da Amazônia durante o período do expe-

Campo de vento médio em 23-28/Março/1998

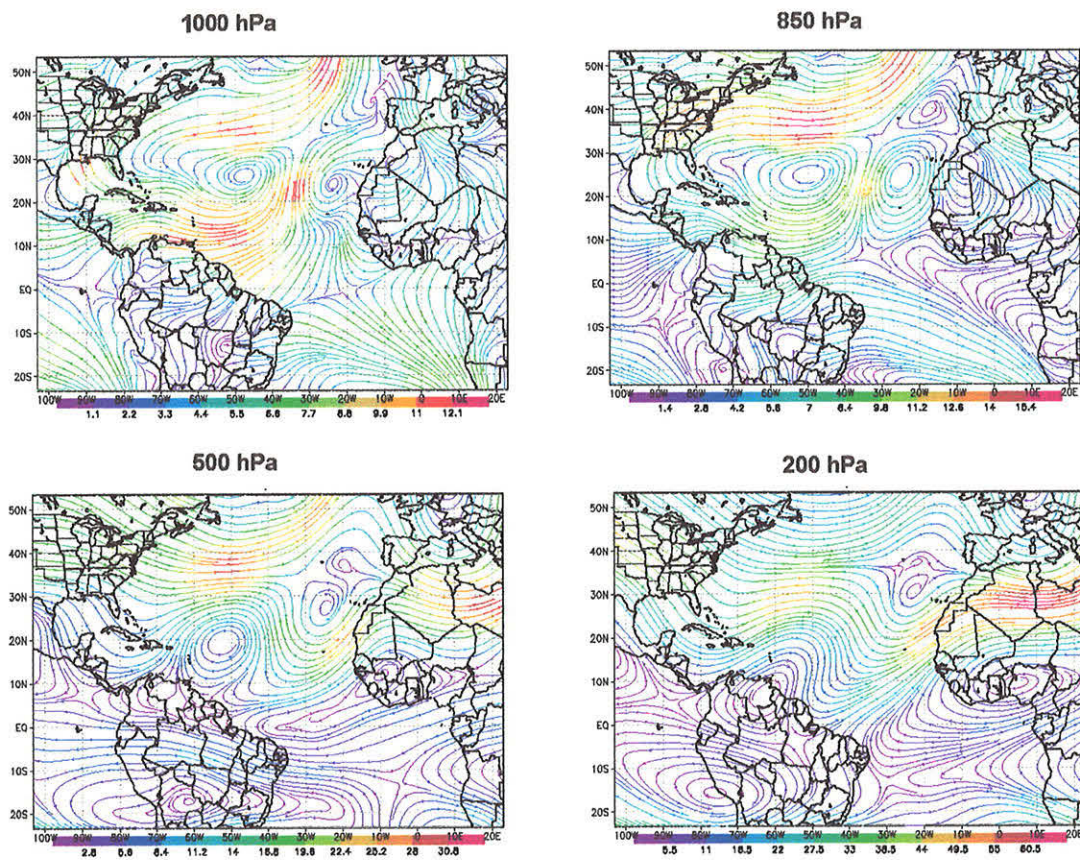


Figura 3.6: Campo de vento médio, entre os dias 23 e 28 de março de 1998, em 1000 hPa, 850 hPa, 500 hPa e 200 hPa. Resultados da simulação numérica. A escala de cores indica a intensidade da velocidade do vento.

Campo de vento médio em 01-15/Abril/1998

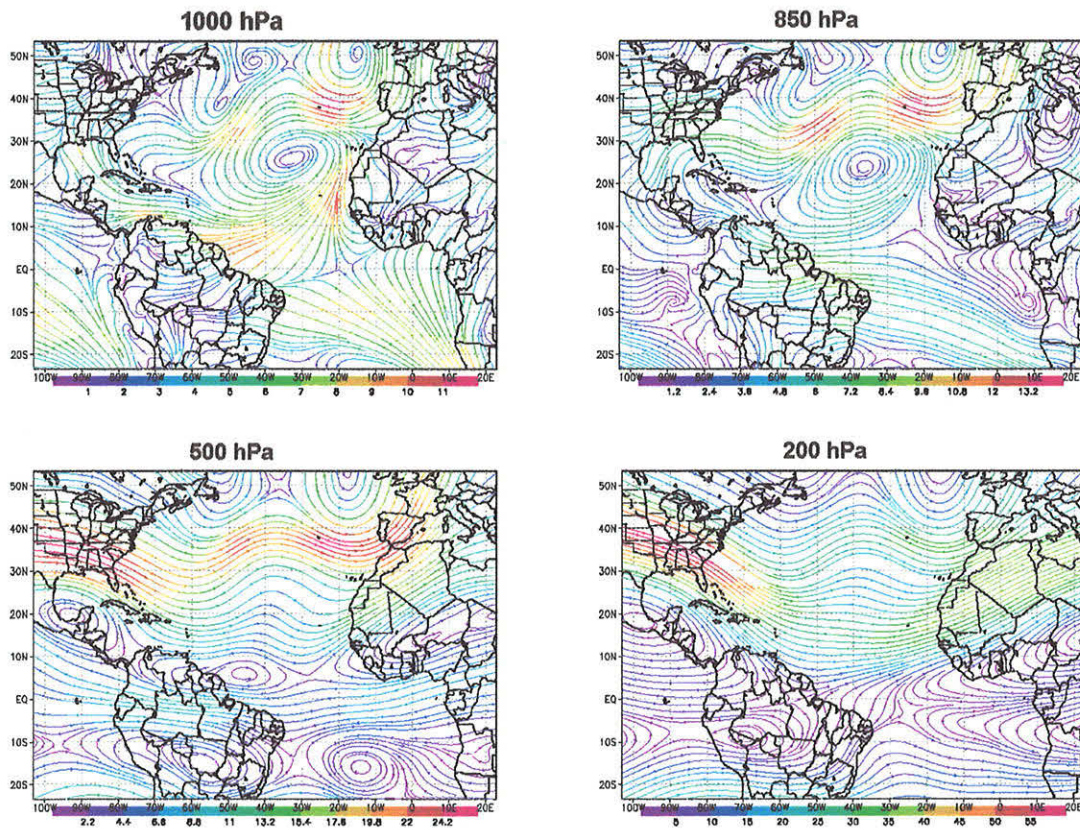


Figura 3.7: Campo de vento médio, entre os dias 01 e 15 de abril de 1998, em 1000 hPa, 850 hPa, 500 hPa e 200 hPa. Resultados da simulação numérica. A escala de cores indica a intensidade da velocidade do vento.

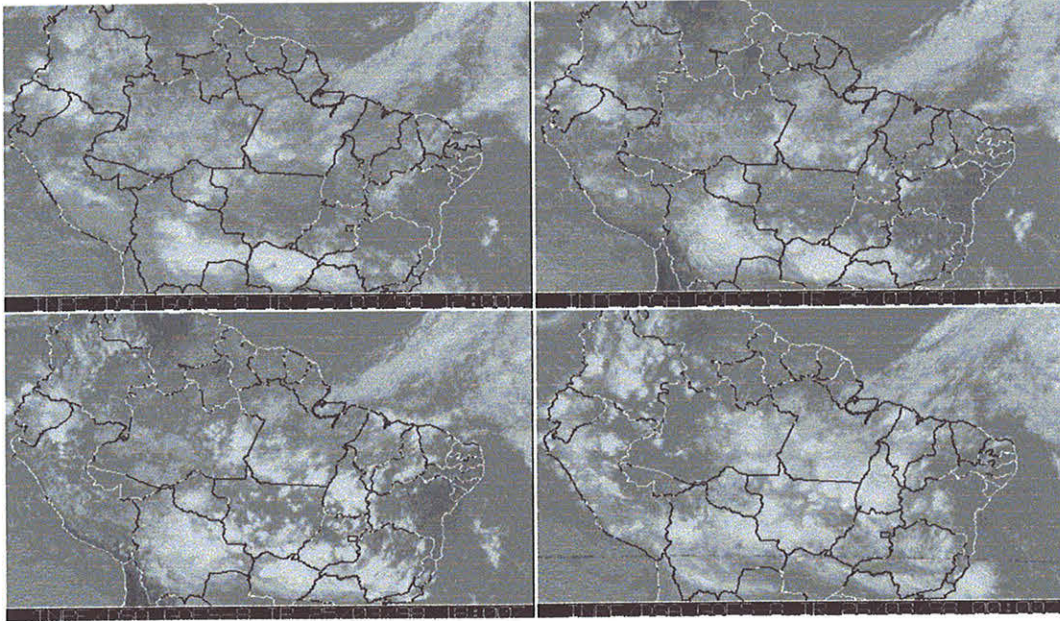


Figura 3.8: Sequência de imagens do satélite GOES-8 no dia 25 de março às 12:00, 15:00 e 18:00 UTC e no dia 26 de março às 00:00 UTC.

rimento. Ao longo do desenvolvimento deste capítulo, durante a discussão dos resultados das medidas de composição da atmosfera em Balbina e no Suriname, os resultados desta simulação serão utilizados sempre que se fizer necessário. Os campos de vento e informações convectivas geradas nesta simulação numérica foram armazenadas para uso do modelo de trajetórias. As trajetórias de parcelas de ar geradas serão apresentadas na seção 3.4, como ferramenta auxiliar na interpretação das medidas de concentrações e composição elementar de aerossóis coletados em Balbina.

Na próxima seção serão apresentados as medidas de parâmetros meteorológicos realizadas em Balbina, durante o período do experimento LBA-CLAIRE. A simulação reproduziu, satisfatoriamente, as medidas observacionais de superfície em Balbina, tais como temperatura, umidade relativa e velocidade do vento. O modelo reproduziu também a seca na região norte da Amazônia.

3.2.3 Balbina: meteorologia local

Em Balbina, durante o experimento CLAIRE, foi operada uma estação meteorológica, pelo “Max Planck Institute for Chemistry”, na qual foram medidas, entre outras variáveis, velocidade e direção do vento, umidade relativa, temperatura e precipitação. As figuras 3.9 e 3.10 apresentam a direção e velocidade do vento, respectivamente, observadas em Balbina, entre os dias 23 de março e 15 de abril de 1998. Durante o período do experimento, os ventos de superfície foram, predominantemente, de sudeste com algumas entradas de nordeste. Durante o dia, as entradas de leste e nordeste foram mais frequentes, em comparação aos períodos noturnos. Além disso, durante a noite, a direção da velocidade do vento esteve com a direção mais frequente de sul, em comparação às medidas diurnas.

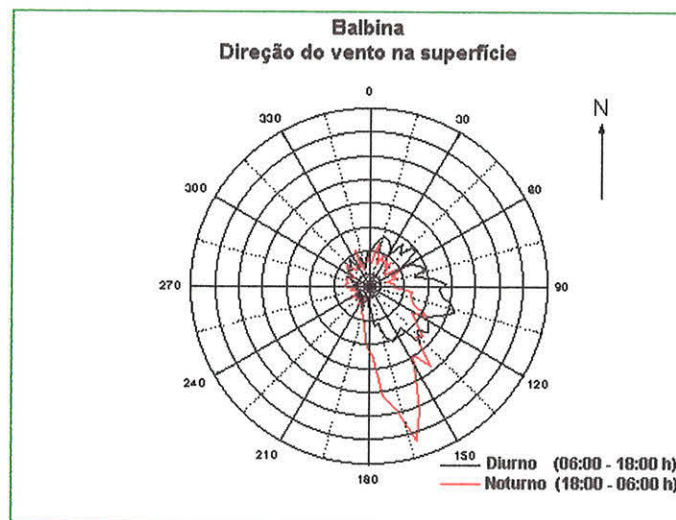


Figura 3.9: Estatística da direção do vento em Balbina, medida local no período de 23 de Março à 15 de abril de 1998.

As variáveis meteorológicas medidas ao nível da superfície em Balbina, confirmam a ocorrência de um episódio, no início do experimento, entre os dias 23 e 28 de março, no qual os ventos de superfícies estiveram mais intensos que o restante do período. A velocidade do vento durante este episódio esteve acima dos valores do restante do período, em média, 32% (durante o dia) e 59% (durante a noite). Não observou-se, entretanto, variação significativa na direção da

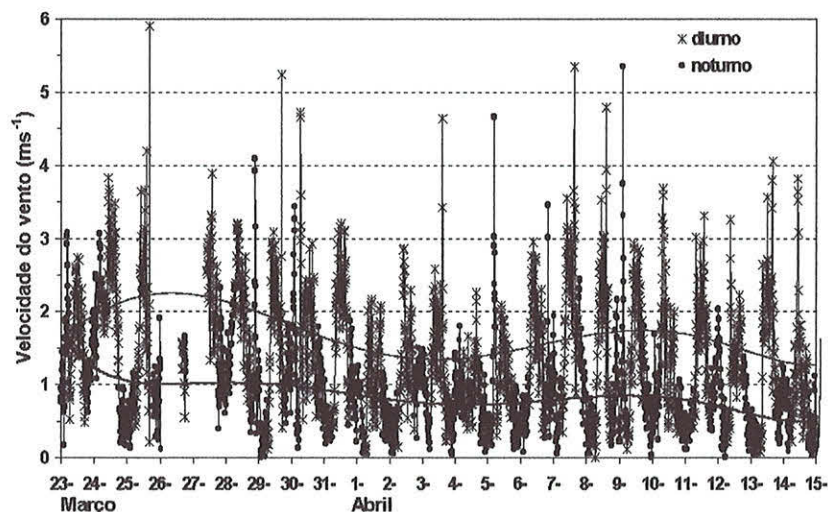


Figura 3.10: Série temporal da velocidade do vento de superfície em Balbina. Os valores noturnos são indicados pelo símbolo (•) e os valores diurnos por (×).

Tabela 3.1: Médias e desvios padrões da velocidade do vento, umidade relativa e temperatura medidos em Balbina, tomadas em dois períodos diferentes.

	23-28/março		29/março-15/abril	
	Dia	Noite	Dia	Noite
Veloc. do vento(m/s)	2,0±0,8	1,2±0,7	1,5±0,8	0,7±0,5
Umidade Rel. (%)	76,1±12,2	92,2±6,5	81,6±13,6	93,8±4,7
Temp.(⁰ C)	32,4±4,4)	27,4±2,6	31,6±4,5	26,7±1,9

velocidade do vento entre os dois períodos. A temperatura e a umidade relativa estiveram ligeiramente acima e abaixo da média do restante do período, respectivamente, não apresentando uma variação tão marcante quanto a velocidade do vento. A tabela 3.1 mostra as médias e desvios padrões da velocidade do vento, umidade relativa e temperatura, tomados neste episódio no início do experimento e no restante do período.

No período de 23 a 28 de março, embora um evento forte de chuva tenha sido observado na noite de 25 para 26 de março, a frequência de precipitação é ligeiramente inferior ao restante do período; chovendo em média a cada dois dias, enquanto que durante o mês de abril ocorrem eventos de chuva praticamente

todos os dias (figura 3.11). A sequência de imagens do satélite GOES-8 “Geostationary Operational Environmental Satellites” (figura 3.8) mostra a evolução da formação do sistema de chuva associado ao forte evento de precipitação registrado na noite de 25 para 26 de março. Embora os níveis de precipitação tenham sido mais baixos durante os últimos dias de março que o foram em abril, não caracterizou-se em Balbina um período de estiagem severa como a que atuou sobre o extremo noroeste da região amazônica, em particular o Estado de Roraima. Estas medidas locais mostram boa concordância com os dados de anomalia de precipitação mostrados anteriormente (observe a localização de Balbina no mapa da figura 3.2).

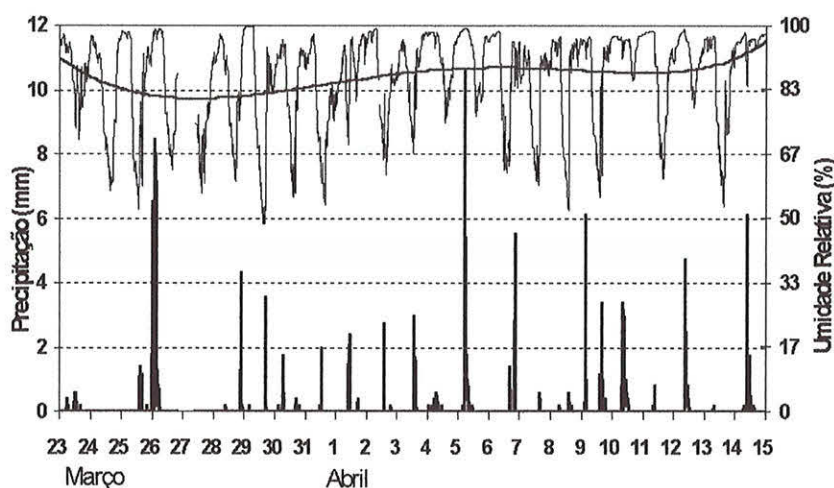


Figura 3.11: *Série temporal da umidade relativa ao nível da superfície e precipitação observadas em Balbina.*

A ocorrência deste episódio, entre os dias 23 e 28 de março em Balbina, com características meteorológicas locais diferenciadas do restante do período, foi uma resultante de uma série de fatores de larga escala. Estas mudanças nas condições meteorológicas se refletiram na composição química da atmosfera Amazônica local. Variações nas concentrações e composições elementares dos aerossóis, coletados ao nível da superfície em Balbina, foram observadas em decorrência das variações no padrão atmosférico.

3.3 Medidas da composição das partículas de aerossóis no experimento LBA-CLAIRE

No período de 23 de março a 14 de abril de 1998, durante o experimento LBA-CLAIRE, foram realizadas em Balbina coletas de amostras de aerossóis nas frações fina ($dp < 2.0 \mu\text{m}$) e grossa ($2.0 < dp < 10 \mu\text{m}$) do material particulado. As amostras foram separadas em amostras diurnas (D), coletadas aproximadamente entre 6:30 e 18:00 horas; e noturnas (N), em geral de 18:00 às 6:30 horas, hora local. As amostragens foram integradas em dois dias consecutivos, amostras diurnas, e duas noites consecutivas, amostras noturnas. As amostras 09D e 09N são exceções, pois foram integradas em três dias e três noites consecutivas, respectivamente. A tabela 3.2 mostra o período de amostragem para cada uma das 22 amostras coletadas no período.

Estas amostras foram submetidas à análise gravimétrica, na qual determinou-se a concentração de massa dos aerossóis. A concentração de “black-carbon” foi obtida através da técnica de refletância de luz e concentrações elementares foram determinadas através da técnica analítica PIXE.

3.3.1 Concentração absoluta dos aerossóis

A figura 3.12 apresenta a concentração de massa de aerossóis por amostra, nas frações fina e grossa. Excluindo-se as amostras de 01 à 05, a média da concentração de massa do material particulado na moda fina foi de $1,6 (\pm 0,4) \mu\text{g}/\text{m}^3$; enquanto que a concentração observada nas amostras excluídas desta média chegou a $10,8 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Na fração grossa do material particulado a média das concentrações, excluindo-se as amostras de 01 a 05, ficou em $5,2 (\pm 3,4) \mu\text{g}/\text{m}^3$; e a concentração máxima observado nas amostras iniciais foi de $21,8 \mu\text{g}/\text{m}^3$. A concentração de massa de aerossóis na fração grossa apresenta uma forte variabilidade diurna no segundo período, que não é evidente nos primeiros dias de amostragem. Para as amostras de 07 a 22 as concentrações observadas nas amostras noturnas são, sistematicamente, superiores às concentrações observadas nas amostras diurnas por um fator, em média, da ordem de 4.

Tabela 3.2: Período de amostragem de cada uma das 22 amostras coletadas em Balbina durante o experimento LBA-CLAIRE. N.A. é o número da amostra.

N.A	Início - Final	N.A.	Início - Final
01D	23/03 06:45 - 23/03 17:53	12N	03/04 18:00 - 04/04 06:22
	24/03 07:03 - 24/03 18:05		04/04 18:10 - 05/04 06:20
01N	23/03 18:41 - 24/03 06:33	14D	05/04 06:49 - 05/04 18:02
	24/03 18:15 - 25/03 06:15		06/04 06:26 - 06/04 18:01
03D	25/03 06:34 - 25/03 18:18	14N	05/04 18:07 - 06/04 06:12
	26/03 10:35 - 26/03 18:01		06/04 18:01 - 07/04 06:13
03N	25/03 18:32 - 26/03 02:15	16D	07/04 06:39 - 07/04 17:51
	26/03 18:02 - 27/03 06:33		08/04 06:40 - 08/04 17:56
05D	27/03 06:48 - 27/03 18:00	16N	07/04 18:01 - 08/04 06:17
	28/03 07:30 - 28/03 18:01		08/04 18:02 - 09/04 06:14
05N	27/03 18:16 - 28/03 06:18	18D	09/04 07:32 - 09/04 17:53
	28/03 18:05 - 28/03 21:30		10/04 06:28 - 10/04 18:01
07D	29/03 06:15 - 29/03 17:51	18N	09/04 18:03 - 10/04 06:18
	30/03 07:12 - 30/03 18:24		10/04 18:07 - 11/04 06:14
07N	29/03 18:03 - 30/03 06:10	20D	11/04 06:32 - 11/04 17:57
	30/03 18:30 - 31/03 06:25		12/04 06:24 - 12/04 17:58
09D	31/03 06:44 - 31/03 17:53	20N	11/04 18:01 - 12/04 06:12
	01/04 06:33 - 01/04 17:57		12/04 18:03 - 13/04 06:11
09N	02/04 07:23 - 02/04 17:51	22D	13/04 07:02 - 13/04 18:00
	31/03 18:05 - 01/04 06:13		14/04 06:38 - 14/04 18:00
12D	01/04 18:03 - 02/04 06:12	22N	13/04 18:00 - 14/04 06:19
	02/04 18:01 - 03/04 06:12		14/04 18:00 - 15/04 06:06
	03/04 06:38 - 03/04 17:53		
	04/04 06:36 - 04/04 18:04		

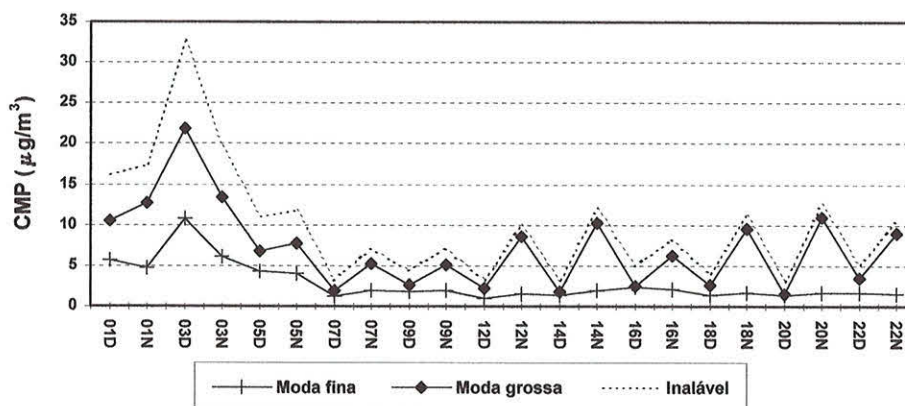


Figura 3.12: Concentração de massa do material particulado, nas frações fina e grossa, por amostra.

A fração grossa de aerossóis é dominante em todas as amostras coletadas. A figura 3.13 apresenta o gráfico da razão de massa do particulado na fração fina para a massa do particulado total. Para as amostras de 01 a 05 apenas 36% e 31% dos aerossóis estão na fração fina nas amostras diurnas e noturnas, respectivamente. Durante o período de coleta das amostras 07 a 22 a fração grossa continua sendo dominante, com a diferença que a variabilidade diurna passa a ser mais pronunciada, a fração fina contabiliza 39% e 19% dos aerossóis durante o dia e a noite, respectivamente .

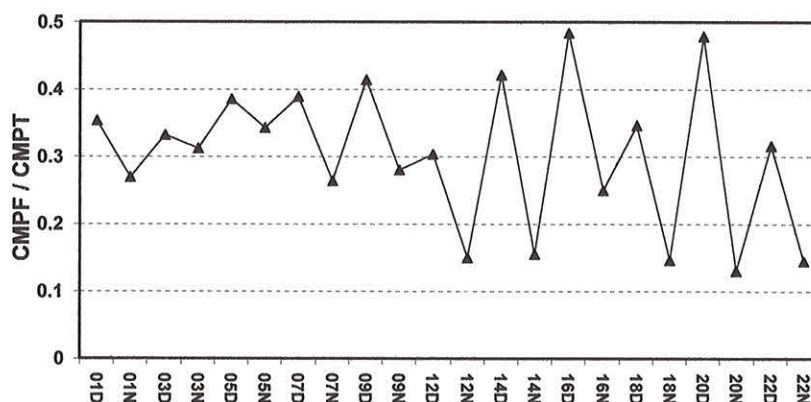


Figura 3.13: Razão da concentração da massa do material particulado na fração fina para a concentração da massa do material particulado total.

Afim de simplificar a notação na discussão a seguir designaremos o período de coleta das amostras de 01 a 05, incluindo amostras noturnas e diurnas, por período I (ou episódio I); e o período de coletas das amostras 07 a 22, novamente incluindo amostras noturnas e diurnas, por período II.

3.3.2 Composição elementar dos aerossóis detectada pela análise PIXE

Os seguintes elementos foram detectados e estiveram acima do limite de detecção em mais de 50% das amostras analisadas pela técnica PIXE:

- Moda fina: Na, Al, Si, P(77%), S, Cl, K, Ca, Sc(95%), Ti(91%), V, Mn, Fe, Co(82%), Zn(73%), I, La(59%), Sm(68%), Eu(91%).
- Moda grossa: Na, Mg(54%), Al, Si, P, S, Cl, K, Ca, Sc, Ti, V(95%), Mn, Fe, Co(77%), Zn(95%), Br(73%), I(95%), La(54%), Sm(54%), Eu(86%), Th(54%).

Os números percentuais a frente de alguns elementos se referem ao número de amostras nas quais os mesmos foram detectados, os demais elementos que aparecem na listagem acima foram detectados em 100% das amostras.

A figura 3.14 apresenta a participação percentual dos elementos inorgânicos ($Z \geq 11$) em relação à massa total do particulado. O restante da massa é composta por elementos leves, compostos orgânicos e água, não detectáveis através das técnicas analíticas empregadas. Este percentual ($\sum CE/CMP$), tanto na fração fina quanto na fração grossa do material particulado, apresentou um padrão bastante diferenciado nas amostras de 01 a 05 e nas amostras de 07 a 22 (figura 3.14). No período inicial, este percentual foi em média de 37% e 33% nas frações fina e grossa, respectivamente. Nas amostras 07-22 este percentual variou de 7 a 23%, indicando maior presença de compostos orgânicos de origem biogênica para as amostras 07-22.

Estas diferenças observadas na participação percentual dos elementos inorgânicos em relação à massa total do particulado para os dois grupos de amostras, sugerem aerossóis e fontes diferentes para os dois períodos. Em amostras de aerossóis

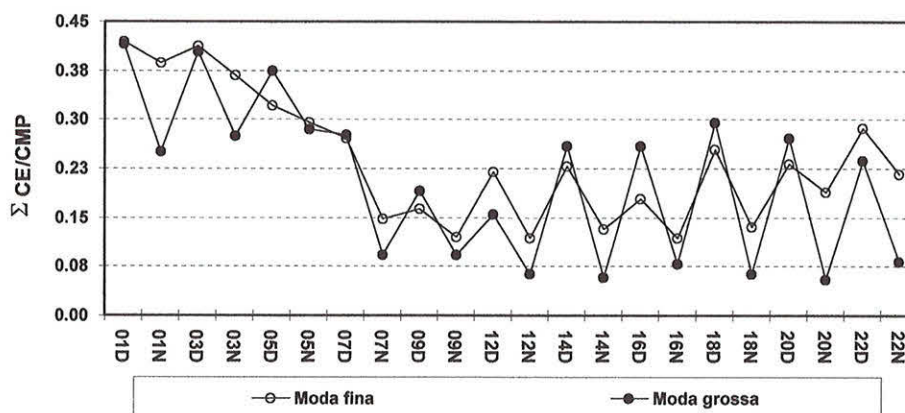


Figura 3.14: Participação percentual dos elementos inorgânicos ($Z \geq 11$) em relação à massa total do material particulado, nas frações fina e grossa do material particulado, detectado pelo método PIXE, por amostra.

coletados em Alta Floresta (MT) [Echalar *et al.*, 1998], a participação de material inorgânico é da ordem de 15 a 20% da massa total. A variabilidade diurna observada, notadamente para as amostras 07-22, sugere também, que processos distintos de produção e/ou crescimento de aerossóis tenham predominado durante os períodos diurnos e noturnos. Durante o período noturno observa-se um nítido enriquecimento de material orgânico, e/ou da ocorrência de processos de condensação de vapor d'água na superfície de partículas de aerossóis pré-existentes. A matéria orgânica e a água não são detectáveis pela análise PIXE.

A figura 3.15 apresenta a razão das médias das concentrações elementares, de "black-carbon" e de massa do material particulado total observadas durante o episódio I em relação as médias das concentrações observadas durante o período II. É possível observarmos dois grupos de elementos nas figuras 3.15. Os elementos minerais (Al, Si, Ca, Sc, Ti, Mn e Fe) aparecem enriquecidos no episódio I, por fatores de 6 a 20, para ambas as frações, fina e grossa. O sódio, de origem marinha, também aparece enriquecido. Os elementos associados a aerossóis biogênicos, como o P, S, Zn, I e parte do K, aparecem pouco enriquecidos.

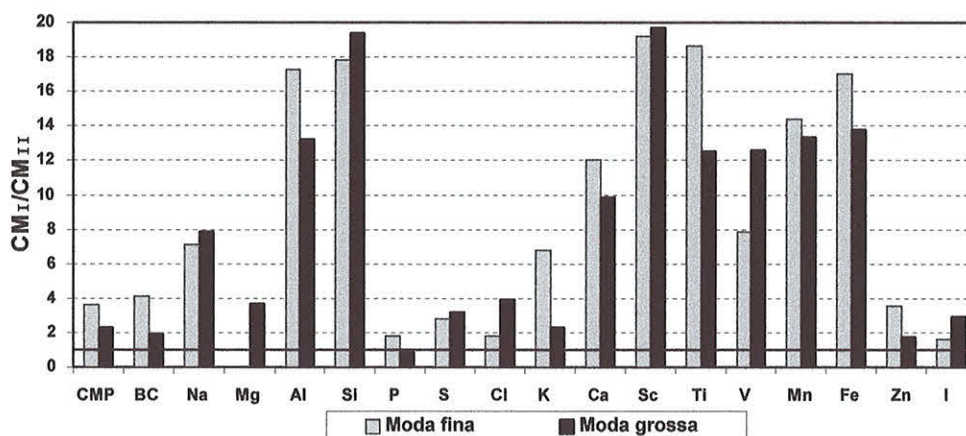


Figura 3.15: Razão das concentrações médias observadas durante o episódio I para as concentrações medidas durante o período II, para as frações fina e grossa do aerossol.

Elementos minerais associados ao componente solo

Na figura 3.16 são apresentados os valores absolutos das concentrações de Si, Al, Fe e Ca, nas frações fina e grossa, do material particulado. Durante o episódio II estas concentrações apresentaram, em geral, variabilidade diurna, com concentrações diurnas mais altas que as noturnas (veja o detalhe ampliado na figura 3.16). Indicando que, durante o período II, a principal fonte destes elementos foi solo em suspensão.

Elementos associados ao componente marinho

O Na, Cl e S também apresentaram as concentrações absolutas enriquecidas durante o episódio I em relação ao período II (veja a figura 3.17). Embora o aumento relativo entre os dois períodos tenha sido menor para estes elementos do que o foram para os elementos traçadores de solo. Em média, as concentrações de Na, Cl e S durante o episódio I foram de 2 à 8 vezes superiores às concentrações do período II. O Na e Cl são elementos majoritários na assinatura de sal marinho (tabela 3.3), e o S, principalmente na fração grossa, é também associado à aerossóis de origem marinha.

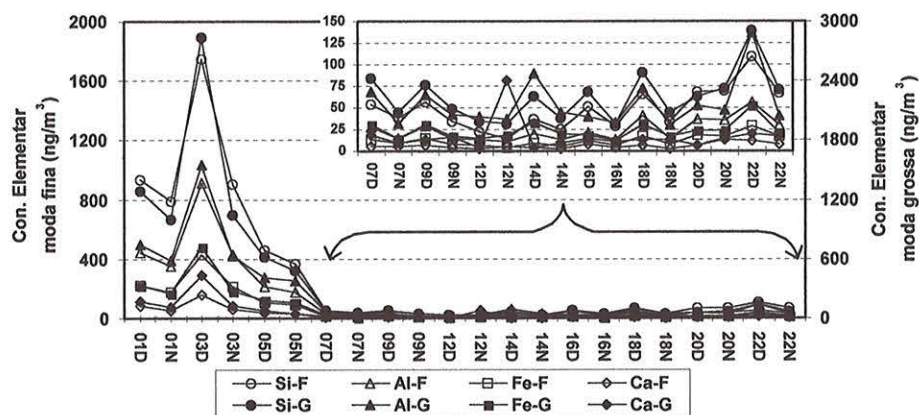


Figura 3.16: Concentração de massa dos elementos Si, Al, Fe e Ca, para cada amostra. No detalhe é colocada a ampliação do mesmo gráfico no setor de amostras correspondentes ao período II.

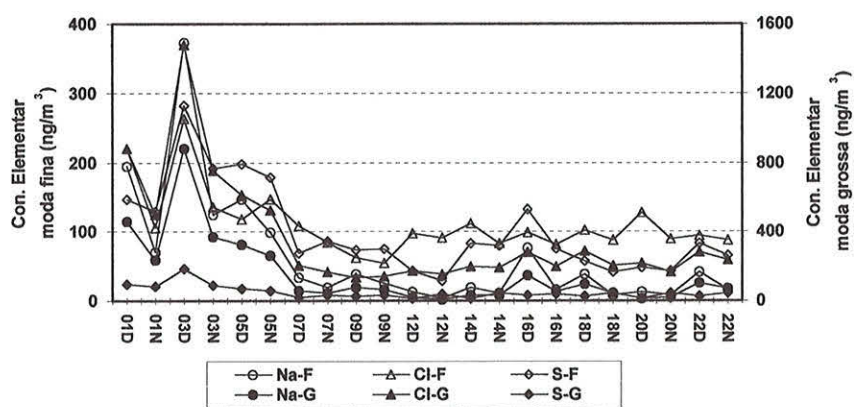


Figura 3.17: Concentração de massa dos elementos Na, Cl e S, por amostra.

Tabela 3.3: Abundância média (ppm em massa) dos elementos majoritários na composição do solo. E composição do sal marinho (elementos majoritários em porcentagem de massa), baseado na composição da água do mar. Adaptado de Seinfeld e Pandis [1997].

Elemento	Composição do solo	Elemento	Composição do sal marinho
Si	330000	Cl	55,0
Al	71300	Na	30,6
Fe	38000	SO ₄ ²⁻	7,7
Ca	13700	Mg	3,7
Mg	6300	Ca	1,2
Na	6300	K	1,1
K	13600	Br	0,2
Ti	4600		
Mn	850		
Cr	200		
V	100		
Co	8		

O Cl e o Na, embora sejam majoritariamente de origem marinha, possuem outras possíveis fontes. O Cl participa no aerossol biogênico natural e também, em pequenas quantidades, em partículas emitidas em queimadas. O Na também é presente na composição de solo (Apêndice D).

Afim de avaliar as frações de Cl e Na associados ao componente marinho assume-se que:

$$[Na] = [Na]_{solo} + [Na]_{mar} \quad (3.1)$$

$$[Cl] = [Cl]_{mar} + [Cl]_x \quad (3.2)$$

$$[Fe] = [Fe]_{solo} \quad (3.3)$$

Ou seja, considera-se que o Na possui contribuições marinha e de solo, a única fonte de Fe é o solo e que o Cl é uma soma da contribuição marinha e de outras contribuições, a qual denomina-se apenas por x , e cuja origem tanto pode ser emissões biogênicas quanto emissões de queimadas.

Utilizando as assinaturas de solo e de água do mar apresentadas na tabela 3.3, tem-se que a razão dos componentes de solo do Na e do Fe, o qual será utilizado como elemento traçador de solo, e dos componentes marinho do Na e do Cl, são constantes. A saber:

$$\frac{[Na]_{solo}}{[Fe]_{solo}} = 0,17 \quad \text{e} \quad \frac{[Cl]_{mar}}{[Na]_{mar}} = 1,80 \quad (3.4)$$

O gráfico apresentado na figura 3.18 mostra a série, por amostra, das razões calculadas de $[Cl]_x/[Cl]$ e $[Na]_{solo}/[Na]$ e das concentrações elementares totais medidas de Na e Cl ao longo do período de amostragem. Observa-se que existe uma grande variabilidade no peso do componente marinho para ambos os elementos. Durante o episódio I esta contribuição fica entre 70 e 80% para o Cl e entre 80 e 90% para o Na. No segundo período ocorrem eventos em que a contribuição marinha chega a ser reduzida a uma fração entre 10 e 20% para o Cl e entre 60 e 80% para o Na. Estes resultados sugerem um componente do Cl de origem biogênico e eventuais e pequenas queimadas locais.

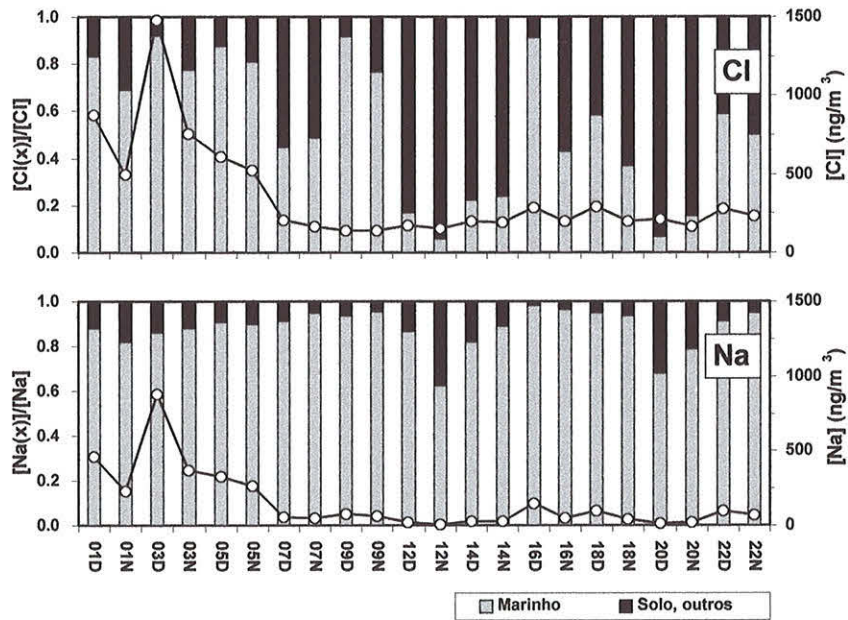


Figura 3.18: Série temporal das concentrações totais medidas de Cl e Na (gráficos linha) e frações de Cl e Na associadas ao componente marinho, de solo e outros (gráficos barra).

Elementos associados ao componente biogênico

A figura 3.19 mostra as concentrações, por amostra, de P e de K nas frações fina e grossa do material particulado. As concentrações de P e K foram superiores durante o episódio I em relação ao período II, mais acentuadamente na fração fina. Na moda grossa a forte variabilidade diurna, mais evidente durante o período II, evidencia uma intensa produção noturna de aerossóis biogênicos.

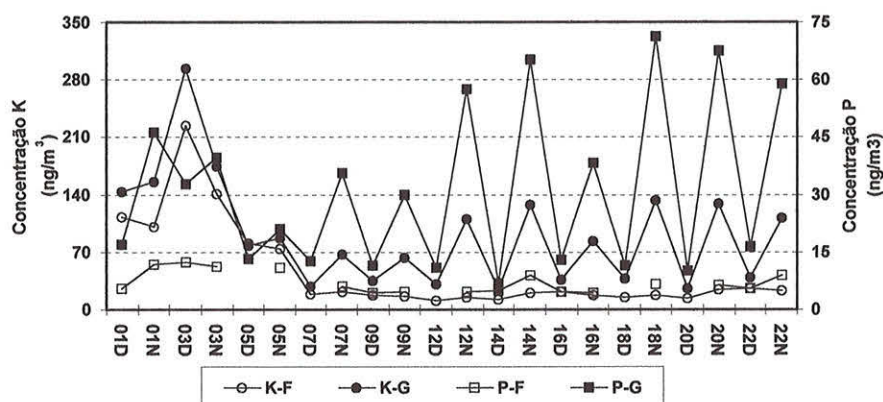


Figura 3.19: Concentração de massa dos elementos K e P, por amostra.

Na amostra 3D (quando foram observados os picos nas concentrações de todos os elementos) a concentração de P, por exemplo, foi de $12,5 \text{ ng/m}^3$ e $32,67 \text{ ng/m}^3$, nas frações fina e grossa do material particulado, respectivamente. E, durante o episódio II, as concentrações diurnas do elemento P foram $4,8 \pm 0,4 \text{ ng/m}^3$ e $14,6 \pm 4,0 \text{ ng/m}^3$, nas frações fina e grossa do material particulado, respectivamente. E as concentrações noturnas deste mesmo elemento, durante o episódio II, foram $6,3 \pm 1,8 \text{ ng/m}^3$ e $53,0 \pm 16,0 \text{ ng/m}^3$, nas frações fina e grossa do material particulado, respectivamente.

O crescimento observado na concentração do elemento P durante o episódio I é discreto, em comparação à outros elementos (figura 3.15), e menos evidente em decorrência da forte variabilidade diurna de sua concentração. Entretanto, este resultado é importante devido ao fato da deficiência de P no solo da Amazônia ser um fator limitante no crescimento da floresta. Embora a ciclagem do fósforo seja crítica para a floresta, não existem registros anteriores da observação do componente atmosférico no ciclo deste nutriente em áreas de floresta tropical. A

observação, neste trabalho, de uma associação majoritária do fósforo ao particulado grosso, e do fato deste elemento apresentar altas concentrações no período noturno, com condições atmosféricas estáveis, evidencia que a floresta realiza esta ciclagem atmosférica localmente.

3.3.3 Origem das massas de ar em Balbina durante o experimento LBA-CLAIRE

O enriquecimento de aerossóis de solo observados em Balbina, não é esperado durante a estação chuvosa na região Amazônica. Os altos índices de umidade relativa e precipitação suprimem fortemente as fontes locais de aerossóis de solo. A cobertura da floresta não permite que aerossóis de solo estejam expostos e possam ser ressuspensos para a atmosfera. Conforme foi mostrado na seção 3.2, mesmo sob a influência do ENSO, em Balbina os índices de umidade relativa e precipitação se mantiveram dentro dos padrões climatológicos da estação. Uma explicação plausível para o enriquecimento observado nas concentrações elementares seria a de que massas de ar vindas de noroeste, onde estava havendo uma severa estiagem com ocorrências de queimadas, teriam alcançado Balbina. Entretanto, os ventos de superfície observados em Balbina foram, predominantemente, de sudeste, sendo raras e ocasionais as entradas de massas de ar de noroeste (figura 3.9). Uma análise na série temporal da direção do vento de superfície não mostrou uma direção predominante no período I. O parâmetro meteorológico local que apresentou maior diferença entre os dois períodos foi a intensidade do vento, com ventos mais fortes durante o período I (figura 3.10 e tabela 3.1).

Com respeito à situação meteorológica de larga escala (figuras 3.6 e 3.7) também não há indícios que entradas de massas de ar provenientes de Roraima tenham sido importantes durante o período I. Afim de avaliar a origem das massas de ar, retro-trajetórias de parcelas de ar com 8 dias de integração foram calculadas a partir de Balbina em várias altitudes durante todo o período de amostragem. Estas trajetórias mostram que as massas de ar em Balbina, no período, originaram-se na costa noroeste da África e oceano Atlântico. A figura 3.20 mostra um exemplo destas retro-trajetórias iniciadas no dia 05 de abril a

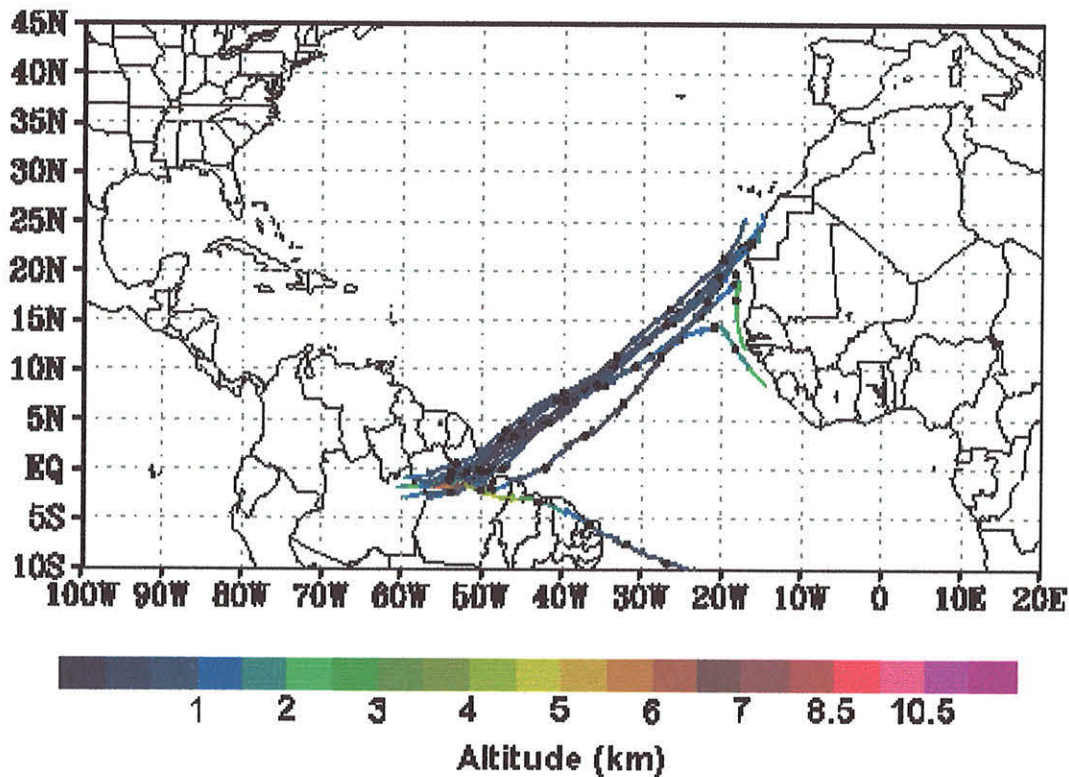


Figura 3.20: Retro-trajetórias com 8 dias de integração iniciadas em Balbina no dia 05 de abril de 1998, a partir de 1750 metros de altitude. A escala de cores indica a altitude (em km) das parcelas de ar ao longo da integração.

partir de 1750 metros de altitude. O padrão mostrado na figura 3.20 foi observado durante todo o período de amostragem e é similar para retro-trajetórias iniciadas entre 250 e 3000 metros de altitude. A variabilidade mais marcante observada no padrão das retro-trajetórias refere-se à estrutura vertical.

Uma análise estatística destas retro-trajetórias, tanto quanto a distribuição geográfica quanto a distribuição vertical das posições das parcelas de ar ao longo do transporte, será apresentada na seção 3.4. A análise de trajetórias, em conjunção com as medidas locais em Balbina, evidenciam que, durante episódio I, ocorreram penetração e deposição de aerossóis minerais provenientes do deserto do Saara na bacia Amazônica. Entretanto, antes da apresentação da análise de trajetórias faz-se necessária uma análise detalhada da relação mútua existente entre as concentrações elementares, concentrações do material particulado

e “black-carbon”, e parâmetros meteorológicos locais.

3.3.4 Relação entre as concentrações elementares dos aerossóis em Balbina e a meteorologia local

Análise de grupos

O número de amostras coletadas é limitado e não permite uma análise estatística multivariada completa. Entretanto, análises estatísticas qualitativas, são possíveis e importantes. A análise de grupos¹ foi aplicada às análises elementares das amostras coletadas em Balbina. Este método analítico permite agrupar variáveis (elementos traços, material particulado, “black-carbon” e parâmetros meteorológicos) ou amostras de acordo com a similaridade (ou dissimilaridade) existente entre elas. Tal agrupamento é baseado em conceitos essencialmente geométricos, onde são calculadas as distâncias entre os pontos, considerando-se a distância quadrática euclidiana, definida como:

$$d_{ij} = \sum_{k=1}^N (c_{ik} - c_{jk})^2, \quad (3.5)$$

onde N é o número de amostras no caso de agrupamento por variáveis, ou o número de variáveis no caso de agrupamento por casos.

Na apresentação dos resultados da análise de grupos serão utilizados dendogramas, que são gráficos onde são apresentadas as distâncias entre os diversos grupos formados. O eixo vertical indica as variáveis ou casos agrupados e o eixo horizontal indica as distâncias (similaridades) entre os pontos ou grupos em questão.

Análise de grupos considerando o agrupamento de amostras

Aplicando-se a análise de grupos considerando o agrupamento de casos (amostras), obteve-se os dendogramas da figura 3.21, considerando-se separadamente as amostras que coletaram as frações (a) fina e (b) grossa do material particulado. Em ambos os casos, frações fina e grossa, houve a especificação dos mesmos

¹Uma descrição detalhada deste método analítico e suas aplicações em concentrações elementares em amostras de aerossóis podem ser encontradas em Echalar [1991] e Yamasoe [1994].

quatro grupos. Ou seja: grupo (S-Saara), amostras (01D, 01N, 03N, 05D e 05N), coletadas durante o anteriormente denominado episódio Saara; grupo (PS-Pico do Episódio Saara), amostra 03D, na qual foi observado o valor máximo de concentração de partículas de aerossóis; grupo (D-diurno), amostras diurnas coletadas durante o período II; e grupo (N-noturno), amostras noturnas coletadas durante o período II. Tendo, portanto, havido uma separação clara das amostras coletadas durante o episódio Saara e das amostras coletadas durante os períodos noturno e diurno.

Análise de grupos considerando o agrupamento de variáveis

A análise de grupos por variáveis foi realizada considerando-se dois espaços multidimensionais distintos. Em um primeiro momento trabalhou-se em um espaço multidimensional com todas as amostras e, em um segundo momento, foram excluídas deste espaço as amostras coletadas durante o episódio Saara, seguindo a indicação da análise de grupos por amostras. O resultado da análise de grupos para o agrupamento de variáveis é mostrado nos dendogramas das figuras 3.22 e 3.23 para as frações fina e grossa dos aerossóis, respectivamente.

Fração fina dos aerossóis: Considerando-se todas as amostras da fração fina (figura 3.22(a)), o material particulado, “black-carbon” e todos os elementos traços, com exceção do elemento I, aparecem juntos associados ao grupo (s-m-b). A inclusão do episódio Saara na análise impossibilita a separação de grupos, devido ao fato que durante este período todas as concentrações elementares aumentaram. O elemento I aparece associado à umidade relativa (UR) e direção do vento no grupo (3).

Ainda na fração fina, excluindo-se as amostras do período Saara o agrupamento é distinto do observado anteriormente (figura 3.22(b)). Observou-se, neste caso, a formação dos seguintes grupos na fração fina: o grupo (s) que associa elementos traçadores de solo, o grupo (q) que associa o Cl e o BC e que provavelmente está relacionado à emissões de queimadas na região, grupo (m) relativo ao componente marinho, e o grupo (b) no qual o P aparece associado apenas à umidade relativa e direção do vento.

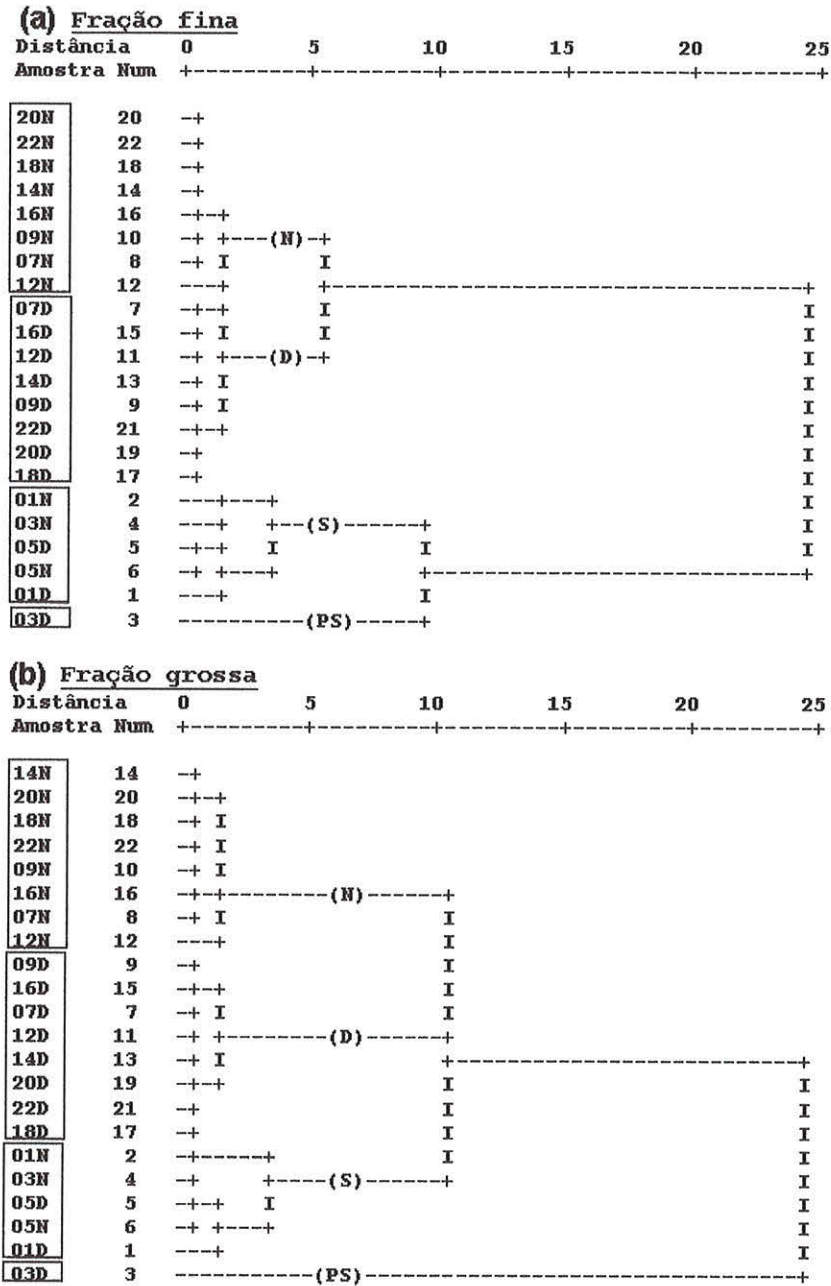


Figura 3.21: Dendogramas obtidos a partir da análise de grupos considerando o agrupamento de casos (amostras) nas frações (a) fina e (b) grossa do material particulado. A nomenclatura dos grupos relaciona-os com o período de coleta das amostras: D-Diurno, N-Noturno, S-Episódio Saara e PS-Pico do Episódio Saara.

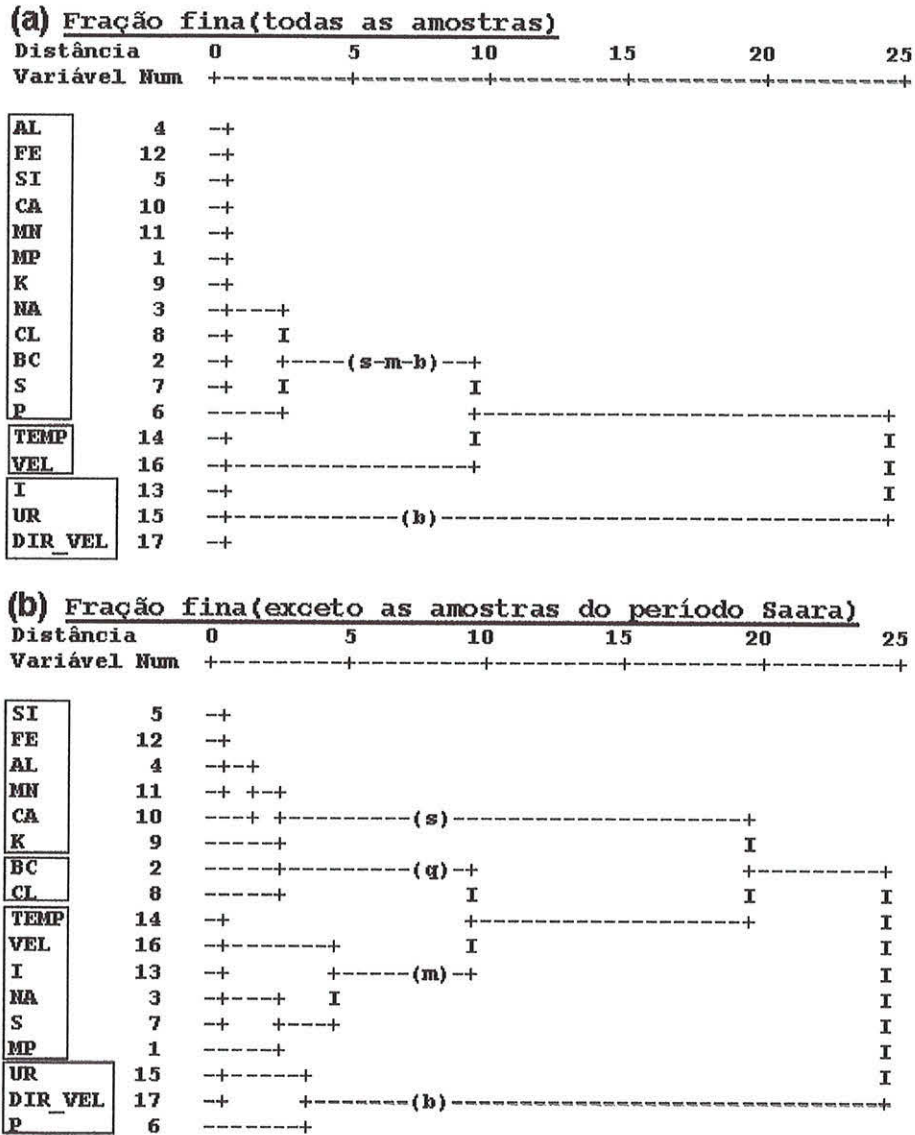


Figura 3.22: Dendogramas obtidos a partir da análise de grupos considerando o agrupamento dos elementos traços medidos na fração fina do material particulado: (a) considerando todas as amostras coletadas e (b) excluindo as amostras do período Saara. A nomenclatura dos grupos relaciona-os com o componente do particulado: s-solo, m-marinho, b-biogênico e q-queimadas.

Fração grossa dos aerossóis: As figuras 3.23 (a) e (b) mostram os resultados das análises de grupos por variáveis aplicadas as amostras na fração grossa dos aerossóis. Neste caso, ao se considerar o espaço formado por todas as amostras, obteve-se o seguinte agrupamento: grupo (s-m-b) composto do material particulado, “black-carbon”, e todos os elementos traços, com exceção do elemento P; e grupo (b) no qual novamente o P aparece sozinho associado apenas à umidade relativa e direção do vento.

Ainda na fração grossa, excluindo-se as amostras do período Saara: surge o grupo majoritário (b) no qual o elemento P aparece próximo ao material particulado, “black-carbon” e outros elementos indicadores de emissão biogênica; o grupo que anteriormente aglomerava traçadores de solo e marinho aparece agora desmembrado em dois grupos distintos, o grupo (m) associado ao componente marinho, velocidade do vento e temperatura e o grupo (s) composto de elementos traçadores de solo, provavelmente de origem local.

O comportamento do I, na fração fina, e do P, na fração grossa, é diferente dos demais elementos. O aumento nas concentrações destes elementos durante o episódio Saara foi irrisório frente ao enriquecimento observado para todos os outros elementos durante o mesmo período. Indicando que o I, na fração fina, e o P, na fração grossa, são emitidos localmente.

A análise de grupos apresentada permitiu uma identificação do episódio Saara concordante e complementar às outras análises abordadas neste trabalho. Um comportamento diferenciado dos elementos traços entre os dois períodos foi identificado. A separação do episódio Saara ficou evidente tanto na análise de grupos, considerando o agrupamento de amostras, como também através da comparação das análises de grupos, considerando o agrupamento de variáveis, para o período completo e excluindo as amostras do episódio Saara.

Associações dos elementos com a meteorologia local

Aerossóis minerais e marinhos: A participação elementar do Al, Si, Ca, Ti e Fe na massa do aerossol apresenta, principalmente na fração grossa, uma correlação positiva com a velocidade do vento medido na superfície, excetuando as amostras do período Saara (figura 3.24 (a)). Reforçando as evidências de que houve uma fonte externa de elementos traçadores de solo durante os primeiros dias de

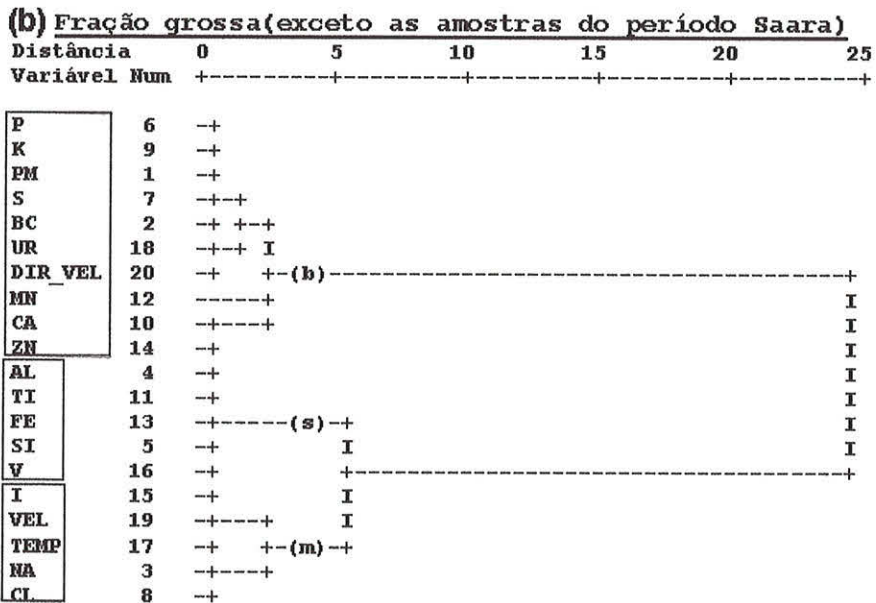
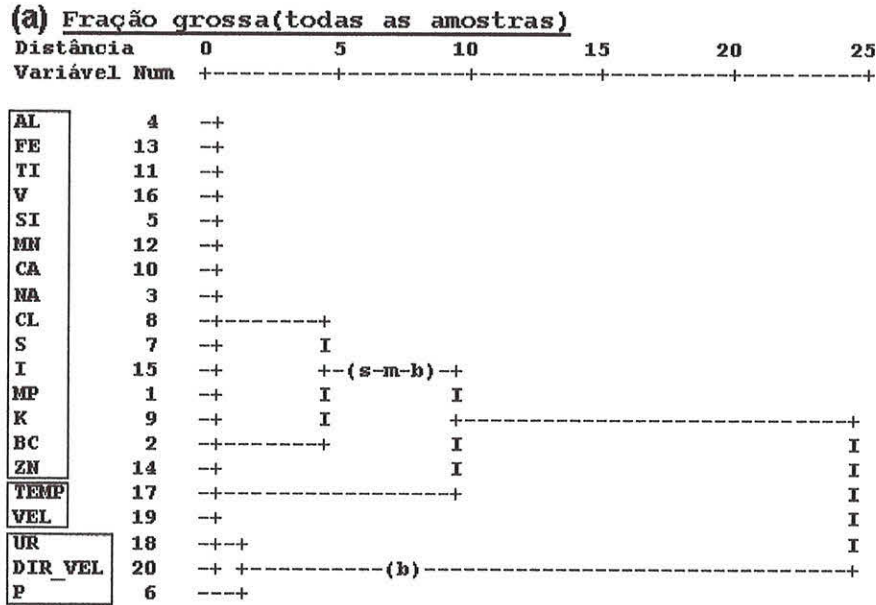


Figura 3.23: Dendogramas obtidos a partir da análise de grupos considerando o agrupamento dos elementos traços medidos na fração grossa do material particulado: (a) considerando todas as amostras coletadas e (b) excluindo as amostras do período Saara. A nomenclatura dos grupos relaciona-os com o componente do particulado: s-solo, m-marinho, b-biogênico e q-queimadas.

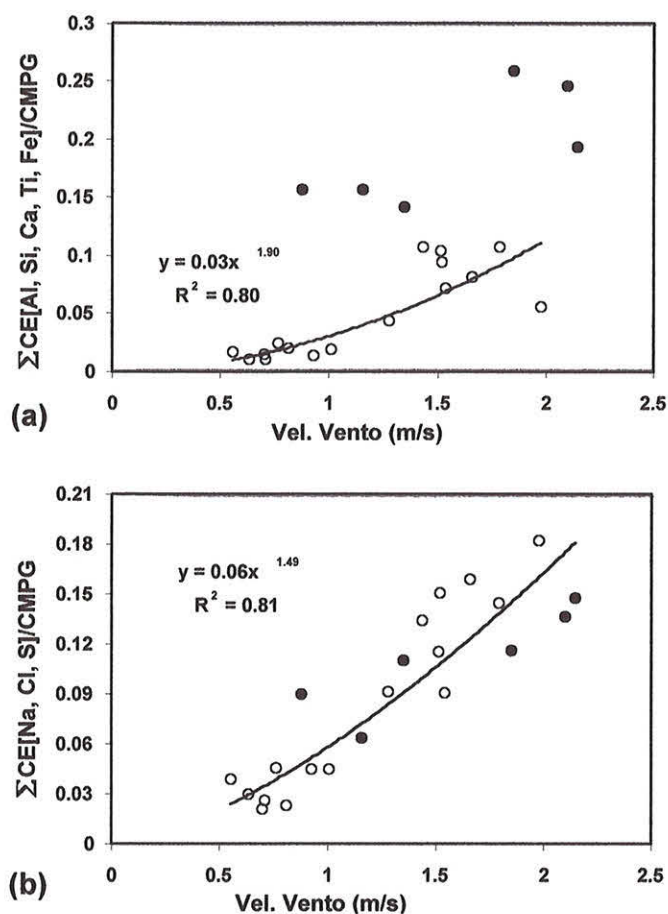


Figura 3.24: (a) Razão da soma das concentrações elementares de [Al, Si, Ca, Ti e Fe] na fração grossa para a concentração de massa do material particulado na fração grossa versus velocidade do vento medido na superfície. (b) O mesmo para [Na, Cl e S]. O símbolo (\bullet) foi utilizado para designar as amostras 01-05 (episódio I) e o símbolo (\circ) para as amostras 07-22 (período II). Em (a) o ajuste exclui as amostras do episódio Saara e em (b) são consideradas todas as amostras no ajuste.

amostragem, o qual identificamos como episódio Saara. No restante do período, as concentrações elementares minerais medidas são relacionadas a partículas de aerossóis de solo, predominantemente, local ou regional. Por outro lado, a mesma razão para os elementos Na, S e Cl, na fração grossa, apresenta correlação positiva com a velocidade do vento durante todo o período de amostragem, inclusive durante o episódio Saara (figura 3.24 (b)), indicando uma mesma fonte para estes elementos durante ambos os períodos.

Aerossóis biogênicos: Na fração grossa, excluindo-se as amostras do episódio Saara, evidencia-se o mecanismo de produção biogênica de aerossóis, no qual o aumento na concentração do material particulado na fração grossa envolve também um crescimento das concentrações de K, S, P e “black-carbon”.

As figuras 3.25 (a) e (b) mostram os gráficos da concentração do material particulado grosso versus temperatura e umidade relativa, respectivamente. Excluindo-se as amostras do período Saara (representadas na figura por círculos preenchidos), o material particulado apresenta uma correlação negativa com a temperatura e positiva com a umidade relativa. De maneira geral, os elementos biogênicos K e P, na fração grossa, obedecem ao mesmo comportamento e apresentam também correlações positivas e negativas com a umidade relativa e temperatura, respectivamente, e conseqüentemente apresentam uma correlação mútua. O elemento S e o “black-carbon”, embora apresentem correlação com a massa do particulado total na fração grossa, não se correlacionam com a umidade relativa e temperatura.

Este aumento na concentração do material particulado pode, em parte, estar relacionado com a evolução da camada de mistura. Durante a noite, temperaturas mais baixas e maior umidade resultam em menor mistura vertical e conseqüentemente em concentrações mais altas de material particulado. Entretanto, dois fatores sugerem que este efeito não seja dominante. Primeiro, a concentração da massa do material particulado, na fração fina, não apresenta correlação alguma com a temperatura e umidade relativa (gráfico não apresentado). E segundo, observa-se também um aumento relativo da concentração da massa do material particulado, na fração grossa, em relação a massa do material particulado total durante a noite. A razão $[MPG]/[MPT]$ obedece relações similares as observadas

na figura 3.25 para a [MPG].

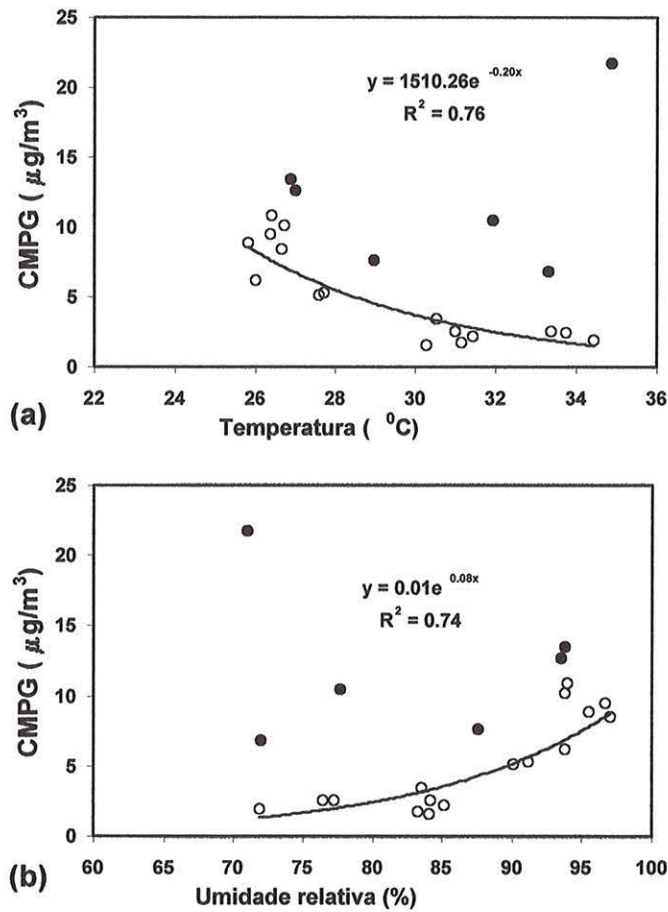


Figura 3.25: Concentração de massa do material particulado grosso versus (a) temperatura e (b) umidade relativa medidas na superfície. O símbolo (●) foi utilizado para designar as amostras referente ao episódio I (episódio Saara) e o símbolo (○) para as amostras do período II. O ajuste exclui as amostras do episódio Saara.

A observação, neste trabalho, do aumento da fração grossa do material particulado em relação a fração fina, em função da umidade relativa, é concordante com medidas de propriedades ópticas das partículas de aerossóis biogênicos da Amazônia durante o experimento LBA-CLAIRE. Martins [1999] observou um crescimento, em tamanho, das partículas de aerossóis biogênicos, com o aumento da umidade relativa, e sugeriu que os aerossóis biogênicos são higroscópicos e,

portanto, apresentam crescimento em função da absorção de água do ambiente. Durante a noite, os altos índices de umidade relativa (figura 3.11), proporcionam condições para o crescimento das partículas biogênicas da moda fina, o suficiente para serem coletadas na fração grossa.

Sob alguns aspectos, o elemento P apresenta um comportamento diferenciado dos demais traçadores de emissões biogênicas. Na fração grossa, apenas as concentrações diurnas de P e “black carbon” apresentam correlação entre si (figura 3.26). Embora, ambos, fósforo e “black-carbon” estejam presentes nos aerossóis biogênicos, é evidente a ocorrência de um mecanismo de emissão noturna diferenciado para o fósforo. E também, ao contrário do K, S e “black-carbon”, o P apresentou correlação com o material particulado grosso apenas quando excluídas as amostras do episódio Saara (figura 3.27). Indicando que, diferentemente dos outros elementos medidos, a contribuição do transporte do Saara para o fósforo na atmosfera Amazônica é insignificante em comparação a ciclagem diurna deste elemento.

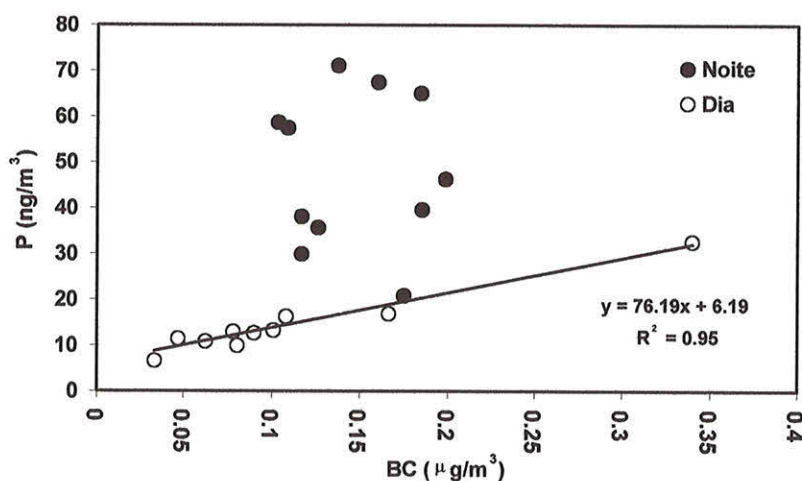


Figura 3.26: Concentração do P versus concentração de “black-carbon”, ambos na fração grossa. O ajuste exclui as amostras noturnas.

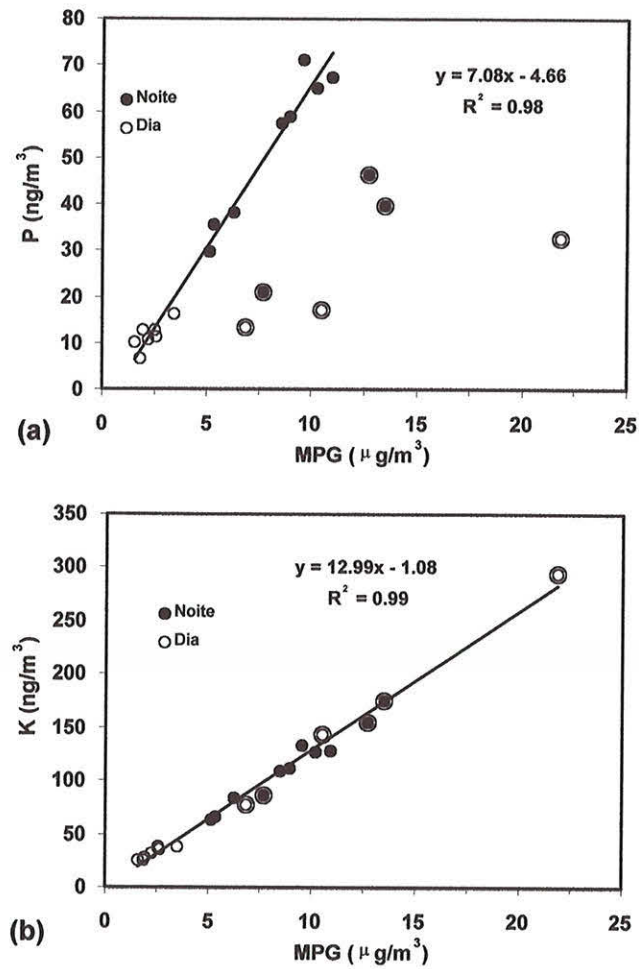


Figura 3.27: Concentração de massa do (a) P e (b) K versus concentração de massa do material particulado grosso. O símbolo (●) foi utilizado para designar as amostras noturnas e o símbolo (○) para as amostras diurnas. As amostras referentes ao episódio I (episódio Saara) são salientadas por círculos duplos.

3.4 Análise de trajetórias de parcelas de ar

Uma análise estatística de trajetórias baseada na simulação numérica do período do experimento, apresentada na seção 3.2, foi realizada com a finalidade de se avaliar a origem das massas de ar sobre Balbina durante o período de coleta das amostras de aerossóis. As trajetórias que serão aqui apresentadas são cinemáticas tri-dimensionais convectivas e foram determinadas pelo modelo de trajetórias descrito com detalhes na seção 2.2.

Retro-trajetórias de parcelas de ar com 8 dias de integração foram iniciadas em Balbina ao longo do período de coleta das amostras. Foram considerados para a inicialização das trajetórias, 12 níveis verticais igualmente espaçados entre 250 e 3000 metros acima da superfície, sendo que um grupamento de 5 trajetórias distribuídas em torno da posição geográfica de Balbina, por nível vertical, foi calculado. Assim, cada grupo compreende um total de 60 trajetórias. Quatro grupos de trajetórias foram inicializados diariamente, às 04:00, 08:00, 16:00 e 20:00 UTC, a partir do dia 23 de março de 1998, dia em que foi coletada a primeira amostra.

Uma estatística das posições das parcelas de ar ao longo dos 8 dias de integração foi realizada. Para cada amostra coletada foram considerados 4 grupos de trajetórias. Por exemplo, para a amostra 03D, a qual foi exposta durante os períodos diurnos dos dias 25 e 26 de março (tabela 3.1), foram considerados os grupos de trajetórias inicializados nestes dias às 16:00 e 20:00 UTC. Portanto, para cada amostra, a estatística é baseada em um grupamento de 240 trajetórias. E, ao longo dos 8 dias de integração de cada uma destas 240 trajetórias, foram armazenadas as posições das parcelas de ar à cada 2 horas e contabilizado o número de vezes que um dado ponto de grade acomodou uma parcela de ar. A resolução horizontal da grade considerada é de $1^{\circ} \times 1^{\circ}$ e a resolução vertical é de 250 metros. As figuras 3.28, 3.29 e 3.30 são exemplos destas estatísticas para as amostras 03D, 07D e 14D, nelas são apresentadas uma distribuição geográfica do número normalizado de parcelas de ar por camadas: entre 0 e 1 km, entre 1 e 2 km, entre 2 e 3 km e acima de 3 km.

As retro-trajetórias calculadas a partir de Balbina apresentaram um padrão bastante regular, ao longo do experimento, quanto à distribuição geográfica. Em

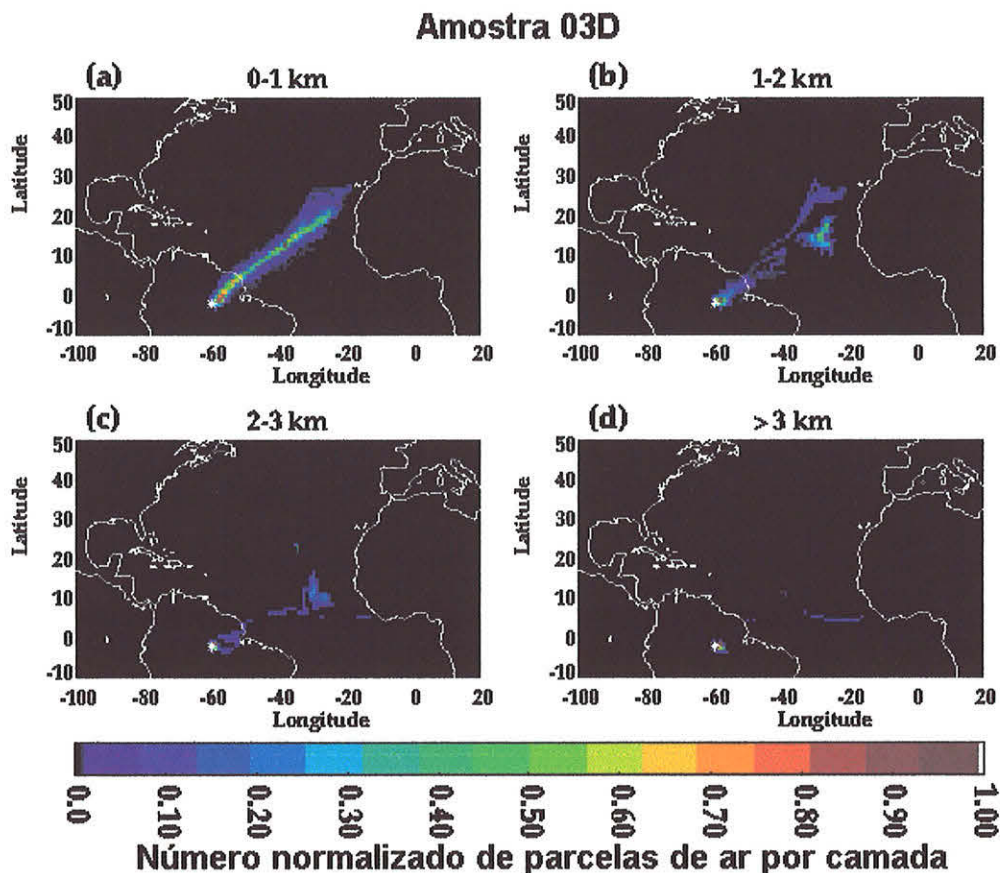


Figura 3.28: Número normalizado de parcelas de ar, ao longo de 8 dias de integração de retro-trajetórias iniciadas durante o período de coleta da amostra 03D, nas camadas (a) entre 0 e 1 km, (b) entre 1 e 2 km, (c) entre 2 e 3 km, e (d) acima de 3 km.

geral, indicaram que as massas de ar que alcançaram Balbina no período foram provenientes da costa oeste do continente africano e/ou do oceano Atlântico tropical. As retro-trajetórias indicam que as massas de ar foram, predominantemente, de nordeste e viajaram sobre o oceano, em média, por 4 a 6 dias antes de atingir a costa nordeste da América do Sul, percorrendo mais 2 a 4 dias de transporte sobre o continente antes de alcançar Balbina.

As figuras 3.31 e 3.32 mostram dados de IA-TOMS na região do oceano Atlântico equatorial entre os dias 20 de março e 04 de abril. Aerossóis provenientes do deserto do Saara foram detectados sobre a costa ocidental da África e seu

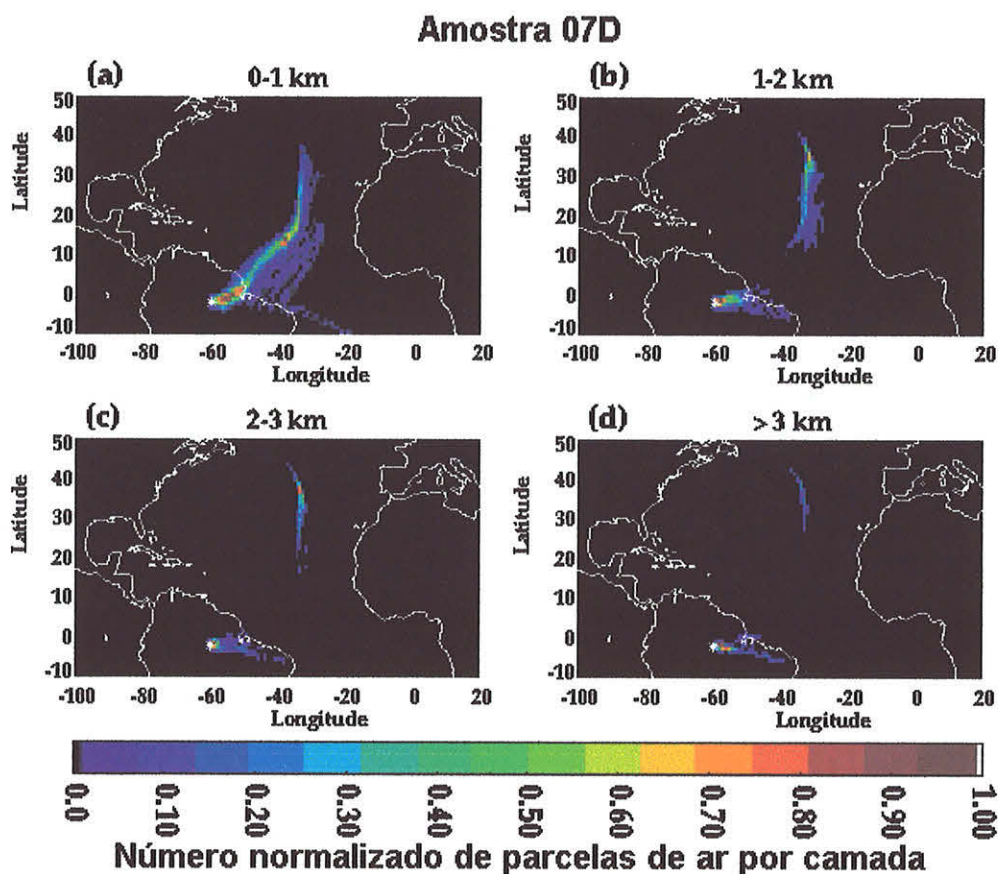


Figura 3.29: Número normalizado de parcelas de ar, ao longo de 8 dias de integração de retro-trajetórias iniciadas durante o período de coleta da amostra 07D, nas camadas (a) entre 0 e 1 km, (b) entre 1 e 2 km, (c) entre 2 e 3 km, e (d) acima de 3 km.

transporte em direção a oeste foi observado sobre o oceano Atlântico tropical entre as longitudes 60°O e 20°O . As parcelas de ar que atingiram Balbina foram, durante todo o período do experimento, provenientes da região oceânica impactada pelas CAS's, a despeito das pequenas diferenças observadas na distribuição geográfica das trajetórias no decorrer do período. Devido à inabilidade da técnica na detecção de aerossóis próximos da superfície, principalmente para baixas concentrações, o IA-TOMS não registrou o evento de penetração e deposição de aerossóis do Saara na bacia Amazônica, observado em Balbina entre os dias 23 e 28 de março.

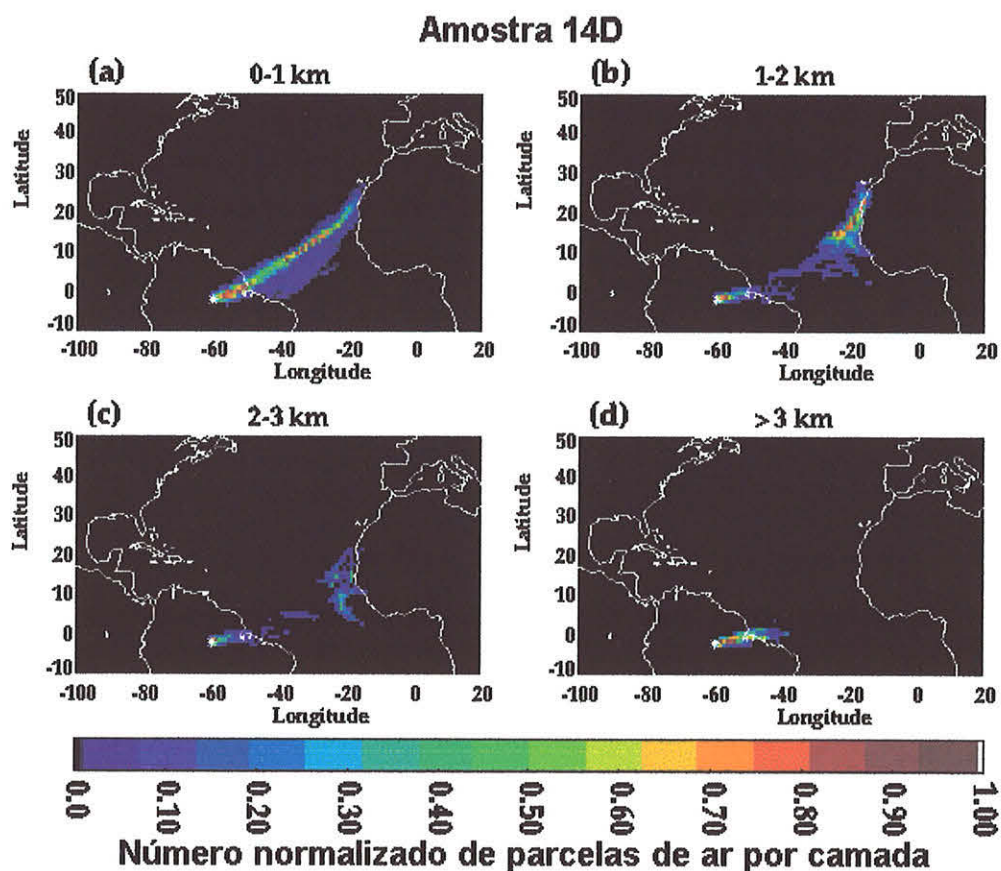


Figura 3.30: Número normalizado de parcelas de ar, ao longo de 8 dias de integração de retro-trajetórias iniciadas durante o período de coleta da amostra 14D, nas camadas (a) entre 0 e 1 km, (b) entre 1 e 2 km, (c) entre 2 e 3 km, e (d) acima de 3 km.

As principais diferenças observadas se referem à estrutura vertical da atmosfera. As massas de ar que atingiram Balbina durante o chamado período Saara foram provenientes de níveis mais baixos em comparação aos outros dias. A estatística para o período de coleta da amostra 03D (figura 3.28) é um exemplo extremo, em que as parcelas de ar estão praticamente comprimidas abaixo de 2 km. Observa-se que o sinal das trajetórias iniciadas no nível vertical de 3 km de altitude aparece somente muito próximo à Balbina (figura 3.28(d)). É importante lembrar que a amostra 03D, coletada nos dias 25 e 26 de março, registrou os valores máximos de concentrações de aerossóis provenientes do Saara. No restante

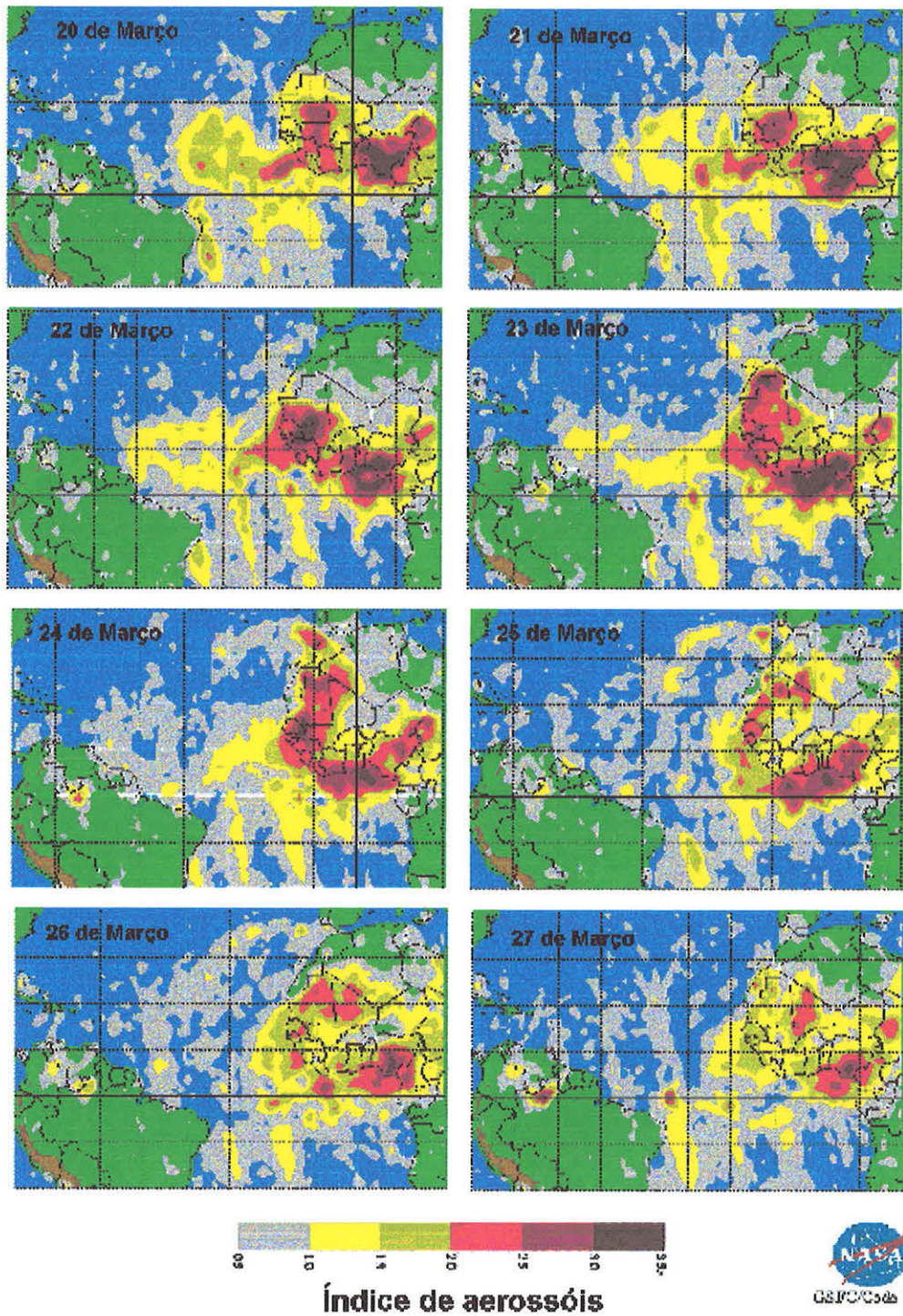


Figura 3.31: *Dados de índices de aerossóis (IA-TOMS) entre os dias 20 e 27 de março de 1998, inclusive.*

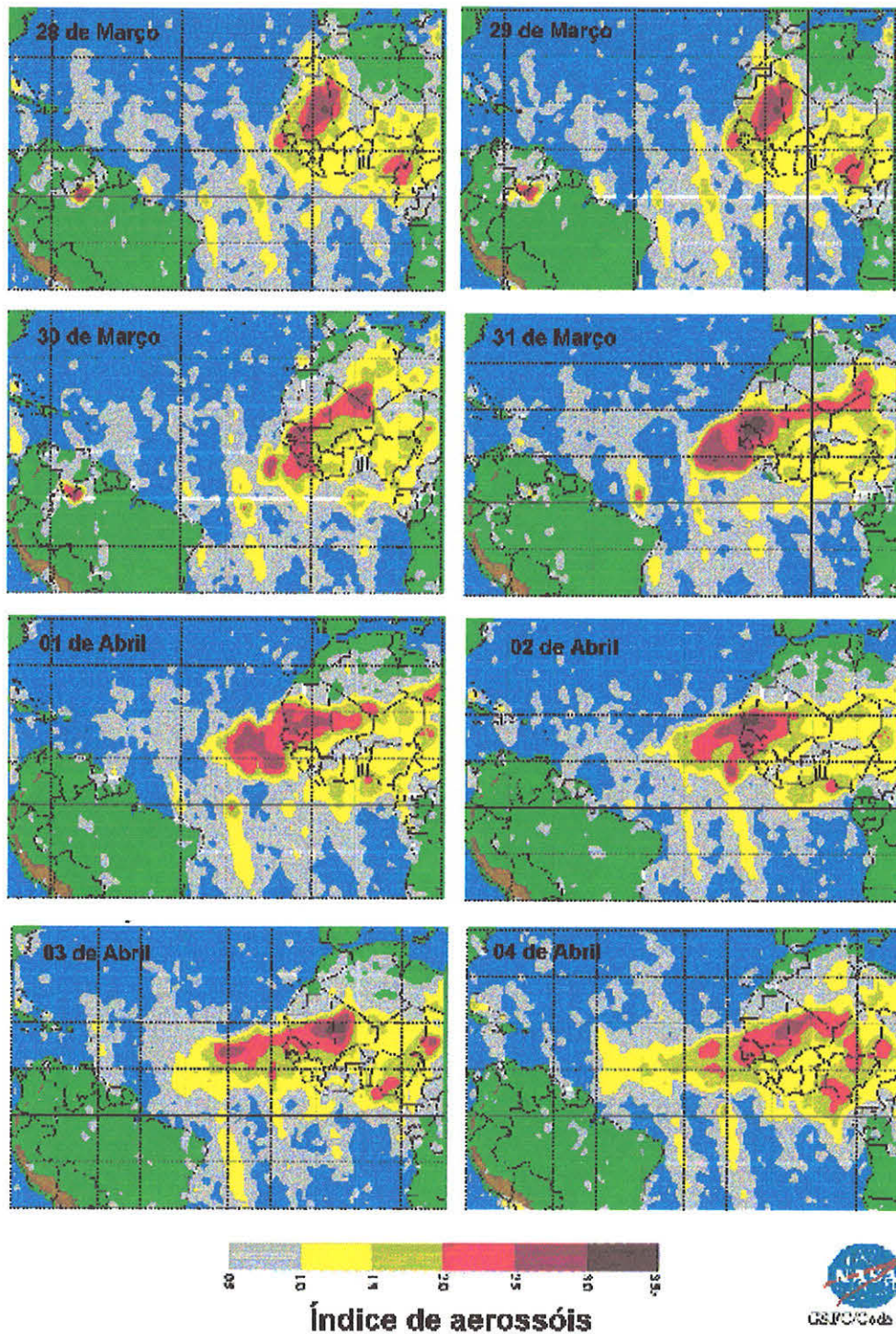


Figura 3.32: Dados de índices de aerossóis (IA-TOMS) entre os dias 28 de março e 04 de abril de 1998, inclusive.

do experimento as entradas de ar provenientes de níveis mais altos são mais frequentes. Para algumas amostras foram registradas entradas de massas de ar mais lentas, acima de 2 km, provenientes de sudeste. Em outros dias, massas de ar mais velozes provenientes do oceano Atlântico norte também atingiram Balbina.

Para as amostras coletadas durante o episódio Saara observa-se uma correlação entre as concentrações de massa do material particulado, "black-carbon", e alguns elementos traços medidos em Balbina e a distribuição vertical das parcelas de ar ao longo do transporte. As figuras 3.33 e 3.34 são gráficos das concentrações medidas nas frações fina e grossa do material particulado, respectivamente, versus o número percentual de parcelas de ar provenientes de níveis superiores a 2 km, para o grupo de trajetórias relacionado a cada uma das amostras, conforme a descrição anterior. As concentrações do material particulado, dos elementos traçadores de solo e dos elementos traçadores de aerossóis marinhos, medidas durante o episódio Saara, apresentam uma correlação significativa com o percentual das parcelas de ar provenientes de níveis superiores a 2 km. Em particular, chamam a atenção os gráficos para os elementos traços marinhos Na e Cl (nas frações fina e grossa) e S (na fração grossa); os elementos minerais Fe, Al e Ca (nas frações fina e grossa); e a massa do material particulado na fração fina. Excluídas as amostras do episódio Saara, as concentrações destes elementos permanecem em um mesmo patamar, independentemente do número percentual das parcelas de ar provenientes de níveis superiores à 2 km. Por outro lado, a concentração do material particulado grosso, do "black-carbon", do K (na fração grossa), do P (nas frações fina e grossa) e do S (na fração fina), os quais são reconhecidos como traçadores de emissão biogênica, e conseqüentemente regional, não apresentaram nenhuma relação com a estrutura vertical da atmosfera.

Assim como os sistemas de larga escala do Atlântico tropical atuam de maneira determinante no estabelecimento da meteorologia regional Amazônica, conseqüentemente atuam também de maneira importante na composição química dos aerossóis na região. A ocorrência do episódio com intenso fluxo de nordeste, em níveis baixos na costa N/NE do Brasil com penetração na bacia Amazônica, associado ao forte sistema convectivo organizado no dia 25 de março, em decorrência da penetração da ZCIT no interior do continente (figura 3.8), promoveu a entrada, e quebra de estabilidade, de uma CAS carregada de aerossóis

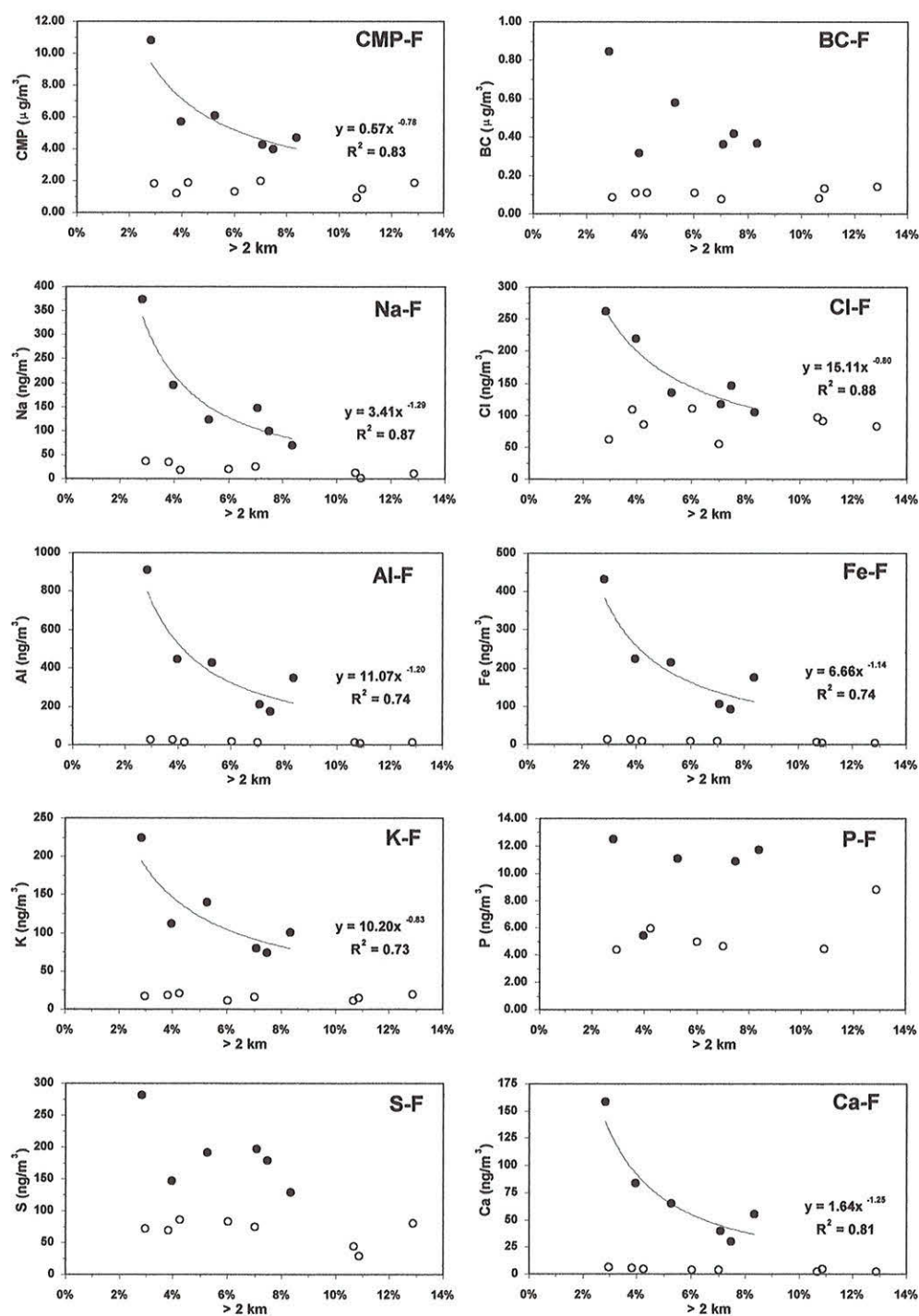


Figura 3.33: Concentrações de massa do material particulado, “black-carbon”, Na, Cl, Al, Fe, K, P, S e Ca, na fração fina, versus o número percentual de parcelas de ar provenientes de níveis superiores a 2 km para o grupo de trajetórias conectado a cada uma das amostras (conforme a descrição do texto). O símbolo (●) designa as amostras do episódio Saara.

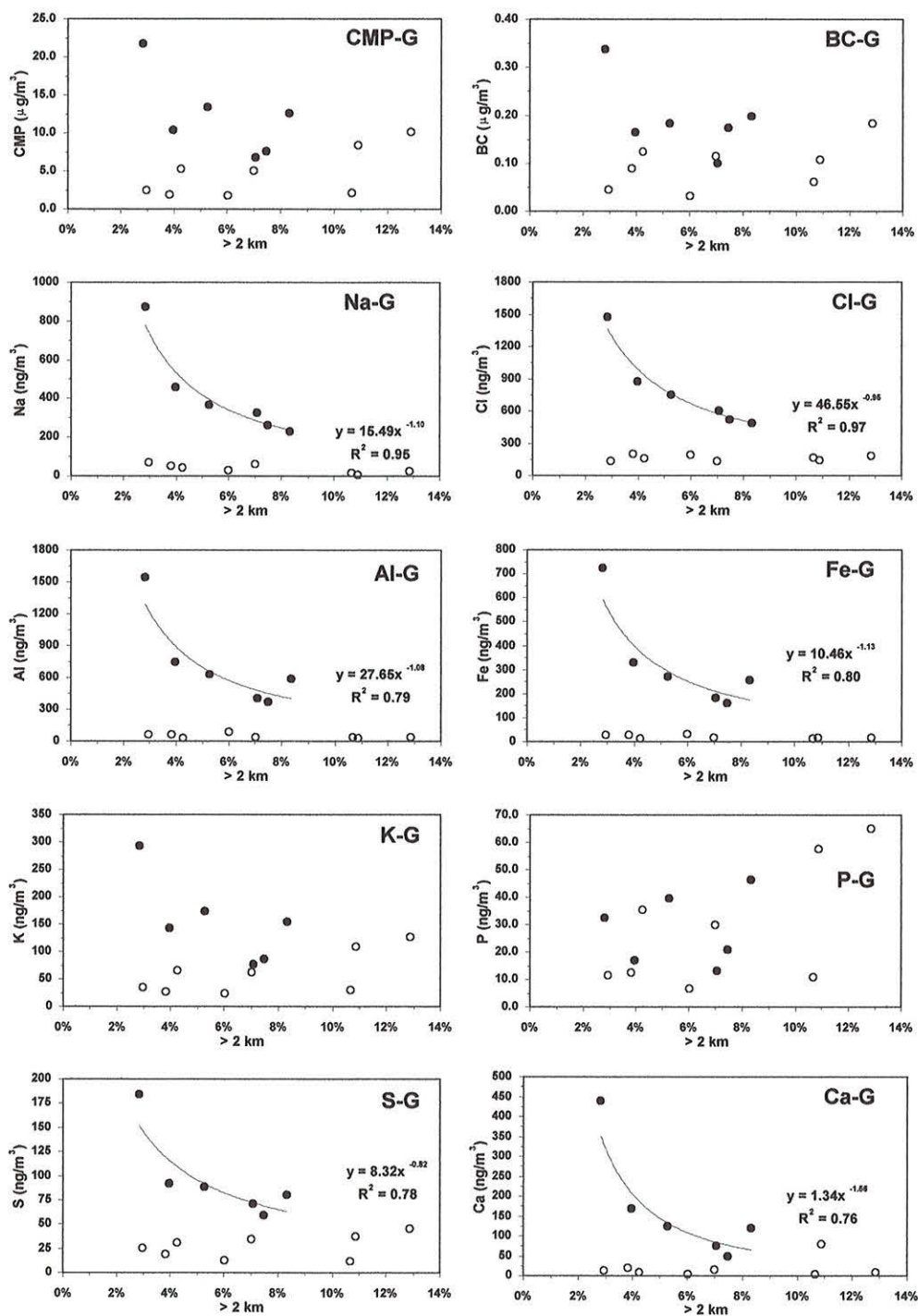


Figura 3.34: Concentrações de massa do material particulado, “black-carbon”, Na, Cl, Al, Fe, K, P, S e Ca, na fração grossa, versus o número percentual de parcelas de ar provenientes de níveis superiores a 2 km para o grupo de trajetórias conectado a cada uma das amostras (conforme a descrição do texto). O símbolo (●) designa as amostras do episódio Saara.

marinhos e de poeira do Saara na bacia Amazônica. As relações observadas nas figuras 3.33 e 3.34 mostram o efeito de “diluição” destas massas de ar carregadas de aerossóis, devido a entrada de ar limpo proveniente de níveis altos, ao longo do transporte. Ou seja, quanto mais eficiente foi a entrada de ar limpo proveniente de níveis altos, durante o transporte da CAS desde a África até a bacia Amazônica, maior foi o efeito de diluição e menor foi a concentração observada de elementos traçadores de aerossóis do Saara e marinho em Balbina. Estas observações corroboram a hipótese feita anteriormente de que neste período, com padrão diferenciado do restante, ocorreu um episódio de transporte e deposição de aerossóis minerais provenientes do Saara na bacia Amazônica. Os elementos traços biogênicos não apresentam correlação com a entrada de ar proveniente de níveis altos. Os aerossóis biogênicos são produzidos localmente e a influência da atmosfera sobre eles ocorre, provavelmente, através do estabelecimento das condições de temperatura e umidade relativa ao nível da superfície.

3.5 Transporte de emissões de queimada via convecção profunda

Aerossóis emitidos pelas intensas queimadas que ocorreram durante o mês de março no estado de Roraima foram detectadas pelo sensor Nimbus-7/TOMS. Nas figuras 3.31 e 3.32, além dos aerossóis associados à presença das CAS's na região do Atlântico equatorial, também pode-se observar uma mancha, com altos valores de IA sobre Roraima. A área coberta pela fumaça identificada pelo TOMS é, aproximadamente, coincidente com a área na qual se localizam os focos de queimada identificados no canal infra-vermelho do sensor NOAA/AVHRR (figura 3.3). A pluma de fumaça detectada pelo TOMS pôde ser observada até o dia 30 de março, quando então foram registradas chuvas no estado de Roraima.

As figuras 3.35 (a) e (b) mostram grupos de trajetórias com 10 dias de integração a partir da área onde foram detectadas extensas queimadas em Roraima (figura 3.3) e na Venezuela. Ambos os grupos de trajetórias foram iniciados de uma altitude de 1500 metros, acima da superfície, no dia 16 de março de 1998. Na figura 3.35 (a) as trajetórias foram calculadas a partir da integração do campo

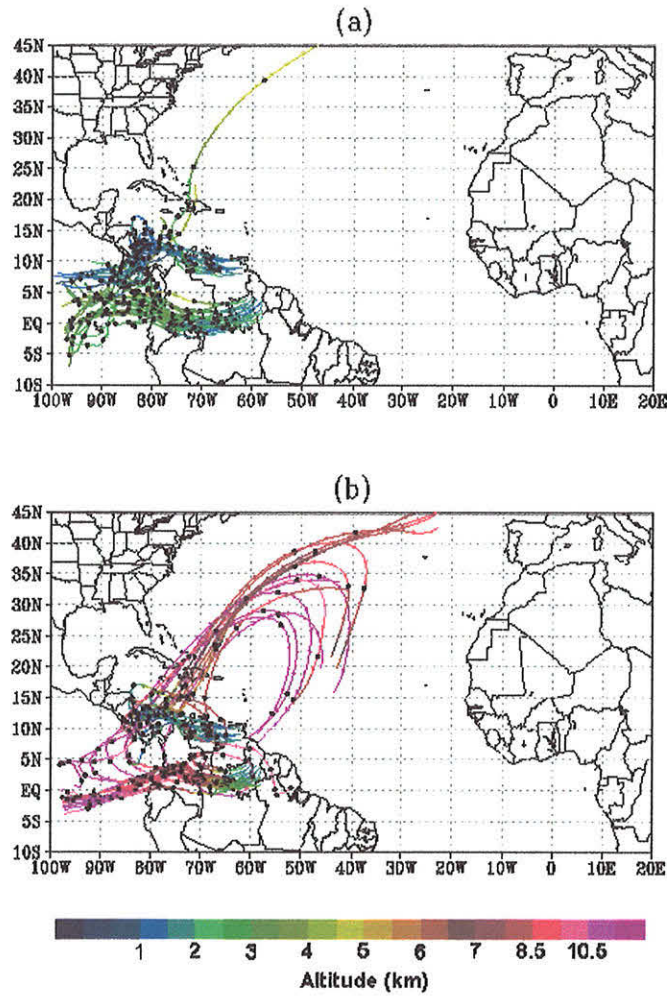


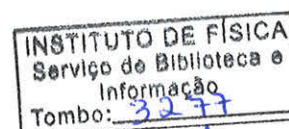
Figura 3.35: Trajetórias (a) convectivas e (b) não-convectivas, iniciadas a partir da área onde foram detectados pontos de queimada em Roraima e na Venezuela. Em ambos os conjuntos as trajetórias foram integradas por 10 dias a partir do dia 16 de março de 1998

de vento ($\bar{u}, \bar{v}, \bar{w}$) da escala resolvida, obtido diretamente da simulação numérica. Por outro lado, na figura 3.35 (b) o cálculo das trajetórias consiste na integração de campos de vento ($\bar{u}, \bar{v}, \bar{w}_{conv_traj}$), nos quais informações convectivas da simulação foram incorporadas à velocidade vertical \bar{w}_{conv_traj} (equações 2.17 e 2.18). Ambas as metodologias encontram-se descritas no capítulo 2 deste trabalho, e uma discussão mais aprofundada do método de cálculo de trajetórias convectivas pode ser vista em [Freitas, 1999].

Seguindo a indicação da figura 3.35(a) as emissões de queimada seriam transportados preferencialmente na direção oeste, permanecendo confinados abaixo de 3000 metros de altitude. Este resultado, entretanto, não é realista. A presença de sistemas convectivos no extremo noroeste da região Amazônica é uma constante nesta época do ano, e espera-se que estes sistemas sejam capazes de promover o transporte vertical destas massas de ar, carregadas de emissões de queimada, para a média e alta troposfera, promovendo o transporte à longa distância. Este tipo de comportamento e seus impactos químicos foram observados durante os experimentos TRACE-A “TRansport and Atmospheric Chemistry near the Equator-Atlantic” [Pickering *et al.*, 1996; Thompson *et al.*, 1996] e SCAR-B “Smoke, Clouds, and Radiation-Brazil” [Longo *et al.*, 1999]. As trajetórias convectivas mostradas na figura 3.35(b) sugerem que as parcelas que deixam a área de queimadas no dia 16 de março, de 1500 metros de altitudes, são transportadas na direção oeste em níveis baixos por aproximadamente 1-2 dias, e quando atingem zonas de convecção são injetadas para a alta troposfera. Algumas destas trajetórias chegam a atingir altitudes acima de 10 km e transportadas por um anticiclone de níveis altos.

3.5.1 Medidas de gases no Suriname

Durante o experimento LBA-CLAIRE, em paralelo às medidas em Balbina, foi realizado uma campanha com o avião CESSNA CITATION II, da Universidade de Utrech, Holanda. O avião estava instrumentalizado para realizar medidas de gases e aerossóis. No dia 26 de março, o voo CLAIRE-08, conduzido sobre o Suriname interceptou, em altas altitudes ($\gtrsim 10$ km), massas de ar cuja composição química era característica de fumaça emitida em queimadas. O perfil vertical



de concentrações de O_3 e CO medidas durante o voo CLAIRE-08 (figura 3.36) mostra que esta camada enriquecida em gases traços estava localizada acima de 10 km, sobre uma coluna de ar limpo. Na pluma interceptada em altos níveis, as concentrações de CO, CO_2 e O_3 , hidrocarbonetos e partículas de aerossóis estavam enriquecidas. De maneira geral, as concentrações de gases traços apresentavam forte correlação mútua, típica de plumas de queimada. Veja o apêndice E para uma discussão mais detalhada da comparação entre as características da pluma interceptada em altos níveis, plumas envelhecidas na baixa troposfera e fumaça recém emitida.

Com o objetivo de elucidar a origem da pluma interceptada em altos níveis no Suriname, foram calculadas trajetórias de parcelas de ar a partir da área de queimadas em Roraima e retro-trajetórias iniciadas no Suriname. A figura 3.37 combina trajetórias de massas de ar (3-D convectivas) com 8 dias de integração, iniciadas em 1500-2000 metros, a partir de Roraima no dia 16 de março de 1998, e retro-trajetórias com 2 dias de integração, iniciadas em 10700 metros, no Suriname no dia 26 de março de 1998. Massas de ar provenientes das regiões de queimada em Roraima foram transportadas em direção a sudoeste em baixos níveis durante 1-2 dias. Posteriormente, atingem uma área de convecção (figura 3.38) e são transportadas para a alta troposfera, via convecção profunda, acima de 8 km, numa escala de tempo de horas. A figura 3.39 indica as altitudes das posições das parcelas de ar ao longo das trajetórias iniciadas em Roraima no dia 16 de março. Em níveis altos, as massas de ar são transportadas, numa altitude entre 10-12 km, por um anticiclone de altas altitudes, em direção ao Suriname.

O processo de convecção profunda explica as altas concentrações de CO, O_3 , entre outros componentes pirogênicos, observados na alta troposfera sobre o Suriname. Este mecanismo influencia fortemente a química atmosférica, em particular o ciclo de oxidação fotoquímica. Gases insolúveis, por exemplo CO, NMHC, NO e O_3 , não são muito afetados pelo transporte convectivo e, portanto, são encontrados enriquecidos em altos níveis. A princípio, a atividade de raios durante a convecção suplementaria o NO_x reativo nas plumas, aumentando a produção fotoquímica de ozônio. Entretanto, as concentrações de O_3 e NO medidas durante o voo CLAIRE-8 não evidenciam a ocorrência deste processo.

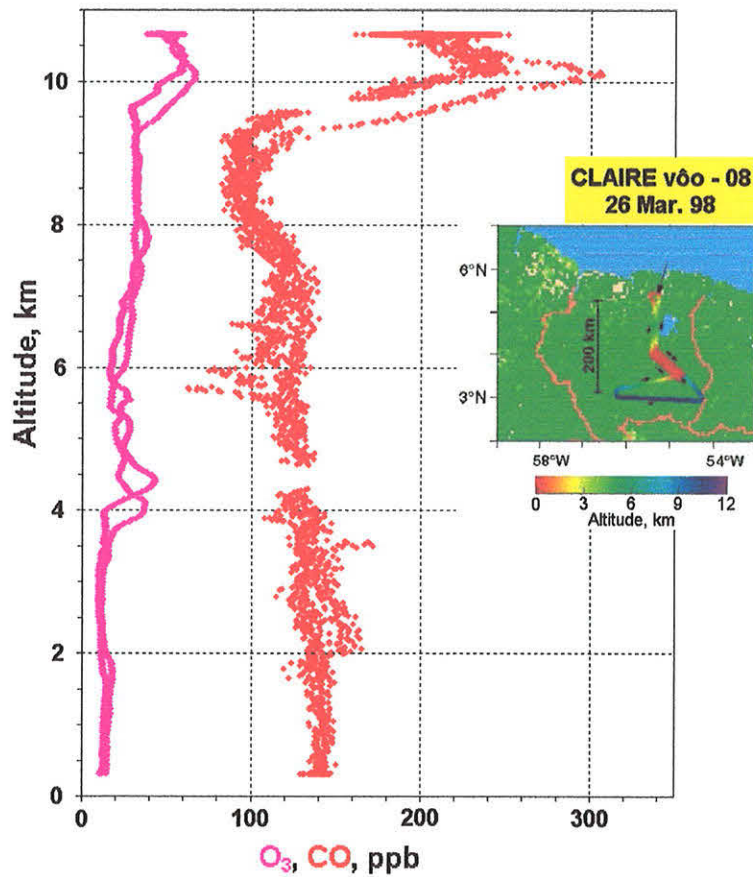


Figura 3.36: Perfil de concentrações de O₃ e CO medidos durante o voo CLAIRE-08 sobre o Suriname, em 26 de março de 1998. A rota do voo está indicada no detalhe da figura. Figura extraída da versão preliminar de [Andreae et al., 1999] obtida em comunicação pessoal com o primeiro autor (Apêndice E).

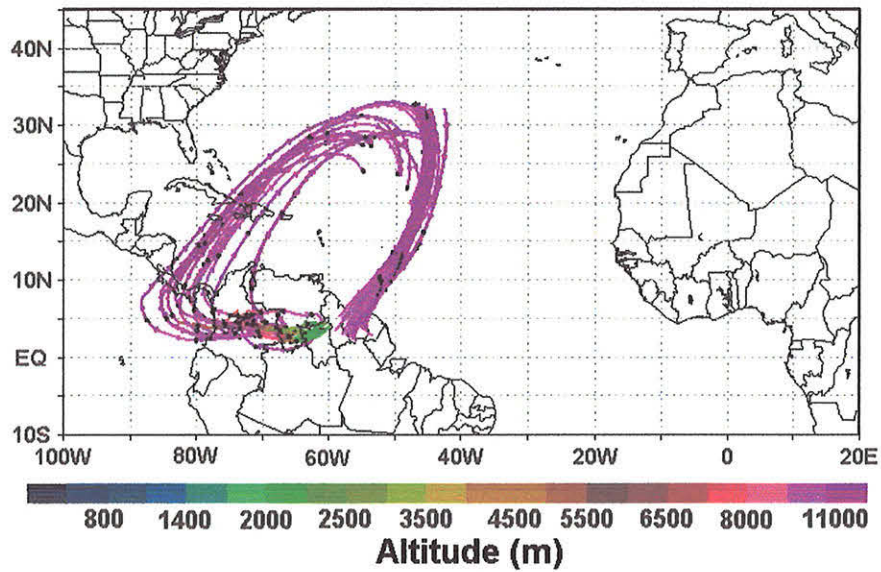


Figura 3.37: Trajetórias de massas de ar (3-D convectivas) com 8 dias de integração a partir de Roraima; e retro-trajetórias com 2 dias de integração a partir do Suriname. A escala de cores indica a altitude das trajetórias. Figura extraída da versão preliminar de [Andreae et al., 1999] obtida em comunicação pessoal com o primeiro autor (Apêndice E).

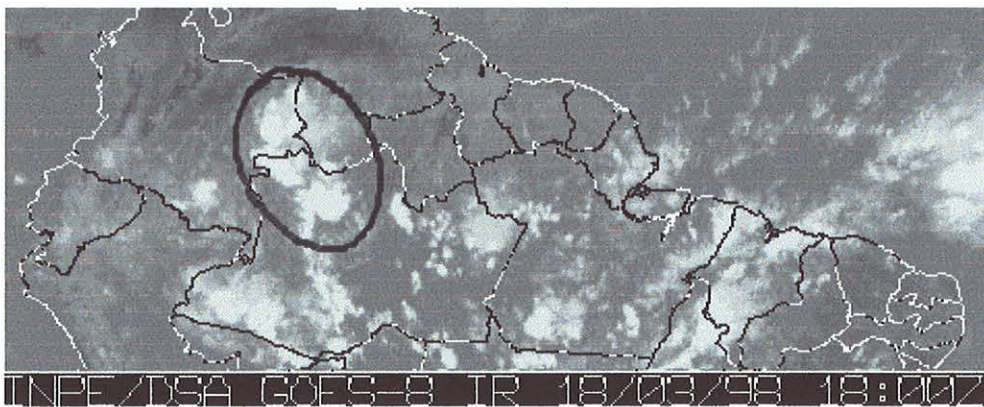


Figura 3.38: Imagem do satélite GOES-8, no canal IR, no dia 18 de março as 18:00 UTC. O sistema convectivo responsável pelo transporte vertical das massas de ar provenientes de Roraima está demarcado.

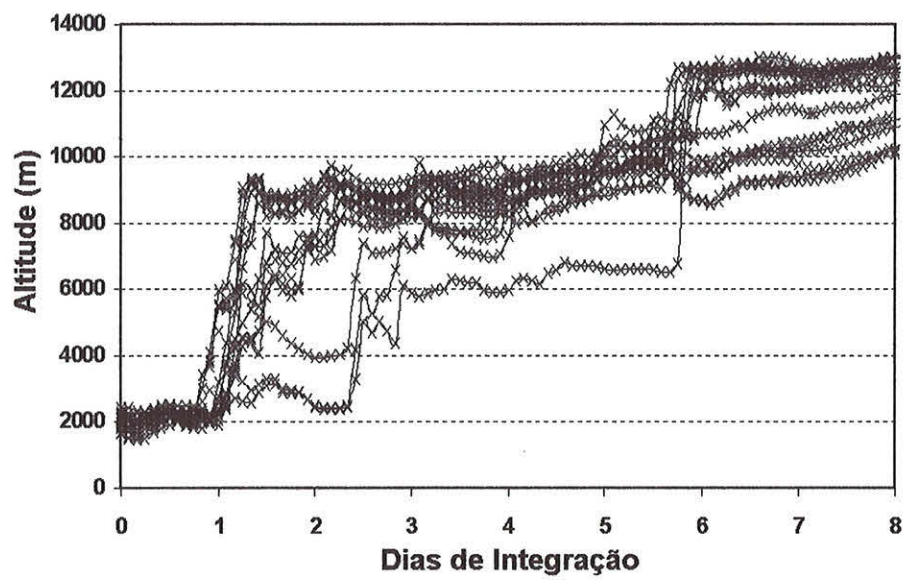


Figura 3.39: *Altitude das posições das parcelas de ar ao longo das trajetórias inicializadas em Roraima no dia 16 de março.*

Capítulo 4

Um estudo de caso na estação seca: Experimento SCAR-B.

4.1 Introdução

Durante a estação seca de 1995 realizou-se o experimento SCAR-B “Smoke, Clouds, and Radiation-Brazil”, em áreas de vegetação de cerrado e floresta na região Amazônica brasileira. O projeto SCAR-B é resultado de um esforço conjunto de diversas instituições de pesquisa do Brasil e do Estados Unidos. A lista de participantes inclui cientistas da NASA “National Aeronautics & Space Administration”, da Universidade de Washington, do INPE - Instituto Nacional de Pesquisa Espaciais e da USP - Universidade de São Paulo, entre outras instituições.

Os objetivos gerais do experimento SCAR-B foram:

- Caracterizar os efeitos das emissões de queimadas no balanço radiativo solar, e avaliar o impacto direto das partículas de aerossóis ao absorver, refletir e retro-espalhar a radiação solar; e seus efeitos indiretos nas propriedades radiativas das nuvens.
- Estimar os efeitos das queimadas nos processos atmosféricos em escala regional.

- Avaliar a confiabilidade das técnicas de sensoriamento remoto em relação as medidas locais, em preparação para o lançamento do sensor MODIS “MODerate resolution Imaging Spectroradiometer” a bordo do satélite TERRA da série NASA/EOS “Earth Observing System”.

A partir dos objetivos gerais, objetivos específicos foram detalhados, originando diversas linhas de pesquisa dentro de um mesmo projeto. Realizou-se medidas das propriedades ópticas da superfície, do comportamento do fogo, dos aerossóis e gases presentes na fumaça emitida durante o processo de combustão, bem como seus efeitos sobre a formação de nuvens e efeitos radiativos. O experimento incluiu, além das medidas diretas, medidas de sensoriamento remoto a partir de aeronaves e de satélites [Kaufman *et al.*, 1998].

Resultados do experimento SCAR-B incluem informações importantes e detalhadas acerca dos fatores de emissão de gases e aerossóis, distribuição temporal e espacial das queimadas, propriedades ópticas dos aerossóis de fumaça, padrões de transporte e evolução da fumaça, e interação da fumaça com nuvens e vapor d’água. O artigo [Kaufman *et al.*, 1998], no apêndice B, discute os objetivos e os principais resultados do experimento SCAR-B.

A compreensão do padrão de circulação e da estrutura vertical da atmosfera, durante a estação de queimadas, é uma informação essencial na interpretação e análise das medidas conduzidas durante o SCAR-B. Neste capítulo apresenta-se um estudo do transporte atmosférico em larga escala e numa escala regional, de gases e aerossóis emitidos durante a queima de biomassa. Fez-se uma avaliação dos possíveis corredores de exportação atmosféricos, responsáveis por colocar os poluentes emitidos por queimadas na circulação global do planeta. Avaliando-se também, as relações existentes entre as concentrações de aerossóis e de ozônio. E, associando a variabilidade observada nestas relações à mudanças no padrão de circulação e na estrutura da atmosfera.

Alguns dos resultados discutidos neste capítulo foram publicados no artigo [Longo *et al.*, 1999], colocado no apêndice C.

4.2 Condições meteorológicas do período

Os principais sistemas de larga escala que afetam as regiões central e Amazônica brasileiras, durante o inverno austral no hemisfério Sul, são: a ZCIT, os sistemas frontais frios de latitudes médias, e a Alta Subtropical de Atlântico Sul [Nobre *et al.*, 1998]. O movimento da ZCIT em direção ao norte, e o deslocamento da Alta Subtropical de Atlântico Sul para oeste, em direção ao continente, tipicamente produz uma área de alta subsidência sobre o Brasil central e bacia Amazônica. A umidade e a nebulosidade mantêm-se restritas a áreas remotas no norte e noroeste da região Amazônica. Uma zona de alta pressão, com baixos níveis de precipitação dominam a climatologia na região central do Brasil, nesta época do ano. Caracterizando o período, conhecido como estação seca, nas regiões central e norte. Em decorrência, observam-se extensas queimadas em áreas de vegetação de cerrado e em áreas desflorestadas na bacia Amazônica.

A aproximação de sistemas frontais, provenientes do Sul do país, é responsável por perturbações na estabilidade atmosférica e nos campos de vento. As frentes frias são, em geral, bloqueadas por sistemas de alta pressão e desviadas para leste em direção ao oceano Atlântico, antes que possam atingir as principais áreas de ocorrências de queimadas. Ainda assim, durante estes episódios, a advecção vertical e o transporte a longa distância das emissões de queimadas são favorecidos. Propagação de linhas de instabilidade, originárias da costa norte e nordeste do Brasil, em direção ao interior da bacia Amazônica, são também responsáveis por eventos convectivos [Silva Dias *et al.*, 1995]. Durante o experimento TRACE-A, em 1992, observaram-se eventos convectivos relacionados à aproximação de sistemas frontais e com as linhas de instabilidade [Pickering *et al.*, 1996].

A figura 4.1 mostra os campos de vento médios, entre 16 de Agosto e 11 de Setembro de 1995, em 700 e 500 hPa. Ventos de leste, de moderados à lentos, foram observados ao norte das latitudes 15° S, onde ocorreram a maioria das queimadas. No sudoeste da área de abrangência do SCAR-B (indicada na figura 4.1 (a)), os ventos foram provenientes de norte e noroeste. Em níveis baixos, a circulação anticiclônica foi dominante sobre o continente.

Durante o experimento SCAR-B, variações na posição do anticiclone e a aproximação de sistemas frontais contribuíram para a variabilidade diária da origem

das massas de ar na região de Cuiabá - MT, local onde conduziram-se várias medidas de gases e aerossóis (localização indicada no mapa da figura 4.1 (a)). Em Cuiabá, os ventos de leste foram dominantes, trazendo ar limpo do oceano e alguma recirculação do continente. Em alguns períodos, dependendo da posição do anticiclone, ventos de norte e nordeste foram observados em Cuiabá.

O Instituto Nacional de Meteorologia - INMET, lançou radiossondagens diárias a partir de várias localidades nas regiões central do Brasil e Amazônica. Os perfis verticais de temperatura indicaram uma persistente camada de inversão, em aproximadamente 700 hPa (~ 3 km), durante o período SCAR-B. Os perfis verticais de traçadores de fumaça, realizados com a aeronave Bandeirante do INPE sugerem também a mesma altitude para a camada de inversão.

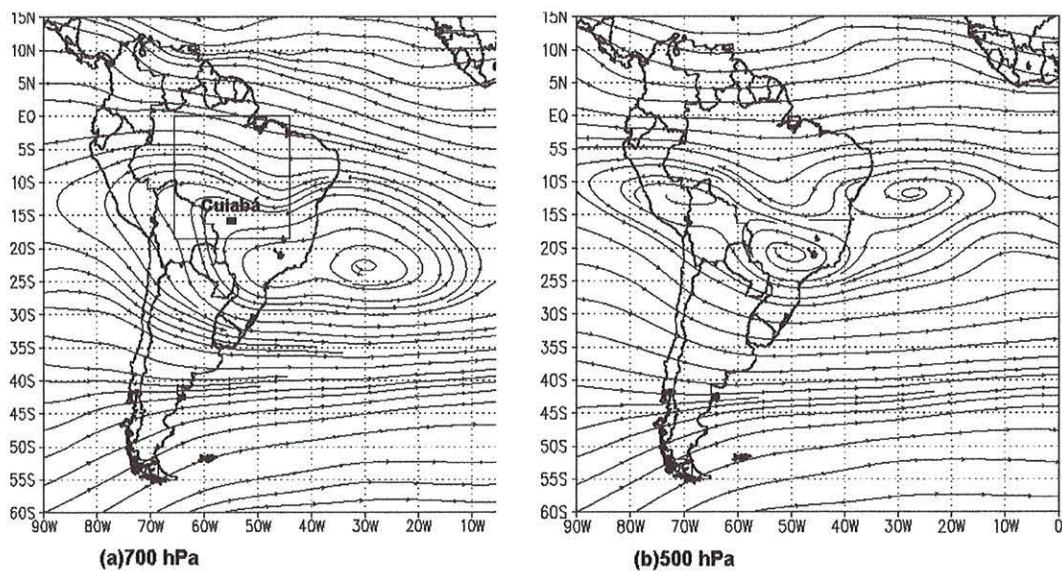


Figura 4.1: Campo de vento médio para o período do experimento SCAR-B, de 16 de Agosto a 11 de Setembro de 1995, derivado a partir de quatro re-análises globais diárias (00, 06, 12, 18 UTC) do NCEP “National Center for Environmental Prediction”, em (a) 700 hPa e (b) 500 hPa. A área de abrangência do experimento e Cuiabá estão identificadas em (a).

4.2.1 Observações de focos de queimadas

Durante o experimento SCAR-B, sensoriamento remoto foi utilizado na detecção e caracterização das queimadas na América do Sul, a partir de medidas do radiômetro VAS “Visible infrared spin scan radiometer Atmospheric Sounder” a bordo do satélite GOES-8. O sistema GOES VAS ABBA “Automated Biomass Burning Algorithm” foi desenvolvido no CIMSS “Cooperative Institute for Meteorological Satellite Studies”- Universidade de Wisconsin (EUA), com o objetivo de automaticamente detectar e caracterizar fogos ativos, fornecendo estimativas de área queimada e temperatura [Prins & Menzel, 1994]. O sistema de detecção é baseado em diferenças de temperaturas radiativas medidas em dois canais infravermelhos (3,9 e 11,2 μm) do sensor GOES VAS.

A resolução espacial do GOES no nadir é: $6,9 \times 6,9 \text{ km}^2$ (no canal 11,2 μm) e $13,8 \times 13,8 \text{ km}^2$ (no canal 3,9 μm). Esta resolução é grossa comparada com a resolução do sensor AVHRR (1 km), e constituem um fator limitante para o monitoramento de queimadas. Entretanto, sua alta resolução temporal permite a caracterização da variabilidade diurna. A contagem de número de focos de queimadas às 17:45 UTC foi tipicamente 2-4 vezes superior ao observado três horas antes ou depois, e aproximadamente 7 vezes maior que o número observado às 11:45 UTC [Prins *et al.*, 1998].

As figuras 4.2 (a) e (b) mostram a distribuição do número de pixels de fogo detectados pelo sistema GOES-8 ABBA durante a estação de queimadas (junho a outubro) de 1995 e durante o período do experimento SCAR-B, respectivamente, ambos às 17:45 UTC [Prins *et al.*, 1998]. O período do experimento SCAR-B coincidiu com o ápice da estação de queimadas e o número de fogos detectados durante o SCAR-B corresponde a aproximadamente 40% do total detectado entre os meses de junho a outubro de 1995. A grande maioria das queimadas ocorreram em áreas previamente desflorestadas na região de transição entre os ecossistemas cerrado e floresta tropical. Três áreas foram consideradas relevantes e estão indicadas na figura 4.2 (b) por retângulos azuis. A primeira delas localiza-se no Estado de Rondônia, a segunda no norte do Estado de Mato Grosso (ao redor da cidade de Alta Floresta), e a terceira área localiza-se a noroeste da cidade de Porto Nacional - TO.

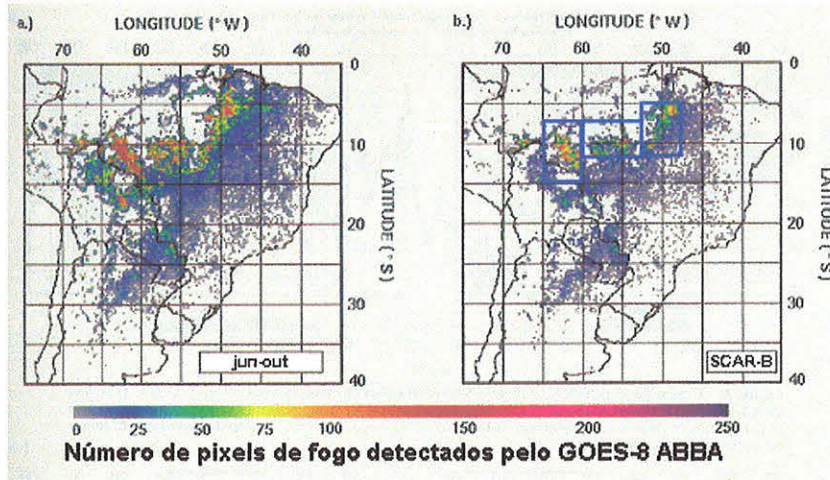


Figura 4.2: Distribuição de número de pixels de fogo detectados pelo sistema GOES-8 ABBA durante (a) a estação de queimadas (junho a outubro) de 1995 e (b) durante o período do experimento SCAR-B, ambos às 17:45 UTC. O número de fogos detectados durante o SCAR-B corresponde a $\sim 40\%$ do total detectado entre os meses de junho a outubro de 1995. Adaptado de [Prins et al., 1998].

4.2.2 Simulação atmosférica do período

Uma simulação atmosférica, do período do experimento SCAR-B, foi realizada utilizando-se o modelo RAMS. Esta simulação segue a mesma metodologia utilizada na simulação atmosférica do período do experimento LBA-CLAIRE, descrita na seção 3.2. Na simulação do período do experimento SCAR-B, considerou-se uma grade, com resolução horizontal de 80 km por 80 km, sobre a América do Sul. A área simulada situa-se entre as latitudes 60°S e 10°N e longitudes 90°O e 10°O . A resolução vertical da grade considerada é de 200 m no nível adjacente à superfície, e diminui gradualmente a uma taxa de 1,2 até o espaçamento vertical máximo de 1200 m, mantendo esta resolução até o topo do modelo, aproximadamente em 19 km. Os campos de vento tri-dimensionais $(\bar{u}, \bar{v}, \bar{w})$, da escala resolvida, foram armazenados, para posterior utilização do modelo de trajetórias.

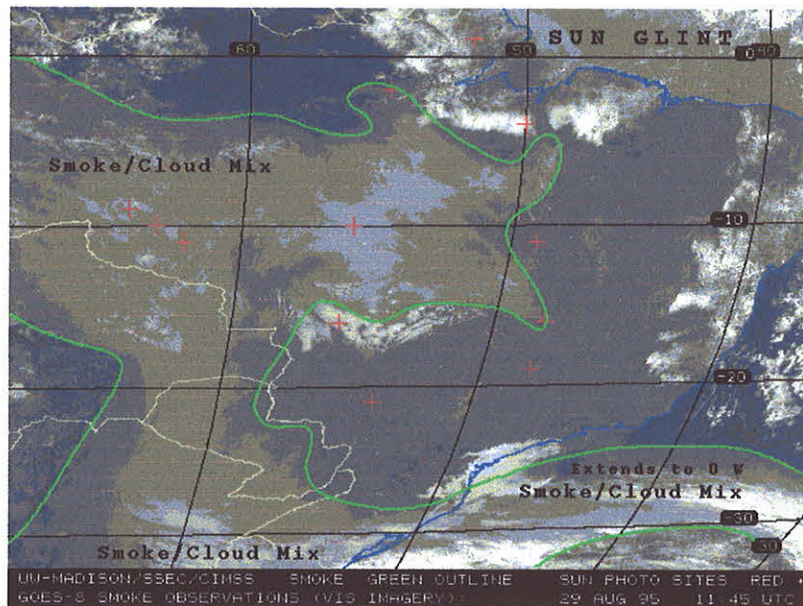
4.3 Análise de trajetórias de massas de ar

Durante a estação seca de 1995, observações do satélite GOES-8, no canal visível, indicaram uma extensa camada de fumaça sobre o Brasil, cobrindo quase que inteiramente a região Amazônica. E também, observou-se um corredor de exportação das emissões de queimadas na direção do oceano Atlântico Sul, associado a passagens de frentes frias sobre as regiões sul e sudeste (figura 4.3).

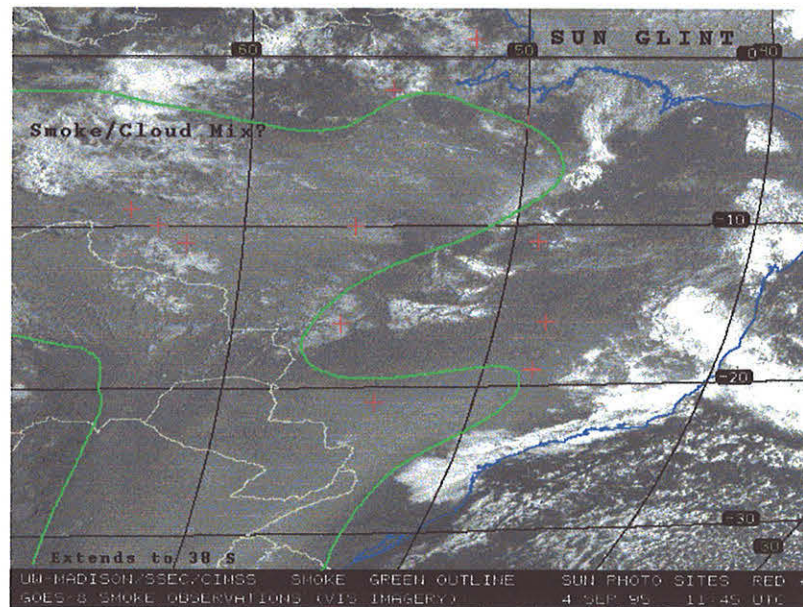
Afim de estudar o transporte das emissões de queimadas, calcularam-se trajetórias de parcelas de ar, a partir das áreas de queimadas mais freqüentes e intensas durante o período do experimento SCAR-B. Estas áreas estão identificadas na figura 4.2. As trajetórias foram calculadas com seis dias de integração e iniciadas, diariamente, entre os dias 15 de agosto e 15 de setembro de 1995. Considerou-se a posição vertical inicial das parcelas de ar em 3 km de altitude (~ 700 hPa).

A figura 4.4 mostra uma distribuição geográfica das posições das parcelas de ar, calculadas ao longo das trajetórias descritas acima. Ou seja, ao longo dos 6 dias de integração de cada uma das trajetórias iniciadas diariamente, durante 30 dias, armazenaram-se as posições das parcelas de ar a cada 1 hora, e contabilizou-se o número de vezes que um dado ponto de grade acomodou uma parcela de ar. Considerou-se uma resolução horizontal de $1^0 \times 1^0$, e na vertical a estatística foi integrada na coluna. Esta estatística permite avaliar, não apenas o destino das massas de ar, mas também o tempo de permanência da parcela sobre cada ponto de grade. A distribuição das posições das parcelas de ar, calculadas desta maneira, fornece o padrão dominante do transporte das emissões de queimadas no período. Na figura 4.4, as trajetórias indicam um condição de estagnação, com uma alta frequência das parcelas próximas das fontes emissoras. Observa-se que mais de 50% das parcelas de ar, originárias das áreas de queimadas freqüentes, permanecem sobre o continente.

É possível observar, separadamente, a influência de cada uma das três áreas fontes (figuras 4.4 (a), (b) e (c)). O estado de Rondônia recebe poluição das outras áreas, em especial da região de Alta Floresta, em adição aos efeitos das emissões locais (figura 4.4 (a)). Os fotômetros solares instalados no Estado de



(a)



(b)

Figura 4.3: Imagem do satélite GOES-8, no canal visível, nos dias (a) 29 de agosto de 1995 e (b) 04 de setembro de 1995, ambas às 11:45 UTC. A linha de contorno verde identifica a cobertura de fumaça.

Rondônia indicaram, sistematicamente, altos valores de espessura ótica, raramente abaixo de 2.0 ($0.669 \mu\text{m}$) durante todo o período SCAR-B. Os ventos de leste, dominantes em baixos níveis, empurravam a fumaça em direção aos Andes e a alta subsidência manteve a fumaça confinada abaixo da inversão térmica por vários dias. A altitude das trajetórias manteve-se, predominantemente, abaixo de 700 hPa, no interior da bacia Amazônica e Brasil central. Na região central, o ar limpo proveniente do oceano Atlântico foi responsável pela diluição da atmosfera nas regiões de cerrado. Os fotômetros solares em Brasília e Cuiabá registraram valores de espessura ótica de aerossóis quase sempre abaixo de 1.0 ($0.669 \mu\text{m}$). Estes valores são em muito inferiores aos valores medidos nas cidades de Alta Floresta (ao Norte do estado de Mato Grosso) e no estado de Rondônia [Remer *et al.*, 1998; Yamasoe, 1999].

Dois corredores de exportação dos poluentes emitidos pelas queimadas são evidenciados: (1) em direção ao oceano Pacífico, entre as latitudes 10°N e 10°S ; e (2) em direção ao oceano Atlântico, na altura das latitudes 20°S e 30°S .

O transporte em direção ao Pacífico não foi observado com a frequência e intensidade indicada pelo modelo através dos diversos sistemas de detecção de fumaça, via sensoriamento remoto (figura 4.3 e Apêndice B: figura 3 (c)). A ocorrência de sistemas convectivos no noroeste da região Amazônica, associados à ZCIT, é frequente, mesmo durante a estação seca. Durante o mês de agosto de 1995, os níveis de precipitação observados no extremo norte/noroeste da Amazônia excedeu 200 mm [Climanálise, 1995]. Espera-se, portanto, que o processo de transporte predominante na região seja a convecção profunda, e que durante a interação da fumaça com as nuvens os componentes solúveis da fumaça, entre eles os aerossóis, sejam eficientemente removidos. A exemplo do episódio de convecção profunda discutido na seção 3.5.

O transporte atmosférico em direção ao Atlântico é associado à passagem de frentes frias sobre as regiões sul e sudeste. Durante estes episódios, a advecção vertical é favorecida e o transporte em larga escala é intensificado. A altitude das trajetórias chegam a valores superiores a 8 km, quando atingem o cinturão de convecção da frente fria. E em altos níveis, as trajetórias se dirigem para leste. O corredor de exportação de emissões de queimada, na direção do Atlântico, confirma-se nas observações de satélite (figura 4.3 e Apêndice B: figura 3 (c)).

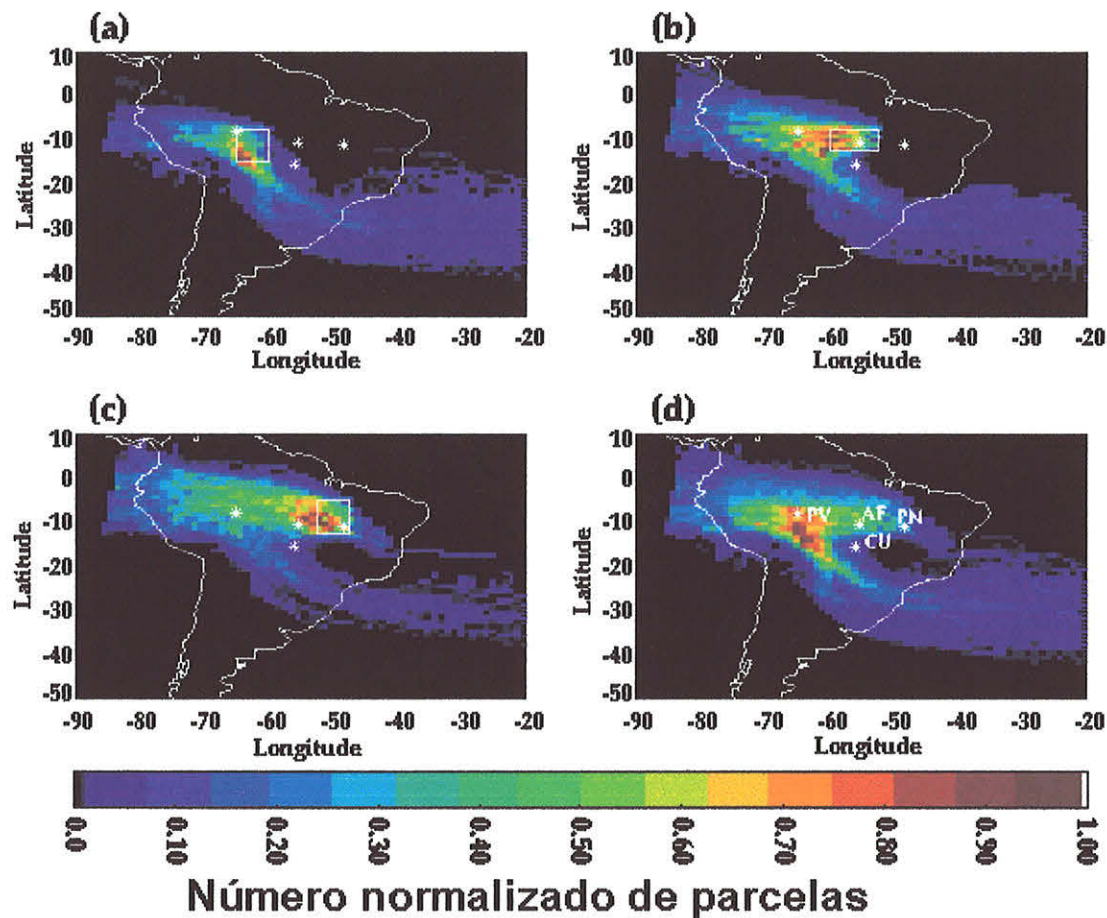


Figura 4.4: Distribuição das posições das parcelas de ar calculadas ao longo de trajetórias com seis dias de integração. Em (a), (b) e (c) as trajetórias foram iniciadas a partir do nível de 700 hPa, sobre as principais áreas de queimadas, identificadas em cada um dos mapas. E, (d) inclui as trajetórias iniciadas em todas as três áreas anteriores. Nos mapas estão identificadas as posições de Porto Velho - RO, Cuiabá e Alta Floresta - MT e Porto Nacional - TO.

Uma análise nos dados observacionais do satélite GOES-8, no canal visível, entre junho e outubro de 1995, indicou que a fumaça sobre o oceano Atlântico é da ordem de 15-20% da fumaça detectada sobre o continente [Prins *et al.*, 1998].

As imagens do satélite GOES-8, no canal visível, nos dias 29 de agosto (figura 4.3 (a)) e 04 de setembro (figura 4.3 (b)) de 1995, são exemplos dos dois padrões típicos de transporte atmosférico observados durante o período SCAR-B. Na figura 4.3(a), observa-se a saída da pluma em direção ao oceano Atlântico, na altura da frente fria quase estacionária entre as latitudes 25°S e 30°S. Não ocorrendo a aproximação de frentes frias, o corredor de fumaça é direcionado para a região sul do Brasil (figura 4.3 (b)).

Dois grupamentos de trajetórias de parcelas de ar, com sete dias de integração, entre os dias 22-29 de agosto e entre 28 de agosto e 04 de setembro, são mostrados nas figuras 4.5 (a) e (b), respectivamente. As datas de finalização das trajetórias, mostradas nas figuras 4.5 (a) e (b), correspondem as datas das imagens das figuras 4.3 (a) e (b), respectivamente. Nas trajetórias finalizadas em 29 de agosto (figura 4.5 (a)), observou-se a ausência de movimento vertical das trajetórias, enquanto as parcelas de ar estavam sobre a região central do Brasil. Indicando o aprisionamento da fumaça abaixo de 700 hPa (aproximadamente 3 km). Observou-se movimento ascendente das parcelas de ar à frente do sistema frontal frio, na altura das latitudes 30°S, e também associado aos sistemas convectivos no extremo nordeste da Amazônia. No grupamento de trajetórias finalizadas no dia 04 de setembro (figura 4.5 (b)) observa-se a ocorrência freqüente de movimentos verticais das trajetórias, associados a eventos convectivos de menor escala em relação ao sistema frontal, mas ainda sensíveis ao modelo. O padrão da figura 4.5 (b) foi observado durante o período de transição da estação seca para a estação úmida.

Retro-trajetórias iniciadas em Cuiabá foram calculadas, a partir de vários níveis verticais, afim de auxiliar na interpretação das medidas de ozônio e aerossóis. A figura mostrada na lâmina 3 (em inglês "plate 3") do Apêndice C (página 12118), sumariza as retro-trajetórias iniciadas em 700 hPa, a partir de Cuiabá. As massas de ar que atingiram Cuiabá em baixos níveis foram originárias, predominantemente, na região do oceano Atlântico, com alguma recirculação do continente. Estas trajetórias serão incluídas na discussão dos resultados das me-

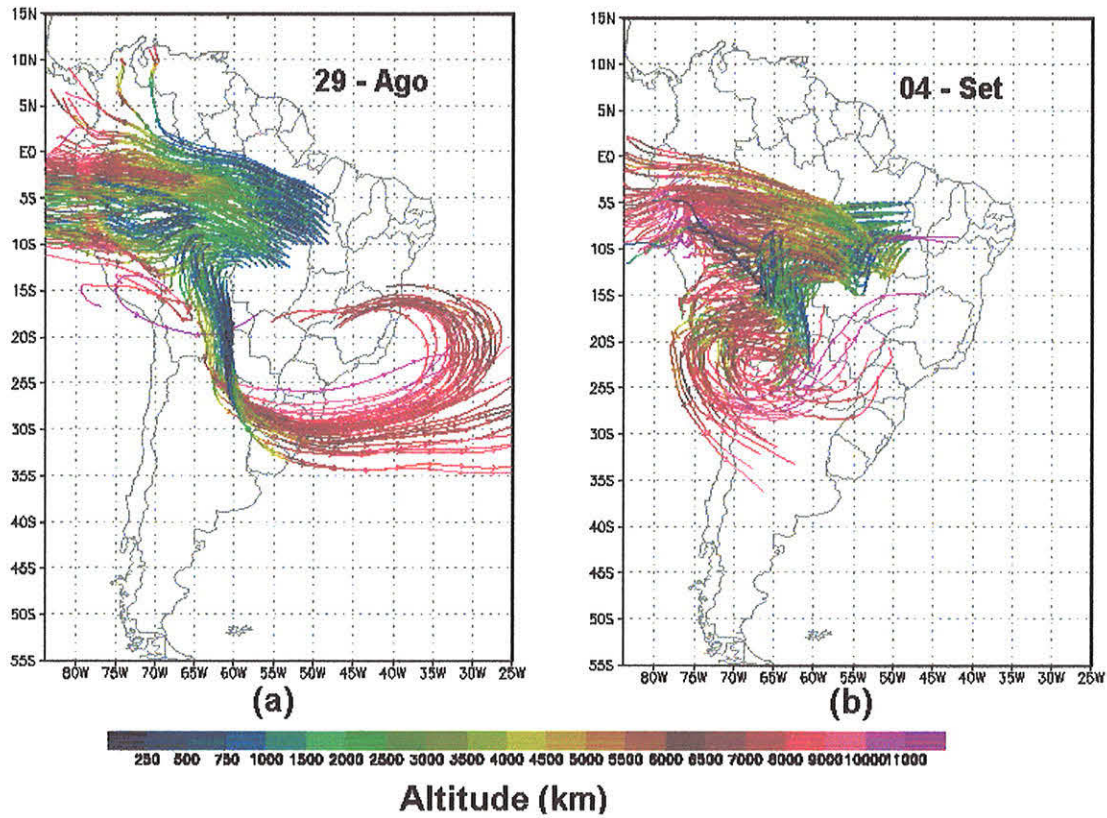


Figura 4.5: Grupamento de trajetórias de parcelas de ar, com 6 dias de integração, iniciadas a partir das principais áreas de queimadas à 1000 metros de altitude. Período de integração (a) 22 - 29 de agosto e (b) 28 agosto à 04 de setembro. A escala de cores indica a altitude das trajetórias.

didias experimentais, realizada na próxima seção.

4.4 Medidas de ozônio e aerossóis em Cuiabá durante o SCAR-B

Durante o experimento SCAR-B, foram realizadas medidas de diversos parâmetros atmosféricos na sede do INPE-Cuiabá (16°S, 56°W). Sondagens de ozônio foram lançadas a partir de Cuiabá, de 16 de agosto de 1995 a 16 de setembro de 1995. Em paralelo, foram lançadas radiosondagens convencionais, as quais realizaram medidas de perfis de pressão do ar ambiente, umidade relativa, temperatura ambiente e temperatura do instrumento. Durante este período, um total de 20 sondagens foram lançadas com sucesso. No mesmo período, um dos fotômetros solares da AERONET esteve em funcionamento no local e resultados de espessura óptica de aerossóis e vapor d'água precipitável foram obtidos a cada 15 minutos. Conduziu-se também medidas de "black-carbon" ao nível da superfície, utilizando-se um aetalômetro, com resolução temporal de 30 minutos.

Os resultados das sondagens possibilitaram uma avaliação da estrutura vertical da atmosfera. As medidas de aerossóis realizadas com o fotômetro solar são integradas na coluna atmosférica, e as concentrações de "black-carbon" fornecem, essencialmente, uma medida local da concentração da fumaça.

4.4.1 Sondagens de ozônio - resultados

As concentrações médias de ozônio troposférico em Cuiabá, ponderadas entre 1000 e 500 hPa, variaram entre 40 e 90 ppbv, entre 16 de agosto e 10 de setembro de 1995 (figura 4.6). Entre os dias 16-25 de agosto os níveis de ozônio observados foram da ordem de 50 ppbv. Este valor embora seja alto quando comparado à valores típicos da estação úmida (~ 15 ppbv), é baixo em relação ao restante do período. Um aumento na concentração do ozônio troposférico foi observado a partir do dia 26 de agosto, alcançando o máximo (~ 90 ppbv) em 29 de agosto. Durante os 10 primeiros dias de setembro foram observadas concentrações de ozônio entre 55 e 70 ppbv, em média.

Perfis verticais de ozônio, umidade relativa e temperatura, são mostrados nas

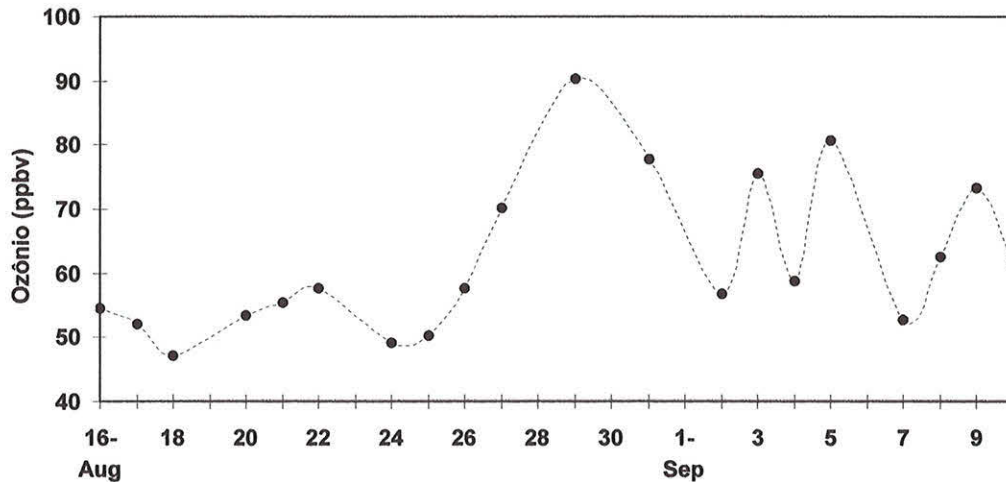


Figura 4.6: *Concentrações médias de ozônio entre 1000 e 500 hPa, ponderadas pela nível de pressão, a partir dos resultados das sondagens de ozônio em Cuiabá entre 16 de agosto e 10 de setembro de 1995.*

figuras 4.7 e 4.8, em dois períodos particulares. O período 1 foi entre 26 e 31 de agosto, e o período 2 entre 7 e 10 de setembro. No dia 26 de agosto (figura 4.7 (a)), os níveis de ozônio começaram a subir, iniciando a formação de uma camada em 700 hPa; observa-se ainda dois picos menores em 650 e 550 hPa. Em 27 de agosto (figura 4.7 (b)), observou-se uma camada de 100 ppbv de ozônio entre 700 e 500 hPa, e um intervalo limpo entre esta camada de ozônio e outra menos intensa em níveis baixos. No dia 29 de agosto, uma estreita pluma de 140 ppbv de ozônio foi registrada em 650 hPa (figura 4.7 (c)). No dia 31 de agosto, uma diminuição nas concentrações de ozônio é mostrada na figura 4.7 (d).

Os perfis verticais para o período 2 apresentam uma estrutura vertical diferente do período 1 (figura 4.8). O período entre 7 e 10 de setembro é caracterizado pela transição entre as estações seca e úmida. O sistema de alta pressão sobre a região central do Brasil havia sido dispersado, promovendo uma alteração na estratificação da estrutura vertical da atmosfera. A camada limite no período 2 é mais profunda, permitindo um maior movimento vertical e expandindo a coluna de ozônio troposférico até 500 hPa, com máximos de concentração em 700 hPa.

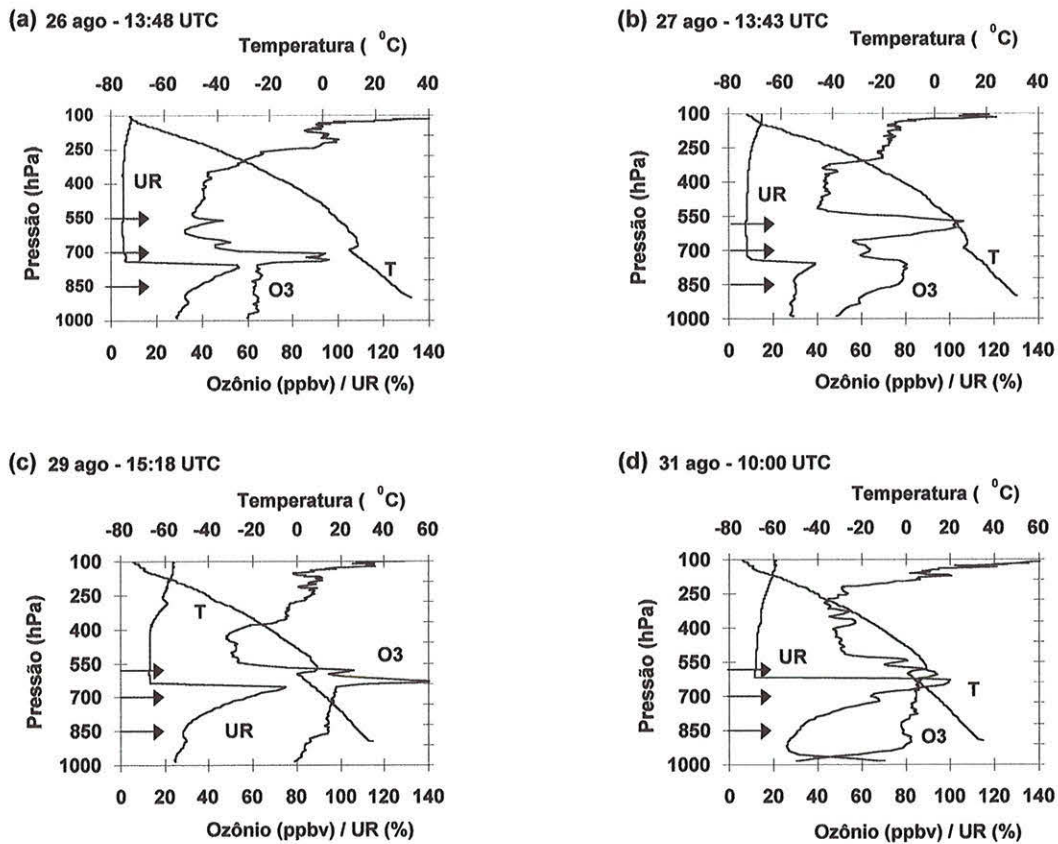


Figura 4.7: Resultados das sondagens de ozônio (ppbv), umidade relativa (%), e temperatura ($^{\circ}\text{C}$) em Cuiabá para o período 1: (a) 26 de agosto, (b) 27 de agosto, (c) 29 de agosto, (d) 31 de agosto. As setas indicam os níveis a partir dos quais foram inicializadas retro-trajetórias. A data e horário de lançamento é mostrado acima de cada gráfico.

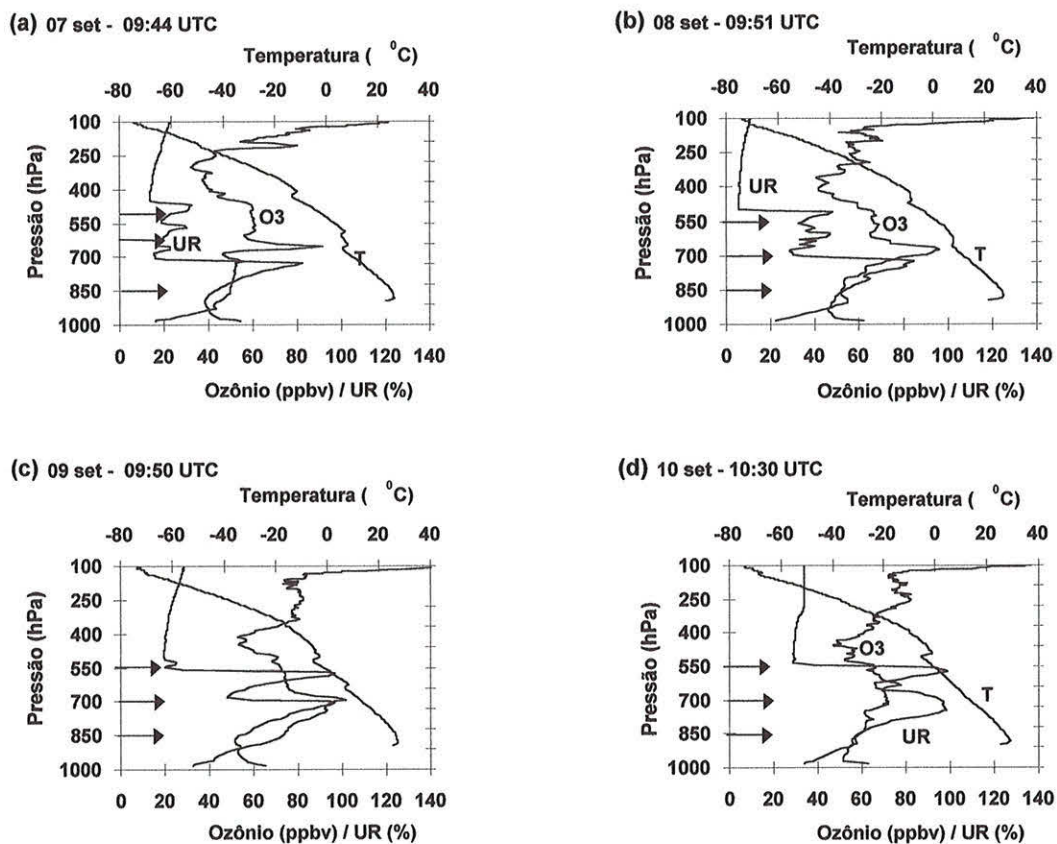


Figura 4.8: Resultados das sondagens de ozônio (ppbv), umidade relativa (%), e temperatura ($^{\circ}\text{C}$) em Cuiabá para o período 2: (a) 7 de setembro, (b) 8 de setembro, (c) 9 de setembro, (d) 10 de setembro. As setas indicam os níveis a partir dos quais foram inicializadas retro-trajetórias. A data e horário de lançamento é mostrado acima de cada gráfico.

4.4.2 Fotômetro solar e aetalômetro - resultados

Medidas de diversos parâmetros associados aos aerossóis mostraram um padrão de variabilidade diária similar ao do ozônio troposférico, entre os dias 16 de agosto e 10 de setembro em Cuiabá. Níveis relativamente baixos na primeira semana, entre os dias 16 e 23 de agosto, e uma elevação em torno do dia 29 foram observados. Na figura 4.9 apresenta-se médias diárias para as medidas de “black-carbon”, espessura óptica de aerossóis ($0.669 \mu\text{m} - \text{AOT}$), e vapor d’água precipitável.

As concentrações de “black-carbon”, ao nível da superfície em Cuiabá, apresentaram um ciclo diurno, com valores médios de concentração e variabilidade mais baixas entre 12:00 e 18:00 UTC. A figura 4.10 mostra um ‘dia médio’ no período, incluindo todas as medidas realizadas entre os dias 16 de agosto e 10 de setembro, nos horários indicados. O ciclo diurno do “black-carbon” relaciona-se ao ciclo diurno das queimadas (descrito na seção 4.2) e ao ciclo de evolução diurna da camada limite. A formação da camada limite noturna, como resultado do contato da primeira camada da atmosfera com a superfície, reduz o movimento vertical, promovendo um aumento da concentração da fumaça após o pôr do sol. As médias diárias de “black-carbon”, incluindo apenas as medidas tomadas entre 12:00 e 18:00 UTC, representam medidas na superfície de uma coluna bem misturada. Nos gráficos de correlação discutidos na seção seguinte, apenas medidas entre 12:00 e 18:00 UTC serão consideradas.

4.5 Relação observada entre os parâmetros medidos

Nesta seção discute-se a relação observada entre as concentrações de ozônio troposférico e de traçadores de aerossóis de queimada, de acordo com mudanças no padrão de circulação. A análise foca-se em dois períodos distintos, nos quais observou-se um aumento nas concentrações de ozônio e black-carbon e nos valores de AOT. O período 1, entre 26 e 31 de agosto, refere-se ao perfis verticais mostrados na figura 4.7. E o período 2, aos dias entre 07 e 10 de setembro (figura 4.8).

A concentração de “black-carbon” (figura 4.11(a)) e o vapor d’água preci-

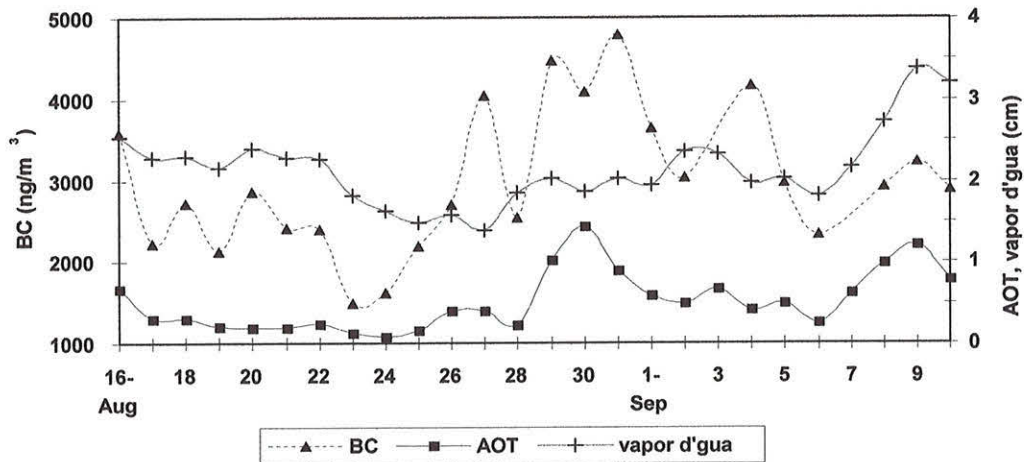


Figura 4.9: Série temporal com médias diárias de “black-carbon”, espessura óptica de aerossóis ($0.669 \mu\text{m}$ - AOT), e vapor d’água precipitável. No cálculo das médias foram considerados medidas entre 12:00 e 18:00 UTC.

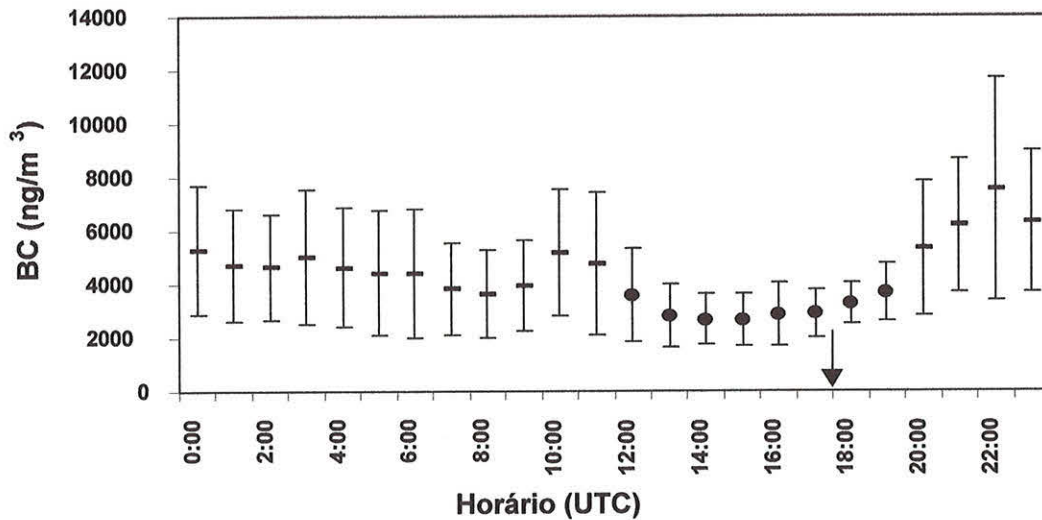
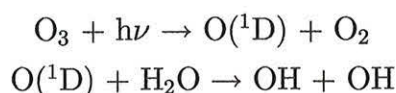


Figura 4.10: Concentrações médias de “black-carbon” para um “dia médio” entre 16 de agosto e 10 de setembro. Os círculos indicam horários com concentrações e variabilidade mais baixas.

pitável (figura 4.11(b)) apresentam, ambos, uma relação com o AOT ($0,669 \mu\text{m}$). Para valores altos de AOT ($\gtrsim 0,7$) observou-se um desdobramento no padrão da relação. No período 1 (símbolo \bullet) observou-se valores mais altos na concentração de “black-carbon” e valores mais baixos de vapor d’água precipitável que os valores observados durante o período 2 (símbolo $+$), para mesma faixa de valores de AOT.

A figura 4.12 mostra os valores médios de ozônio troposférico, ponderados pela altitude, como função do AOT, medidas simultâneas. A relação do ozônio versus AOT repete o mesmo padrão de desdobramento observado anteriormente para o “black-carbon” e vapor d’água. Durante o período 1 as concentrações de ozônio na atmosfera foram superiores em relação ao período 2. Os coeficientes de ajuste linear das curvas ($\text{O}_3 \times \text{AOT}$) e ($\text{O}_3 \times \text{BC}$) foram 0,74 e 0,63, respectivamente. Neste ajuste foram excluídos os últimos dias de setembro, os quais caracterizaram a transição da estação seca para a estação úmida.

Os valores mais baixos na concentração de ozônio correspondem à maiores quantidades de vapor d’água na atmosfera. Esta observação é coerente com outras observações de anti-correlação entre ozônio e vapor d’água, feitas na baixa e média troposfera [Kley *et al.*, 1996]. A principal razão desta anti-correlação é o fato que a destruição fotoquímica do ozônio leva à formação do radical livre $\text{O}(^1\text{D})$, o qual reage com o vapor d’água resultando no radical hidroxil:



Este processo é o responsável majoritário pela destruição de ozônio troposférico na baixa troposfera. Quanto maior a quantidade de vapor d’água presente na atmosfera, maior a perda de ozônio e mais baixas são as concentrações observadas [Thompson, 1994].

4.6 Origem das massas de ar em Cuiabá

Retro-trajetórias inicializadas em Cuiabá foram calculadas, a partir de vários níveis verticais, afim de avaliar se a origem das massas de ar explicam as variações

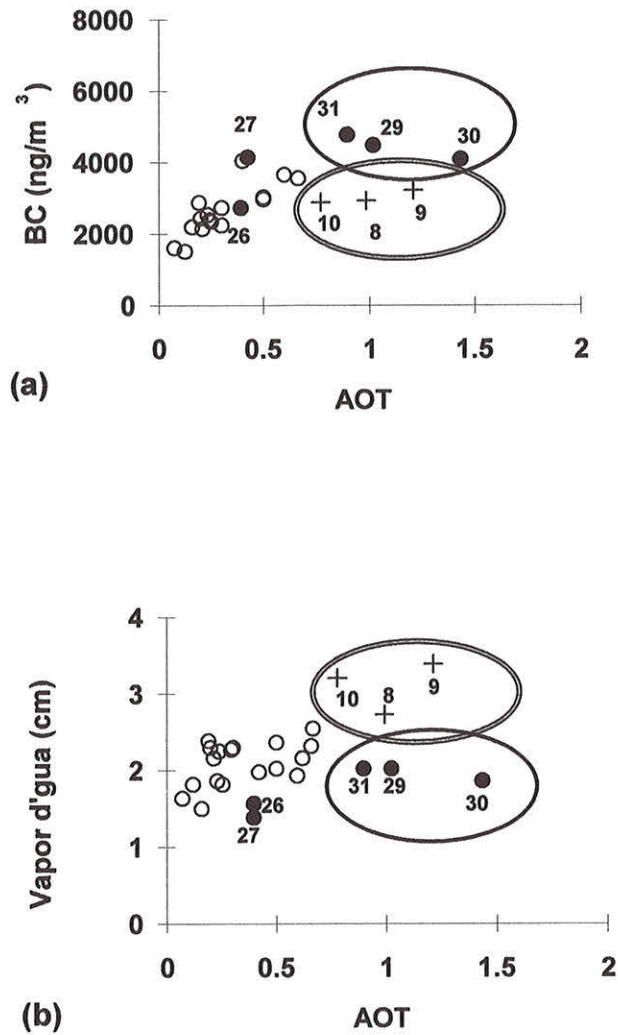


Figura 4.11: (a) Medidas ao nível da superfície de “black-carbon” e (b) vapor d’água precipitável versus espessura óptica de aerossóis ($0.669 \mu\text{m}$ - AOT). O símbolo (o) é utilizado em dias com baixo AOT. O símbolo (+), no interior das elipses duplas, indica dias em que o AOT aumentou devido ao acúmulo de fumaça durante um período de alta subsidência. Os dias em que o aumento no AOT correspondem a um aumento no vapor d’água são representados por (●) no interior das elipses simples.

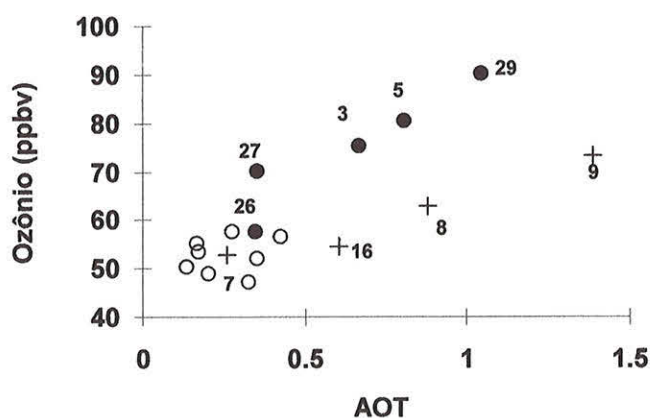


Figura 4.12: Ozônio médio (entre 1000 e 500 hPa) como função da espessura óptica de aerossóis ($0,669 \mu\text{m}$ - AOT). Um padrão similar de separação que ocorreu para o “black-carbon” e vapor d’água (figura 4.11) se repete para o ozônio.

nas medidas de ozônio, e nos diferentes padrões de correlação observados para os dois períodos. Estas retro-trajetórias estão nas lâminas 4 e 5 do Apêndice C (páginas 12122 - 12125). A escala de cores nas lâminas 4 e 5 indicam a altitude das trajetórias (em km).

Nos dias 26 e 27 de agosto (lâmina 4 (a) e (b) do apêndice C, página 12122) as retro-trajetórias foram de leste nos 2 primeiros dias de integração, após isso as trajetórias indicam uma circulação anticiclônica, proveniente do continente. No dia 29 de agosto (lâmina 4 (c) e (d) do apêndice C, páginas 12123), o padrão é semelhante, mas com uma componente de nordeste nos 3 primeiros dias no nível de 700 hPa. A espessura óptica de aerossóis medida em Brasília ($48,5^{\circ}\text{O}$, $15,5^{\circ}\text{S}$) no período 26-29 de agosto foi sempre inferior a 0,1 ($0,669 \mu\text{m}$), indicando massas de ar extremamente limpas. Em alguns níveis observou-se uma circulação sobre a costa litorânea, por cima de áreas urbano/industriais; nos outros a circulação ocorreu sobre áreas oceânicas. Em ambos os casos, as parcelas de ar foram originárias da região do corredor de exportação das emissões de queimadas em direção ao Atlântico, na altura da latitude 30°S . Esta circulação sugere que o aumento nas concentrações de ozônio, observadas em Cuiabá durante este período,

poderiam ser uma superposição da produção de ozônio a partir de emissões locais de queimadas, aprisionadas abaixo da camada de inversão em um período de intensa subsidência; e produção pós-convectiva de ozônio a partir de NO_x transportado verticalmente e/ou produzido por relâmpagos [Thompson *et al.*, 1996; Lelieveld & Crutzen, 1990; 1994]. Em adição, a recirculação da pluma regional que cobre parte do Brasil durante a estação de queimadas estaria introduzindo contribuições adicionais de ozônio originárias de áreas urbano/industriais.

As retro-trajetórias para o período 2 (lâmina 5 do apêndice C, páginas 12124 - 12125) caracterizam um padrão de circulação mais localizado. O movimento das parcelas de ar é mais lento (em relação ao período 1) e, predominantemente, de nordeste no nível de 700 hPa. Indicando que o máximo das concentrações de ozônio observadas em 700 hPa é de origem regional.

4.7 Evidências experimentais: observações do “Cloud Lidar System”

As lâminas 6 (a) e (b) do apêndice C (páginas 12126 - 12127) mostram imagens da estrutura vertical da atmosfera detectadas pelo sistema CLS “Cloud Lidar System” (ER-2), nos dias 27 de agosto e 07 de setembro, respectivamente, nas proximidades de Cuiabá. Os vôos de números 95165 e 95169, referem-se a vôos entre as cidades de Cuiabá e Vilhena - RO, as latitudes e longitudes dos percursos estão indicadas no topo de cada uma das figuras.

Em 27 de agosto, concentrações de ozônio entre 50 e 80 ppbv foram observadas abaixo da camada de inversão em ~ 700 hPa ($\sim 3,0$ km). Uma segunda camada de ozônio, com concentrações de 100 ppbv, foi observada em ~ 600 hPa ($\sim 4,5$ km) (figura 4.7(b)). As imagens do CLS mostram que esta segunda camada de ozônio (600 hPa) não corresponde à uma segunda camada de aerossóis. Os dados do coeficiente de retro-espalhamento de aerossóis, derivados a partir das medidas do CLS (lâmina 6 (a) - apêndice C), mostram os aerossóis limitados à coluna abaixo de 3 km, aprisionados pela inversão térmica.

A figura 4.8(a) mostram um perfil de ozônio, com concentrações da ordem de 50 ppbv da superfície até 500 hPa, e uma fina e intensa camada (~ 95 ppbv) em

600 hPa, correspondente à uma dupla inversão térmica. Para o vôo do dia 07 de setembro (lâmina 6 (b) - apêndice C), os dados do CLS mostram os aerossóis também em níveis mais altos, coexistindo com a camada de ozônio.

As observações do CLS são consistentes com os padrões da análise das retro-trajetórias, obtidos para os dois períodos. Recirculação de emissões de queimada, com possíveis contribuições de áreas urbano/industriais são próprias do período 1. Por outro lado, o período 2 corresponde a um padrão de circulação mais localizado, e os aerossóis e gases medidos em Cuiabá correspondem a emissões mais recentes e locais.

Capítulo 5

Conclusões e perspectivas futuras

5.1 Resultados do experimento LBA-CLAIRE: estação úmida

Observações do sensor NIMBUS-7 TOMS mostraram o transporte de aerossóis minerais originários do continente Africano sobre o Oceano Atlântico em direção a oeste, inseridos nas CAS's. Embora as limitações técnicas do TOMS na detecção de aerossóis próximos à superfície, principalmente para baixas concentrações, não permitirem a observação de eventos de penetração e deposição de aerossóis do Saara na bacia Amazônica, isto foi constatado por meio de medidas *in situ* de aerossóis em Balbina em conjunção com as análises de trajetórias de parcelas de ar. Este estudo evidenciou o papel da circulação de grande escala na ocorrência destes eventos. O posicionamento relativo dos três anticiclones sobre o Atlântico equatorial produz circulações altamente eficientes na canalização do escoamento em baixos níveis em direção à costa norte/nordeste das Guianas e do Brasil. A ocorrência de fortes eventos convectivos no interior da bacia Amazônica atuam para romper a estabilidade das CAS's sobre o oceano Atlântico, próximas da costa norte/nordeste da América do Sul, promovendo a deposição seca de aerossóis na bacia Amazônica.

A análise da composição elementar de aerossóis realizadas em Balbina evidenciaram um aumento nas concentrações de aerossóis minerais, de origem tanto terrestre quanto marinha, contendo majoritariamente Na, Al, Si, Ca, Ti, Mn,

Fe, entre outros, por fatores entre 6 a 20 vezes em relação aos valores de “background”, durante a ocorrência de um destes episódios de deposição de aerossóis do Saara na região Amazônica.

As análises estatísticas reforçaram a identificação deste episódio de importação de aerossóis do Saara. Uma análise de grupos considerando o agrupamento de amostras identificou as amostras de aerossóis coletadas como pertencentes a três grupos distintos: diurno, noturno e período Saara. A separação do episódio Saara ficou evidente também considerando o agrupamento de variáveis, para o período completo e excluindo as amostras do episódio Saara.

A análise de trajetórias mostrou que, durante todo o período do experimento, as massas de ar em Balbina eram provenientes da região do oceano Atlântico impactadas pelas CAS's e da costa oeste do continente africano. Durante o episódio Saara detectou-se uma diferença na estrutura vertical atmosférica, associada ao fato de que as massas de ar provinham de níveis mais baixos do que no restante do período de amostragem, conforme mostrado pela estatística das posições das parcelas de ar. Para as amostras coletadas durante o episódio Saara, observou-se uma correlação entre algumas concentrações elementares medidas em Balbina e a distribuição vertical das parcelas de ar ao longo do transporte. Apesar do número de amostras do período do Saara ser relativamente pequeno, a análise se tornou confiável devido à coerência dos resultados. Esta correlação só ocorreu para os elementos traçadores de aerossóis do Saara e marinho, enquanto que no caso dos elementos biogênicos esta correlação claramente não foi observada. As relações observadas mostraram o efeito de “diluição” destas massas de ar carregadas de aerossóis, devido a entrada de ar limpo proveniente de níveis altos, ao longo do transporte. Ou seja, quanto mais eficiente foi a entrada de ar limpo proveniente de níveis altos, durante o transporte da CAS desde a África até a bacia Amazônica, maior foi o efeito de diluição e menor foi a concentração observada de elementos traçadores de aerossóis do Saara e marinho em Balbina. Os elementos traços biogênicos não apresentam correlação com a entrada de ar proveniente de níveis altos. Os aerossóis biogênicos são produzidos localmente e a influência da atmosfera sobre eles ocorre através do estabelecimento das condições atmosféricas ao nível da superfície, as quais são fatores determinantes na produção biogênica de aerossóis.

Este trabalho evidenciou uma associação dos aerossóis de origem biogênica ao material particulado grosso, e uma dependência positiva destes com a umidade relativa e negativa com a temperatura. Essas dependências sugerem um favorecimento da ocorrência de processos de crescimento dos aerossóis orgânicos durante a noite. O aumento das concentrações de elementos biogênicos, tais como K e P, associado ao aumento da concentração de aerossóis na fração grossa sugere também a ocorrência de outros processos, além da absorção de água, de formação e/ou crescimento de aerossóis orgânicos durante a noite.

No caso do fósforo, reconhecido como um fator limitante ao crescimento da floresta [Jordan, 1985], este trabalho evidenciou a importância da ciclagem local na disponibilização deste elemento, a partir das observações de uma associação majoritária do fósforo com o material particulado grosso e de altas concentrações noturnas em relação às diurnas, reduzindo a possibilidade de perda por transporte atmosférico deste elemento. Estas observações minimizam a importância do influxo de fósforo do Saara através das CAS's [Swap *et al.*, 1992] no ciclo biogeoquímico deste elemento. Entretanto, o transporte de aerossóis do Saara, ricos em ferro, cálcio, alumínio e silício, entre outros, pode ter uma importância, até então não valorizada, na ciclagem deste nutriente. Segundo Jordan [1985], o fósforo está presente no solo da Amazônia, em níveis razoavelmente altos, o principal problema refere-se à disponibilização deste em sua forma solúvel, processo este favorecido pela presença de silicatos e regulação do nível de acidez do solo. Por outro lado, a presença de elementos minerais, tais como ferro e alumínio, é importante na fixação do fósforo no solo, evitando perdas por lixiviação.

Também durante a estação úmida, foi observada na parte mais ao norte da América do Sul a presença de traçadores de queimadas, provocadas por um longo período de estiagem imposto pelo fenômeno ENSO. Particularmente, foi observada em níveis altos (acima de 10 km), uma massa de ar contendo produtos envelhecidos de emissões de queimadas, principalmente gases, uma vez que os aerossóis sofrem intensa deposição úmida. Cálculo de trajetórias utilizando a técnica "convectiva" elucidou a origem desta massa de ar, identificada como sendo a região de queimadas em Roraima e sendo transportada para a alta troposfera via processos de convecção profunda. Ressalta-se a importância deste transporte na remoção de poluentes da camada limite planetária para a alta troposfera em uma

escala de horas, onde a velocidade do vento é mais intensa e a vida-média dos gases pode aumentar. Isto pode levar a uma mudança de escala do problema, ao inserir os poluentes na circulação global do planeta e ao contribuir na formação de ozônio troposférico por reações químicas.

5.2 Resultados do experimento SCAR-B: estação seca

As características fisiográficas e de circulação de grande escala durante o inverno no hemisfério Sul, produzem dois corredores de exportação de poluentes emitidos por queimadas: (1) em direção ao oceano Pacífico, entre as latitudes 10°N e 10°S ; e (2) em direção ao oceano Atlântico, na altura da latitude 30°S , claramente identificados pelos resultados do modelo de trajetórias desenvolvido.

O transporte em direção ao Pacífico não foi observado com a frequência e intensidade indicada pelo modelo através dos diversos sistemas de detecção de fumaça, via sensoriamento remoto, ativos durante o período do experimento SCAR-B. A ocorrência de sistemas convectivos no noroeste da região Amazônica, associados à ZCIT, é freqüente, mesmo durante a estação seca. Espera-se, portanto, que o processo de transporte predominante na região seja a convecção profunda, e que durante a interação da fumaça com as nuvens os componentes solúveis da fumaça, entre eles os aerossóis, sejam eficientemente removidos, a exemplo do estudo de caso de transporte convectivo durante a estação úmida.

O transporte atmosférico em direção ao Atlântico está associado à passagem de frentes frias sobre as regiões sul e sudeste do Brasil. Durante estes episódios, a advecção vertical é favorecida e o transporte em larga escala é intensificado. As altitudes das trajetórias chegam a valores superiores a 8 km, quando atingem o cinturão de convecção da frente fria. E em altos níveis, as trajetórias direcionam-se para leste. O corredor de exportação de emissões de queimada, na direção do Atlântico, confirmou-se nas observações de satélite.

Uma correlação entre as concentrações de ozônio troposférico e a espessura óptica de aerossóis foi observada em Cuiabá, durante o experimento SCAR-B. Concentrações mais altas de O_3 foram observadas para dias com valores mais

baixos de vapor d'água. A espessura óptica apresentou uma relação com "black-carbon" e vapor d'água precipitável. Estas relações são dependentes do padrão de circulação dominante. Todos os gráficos de correlação apresentaram um padrão de desdobramento para valores altos de espessura óptica ($> 0,5$ no canal $0,669 \mu m$). Comparando-se dois episódios com altas concentrações de O_3 e de aerossóis, observou-se que na última semana de agosto o aumento na espessura óptica corresponde à concentrações de "black-carbon" mais altas que as observadas entre os dias 7 e 10 de setembro. Por outro lado, os valores de vapor d'água precipitável foram mais baixos na última semana de agosto do que o foram para o período de setembro. Estas observações são concordantes com os níveis de O_3 mais altos para a última semana de agosto.

As análises de retro-trajetórias a partir de Cuiabá sugerem que o enriquecimento de O_3 observado na última semana de agosto pode ser uma superposição de dois fatores: (1) emissões de queimadas locais aprisionadas por uma inversão térmica associada a uma forte subsidência, (2) recirculação da pluma regional que cobre parte do Brasil durante a estação de queimadas, além de uma provável contribuição de emissões urbano/industriais. Comparação das medidas do sistema de LIDAR a bordo do avião ER-2 e dos perfis verticais de O_3 confirmam a existência de uma camada de O_3 não correlacionada com aerossóis, indicando o transporte a longa distância de O_3 durante a última semana de agosto. Esta camada de O_3 pode ter origem associada a: (1) uma considerável produção de O_3 enquanto a fumaça estava ainda aprisionada na região do Brasil Central, e (2) uma produção pós-convectiva de O_3 a partir de NO produzidos por descargas elétricas dentro de sistemas convectivos.

5.3 Sugestões de projetos futuros

A metodologia introduzida neste trabalho foi importante como ferramenta auxiliar na interpretação das medidas de aerossóis e gases realizadas em ambas as estações. Bem como na compreensão fenomenológica dos mecanismos de transporte atmosférico de elementos traços. A evolução natural deste trabalho segue o desenvolvimento e implementação de modelos de transporte de gases e aerossóis que contemplem também os processos de deposição seca e úmida, formação e

envelhecimento de partículas e gases, entre outros. Um possível modelo a ser utilizado como ponto de partida seria o modelo CARMA "Community Aerosol Model". Trata-se de um modelo de aerossóis originalmente desenvolvido por Toon *et al.* [1988]. Entre diversas aplicações, este modelo (incluindo posteriores aprimoramentos à versão original) tem sido utilizado com sucesso no estudo de transporte de aerossóis do Saara sobre o oceano Atlântico [Westphal *et al.*, 1988]; e no estudo do transporte de aerossóis em plumas de queimadas, em regiões de latitudes médias [Westphal *et al.*, 1991]. O trabalho consistiria de duas fases: (1) implementação de uma interface com o modelo RAMS, a exemplo do que foi feito com o modelo de trajetórias, e (2) uma adequação das parametrizações para aerossóis de queimadas e para as condições atmosféricas em regiões tropicais.

As observações referentes às propriedades dos aerossóis biogênicos, são preliminares e ainda não completamente conclusivas, devido a vários fatores. O período de amostragem foi relativamente curto e ainda, há que se considerar que, neste trabalho, analisaram-se amostras de aerossóis coletadas em uma única localidade, a qual não necessariamente representa o comportamento dos diferentes ecossistemas internos da floresta Amazônica. Medidas de aerossóis por períodos mais longos e em diferentes ecossistemas, com a atenção voltada às propriedades e comportamento dos aerossóis orgânicos são ainda necessárias.

Diversos autores têm observado que partículas orgânicas, principalmente em atmosferas marinhas, usualmente consideradas insolúveis, atuam como núcleos de condensação de nuvens (NCN) [Novakov & Penner, 1993; RiveraCarpio *et al.*, 1996]. Cruz e Pandis [1997; 1998] observaram que aerossóis orgânicos, primários e secundários, e partículas inorgânicas envoltas em corbeturas orgânicas, tornam-se NCN em condições de supersaturação. Thomas *et al.* [1999] observaram, em laboratório, que superfícies orgânicas hidrofóbicas, utilizadas como modelos de aerossóis orgânicos, são susceptíveis a processos de adsorção de água nas imperfeições superficiais, podendo a água penetrar através de coberturas orgânicas e ativar substratos inorgânicos, por exemplo NaCl. Os resultados preliminares deste trabalho sugerem fortemente uma averiguação objetivando a elucidar o potencial dos aerossóis biogênicos como NCN, e a importância destes na definição da microfísica de nuvens na bacia Amazonica. Adicionalmente, propõe-se a utilização da potencialidade do módulo de microfísica explícita do modelo RAMS

na simulação de sistemas convectivos na região Amazônica, incluindo aerossóis biogênicos como núcleos de condensação de nuvens. Este estudo permitirá, inclusive, uma avaliação do impacto das atividades de desflorestamento nas circulações de grande escala e conseqüentemente no clima global do planeta Terra.

Bibliografia

[1]

Andreae, M. O., Biomass burning: Its history, use and distribution and its impact on environmental quality and global climate. Em: Global Biomass Burning: Atmospheric, Climatic and Biospheric Implications, editado por J.S. Levine, pp. 3-21, MIT Press, Cambridge, Mass., 1991.

Andreae, M. O. e P. J. Crutzen, Atmospheric aerosols: biogeochemical sources and role in atmospheric chemistry, *Science*, 276, 1052-1058, 1997.

Andreae, M. O., Comunicação pessoal, março de 1999.

Andreae, M. O., P. Artaxo, H. Fischer, J. P. F. Fortuin, J.-M. Grégoire, P. Hoor, R. Kormann, R. Krejci, L. Lange, J. Lelieveld, K. M. Longo, W. Peters, M. de Reus, B. Scheeren, M. A. de Silva Dias, J. Strøm, and J. Williams, Transport of biomass burning smoke to the upper troposphere by deep convection in the equatorial region, artigo em preparação para ser submetido à revista *Science*, 1999.

Arakawa, A. e V. R. Lamb, Computational design of the basic dynamical processes in the UCLA general circulation model. Em *Methods in Computational Physics*, 17, J. Chang, Academic, 1977.

Artaxo, P., H. Storms, F. Bruynseels, R. Van Grieken, e W. Maenhaut, Composition and sources of aerosols from the Amazon basin, *J. Geophys. Res.*, 93, 1605-1615, 1988.

- Artaxo, P., W. Maenhaut, H. Storms, e R. Van Grieken, Aerosol characteristics e sources for the Amazon basin during the wet season, *J. Geophys. Res.*, 95, 16971-16985, 1990.
- Artaxo, P., F. Gerab, M. A. Yamasoe, e J. V. Martins, Fine mode aerosol composition in three long-term atmospheric monitoring sampling stations in the Amazon Basin, *J. Geophys. Res.*, 99, 22857-22867, 1994.
- Artaxo, P., E. T. Fernandes, J. V. Martins, M. A. Yamasoe, P. V. Hobbs, W. Maenhaut, e K. M. Longo, A. Castanho, Large-scale aerosol source apportionment in Amazonia, *J. Geophys. Res.*, 103, 31837-31847, 1998.
- Avissar, R., e R. A. Pielke, A parameterization of heterogeneous land surface for atmospheric numerical models and its impact on regional meteorology, *Mon. Wea. Rev.*, 117, 2113-2136, 1989.
- Barnes, R. A., A. R. Bandy, e A. L. Torres, Electrochemical concentration cell ozonesonde accuracy and precision, *J. Geophys. Res.*, 90, 7881-7877, 1985.
- Barnes, S. L., Mesoscale objective map analysis using weighted time series observations, NOAA Tech. Memo., ERL NSSL-62, pp. 60 [NTIS COM-73-10781], 1973.
- Baron, P. A., e K. Willeke, Gas and Particle Motion. Em: Aerosol Measurements: Principles, Techniques, and Applications, editado por Willeke, K., Baron, P. A., New York, Van Nostrand Reinhold, 23-40, 1992.
- Beauford, W., J. Barber, e A. R. Barringer, Release of particles containing metals from vegetation into the atmosphere, *Science* 195, 571-573, 1977.
- Browell, E. V., M. A. Fenn, C. F. Butler, W. B. Grant, M. B. Clayton, J. Fishman, A. S. Bachmeier, B. E. Anderson, G. L. Gregory, H. E. Fuelberg, J. D. Bradshaw, S. T. Sandlm, D. R. Blake, B.G. Heikes, G. W. Sachse, H. B. Singh, e R. W. Talbot, Ozone and aerosol distributions and air mass characteristics over the South Atlantic Basin during the burning season, *J. Geophys. Res.*, 101, 24043-24068, 1996.

- Chen, C., e W. R. Cotton, A one-dimensional simulation of the stratocumulus-capped mixed layer. *Boundary-Layer Meteorology*, 25, 289-321, 1983.
- Chiapello, I., J. M. Prospero, J. R. Herman, e N. C. Hsu, Detection of mineral dust over the North Atlantic Ocean and Africa with the Nimbus 7 TOMS, *J. Geophys. Res.*, 104, 9277-9291, 1999.
- Climanálise: Boletim de Monitoramento e Análise Climática, INPE/MCT, agosto de 1995.
- Climanálise: Boletim de Monitoramento e Análise Climática, INPE/MCT, Vol. 13, N. 03, março de 1998.
- Climanálise: Boletim de Monitoramento e Análise Climática, INPE/MCT, Vol. 14, N. 04, abril de 1998.
- Correia, A. L., Aerossóis atmosféricos na Antártica: sazonalidade, composição elementar e relação com El Niño. Dissertação de mestrado, Instituto de Física, Universidade de São Paulo, 1998.
- Crozat, G., Sur l'émission d'un aérosol riche en potassium par la forêt équatoriale, *Tellus*, 31, 52-57, 1979.
- Crutzen, P. J., L. E. Heidt, J. P. Krasnec, W. H. Pollock, e W. Seiler, Biomass burning as a source of the atmospheric gases CO, H₂, NO₂, NO, CH₃Cl and COS, *Nature*, 282, 253-256, 1979.
- Crutzen, P. J., e J. G. Goldammer (Eds.), *Fire in the Environment: The Ecological, Atmospheric and Climatic Importance of Vegetation Fires*, John Wiley, New York, 1993.
- Cruz, C. N., e S. N. Pandis, A study of the ability of pure secondary organic aerosol to act as cloud condensation nuclei, *Atmos. Environ.*, 31, 2205-2214, 1997.
- Cruz, C. N., e S. N. Pandis, The effect of organic coatings on the cloud condensation nuclei activation of inorganic atmospheric aerosol, *J. Geophys. Res.*, 103, 13111-13123, 1998.

- DeAngelis, M., e A. Gaudichet, Saharan dust deposition over Mount Blanc (French Alps) during the last 30 years, *Tellus* 43B, 61-75, 1991.
- Delmas, R., e J. Servant, Atmospheric balance of sulphur above equatorial forest, *Tellus*, Ser. B, 35, 110-120, 1983.
- Delumea, R., L. C. Chua, e E. Macias, Determination of elemental carbon component of soot in ambient aerosol samples, *Atmos. Environ.* 14, 647-52, 1980.
- Dutton, J. A., e G. H. Fichtl, Approximate equations of motion for gases and liquids, *J. Atmos. Sci.*, 26, 241-254, 1969.
- Echalar, F., Estudo da estrutura de fontes de aerossóis em Cubatão com o uso de PIXE e modelos receptores. Dissertação de mestrado, Instituto de Física, Universidade de São Paulo, 1991.
- Echalar, F., P. Artaxo, J. V. Martins, M. Yamasoe, e F. Gerab, Long-term monitoring of atmospheric aerosols in the Amazon basin: Source identification and apportionment, *J. Geophys. Res.*, 103, 31849-31864, 1998.
- Fearnside, P. M., Causes of Deforestation in the Brazilian Amazon. Em: *The Geophysiology of the Amazonia: Vegetation and Climate Interactions*, editado por R. E. Dickinson, New York: John Wiley & Sons, pp. 37-61, 1987.
- Fearnside, P. M., Deforestation in Brazilian Amazonia as a Source of Greenhouse Gases. Em: *Global Biomass Burning: Atmospheric Climate and Biophic Implications*, editado por J. S. Levine, MIT Press, Cambridge, Mass., 1991.
- Fehsenfeld, F., J. Calvert, R. Fall, P. Goldan, A. B. Guenther, C. N. Hewitt, B. Lamb, S. Liu, M. Trainer, H. Westberb, e P. Zimmerman, Emissions of volatile organic compounds from vegetation and the implications for atmospheric chemistry, *Global Biogeochemical Cycles*, Vol. 6, N. 4, 389-430, 1992.

- Fishman, J., J. M. Hoell Jr., R. D. Bendura, R. J. McNeal, e V. W. J. H. Kirchhoff, NASA GTE TRACE A Experiment (September-October 1992): Overview, *J. Geophys. Res.*, 101, 23865-23879, 1996.
- Freitas, S. R., Modelagem Numérica do Transporte e das Emissões de Gases Traços e Aerossóis de Queimadas no Cerrado e Floresta Tropical, tese de doutorado, Instituto de Física, Universidade de São Paulo, 1999.
- Freitas, S. R., K. M. Longo, M. A. F. Silva Dias, e P. Artaxo, Numerical modeling of air mass trajectories from the burning areas of the amazon basin, *An. Acad. Bras. Ci.*, Vol. 68 (Supl. 1), 1996.
- Fritsch, J. M., e C. F. Chappel, Numerical prediction of convectively driven mesoscale pressure system. Part I: Convective parameterization, *J. Atmos. Sci.*, 37, 1722-1733, 1980.
- Gerab, F., Técnicas analíticas nucleares aplicadas à medida em larga escala de aerossóis atmosféricos na região Amazônica, tese de doutoramento, Instituto de Física, Universidade de São Paulo, 1996.
- Greco, S., R. Swap, M. Garstang, S. Ulanski, M. Shipham, R. C. Harriss, R. Talbot, M. O. Andreae, e P. Artaxo, Rainfall and surface kinematic conditions over central Amazonia during ABLE 2B, *J. Geophys. Res.*, 95, 17001-17014, 1990.
- Gregory, G. L., E. V. Browell, L. S. Warren, e C. H. Hudgins, Amazon basin ozone and aerosol: wet season observations, *J. Geophys. Res.*, 95, 16903-16912, 1990.
- Guenther, A., C. N. Hewitt, D. Erickson, R. Fall, C. Geron, T. Graedel, P. Harley, L. Klinger, M. Lerdau, W. A. McKay, T. Pierce, B. Scholes, R. Steinbrecher, R. Tallamraju, J. Taylor, e P. Zimmerman, A global model of natural volatile organic compound emissions, *J. Geophys. Res.*, 100, 8873-8892, 1995.
- Hansen, A. D. A., H. Rosen, e T. Novakov, Real time measurement of aerosol particles, *Appl. Opt.*, 21, 3060-3062, 1982.

- Hao, W. M., M. J. Liu, e P. J. Crutzen, Estimates of annual and regional release of CO₂ and other trace gases to the atmosphere from fires in the tropics, based on the FAO statistics for the period 1975-1980. Em: Fire in the tropical biota: Ecosystem processes and global challenges, editado por J. G. Goldammer, Ecological Studies 84. Berlin-Heidelberg: Springer-Verlag, pp. 440-462, 1990.
- Hill, G. E., Factor controlling the size and spacing of cumulus clouds as revealed by numerical experiments, *J. Atmos. Sci.*, 31, 646-673, 1974.
- Hoffmann, T., J. R. Odum, F. Bowman, D. Collins, D. Klockow, R. C. Flagan, e J. H. Seinfeld, Formation of organic aerosols from the oxidation of biogenic hydrocarbons, *J. Atmos. Chem.*, 26, 189-222, 1997.
- Hoffmann, T., R. Bandur, U. Marggraf, e Linscheid, Molecular composition of organic aerosols formed in the α -pinene/O₃ reaction: Implications for new particle formation process, *J. Geophys. Res.*, 103, 25569-25578, 1998.
- Hoke, J. E., e R. A. Anthes, The initialization of numerical models by a dynamic-initialization technique, *Mon. Wea. Rev.*, 104, 1551-1556, 1976.
- Holben, B. N., A. Setzer, T. F. Eck, A. Pereira, e I. Slutsker, Effect of dry season biomass burning on Amazon basin aerosol concentrations and optical properties, *J. Geophys. Res.*, 101, 19465-19481, 1996.
- Hsu, N.C., J. R. Herman, O. Torres, B. N. Holben, D. Tanre, T. F. Eck, A. Smirnov, B. Chatenet, e F. Lavenu, Comparisons of the TOMS aerosol index with Sun-photometer aerosol optical thickness: Results and applications, *J. Geophys. Res.*, 104, 6269-6279, 1999.
- Jacob, D. J., B. G. Heikes, S.-M. Fan, J. A. Logan, D. L. Mauzerall, J. D., Bradshaw, H. B. Singh, G. L. Gregory, R. W. Talbot, D. R. Blake, e G. W. Sachse, Origin of ozone and NO_x in the tropical troposphere: A photochemical analysis of aircraft observations over the South Atlantic basin. *J. Geophys. Res.*, 101, 24,235- 24,250, 1996.

- Johansson, S. E., Introduction to PIXE. Em: Particle-Induced X-Ray Emission Spectrometry, editado por S. E. Johansson, J. L. Campbell, K. G. Malmqvist. New York, John Wiley & Sons, pp.1-17, 1995.
- Jordan, C. F., Nutrient cycling in tropical forest ecosystems: principles and their application in management and conservation, John Wiley & Sons, New York, 1985.
- Kaufman, Y. J., e R. S. Fraser, Light extinction by aerosols during summer air pollution, *J. Climate and Applied Meteor.*, 22, 1694-1706, 1983.
- Kaufman, Y. J., A. Setzer, D. Ward, D. Tanre, B. N. Holben, P. Menzel, M. C. Pereira, e R. Rasmussen, Biomass burning airborne and spaceborne experiment in the amazon, *J. Geophys. Res.*, 97, 14581-14599, 1992.
- Kaufman, Y. J. Remote Sensing of Direct and Indirect Aerosol Forcing. In: *Aerosol Forcing of Climate*. Ed. by R. J. Charlson and J. Heintzenberg, John Wiley & Sons Ltd., 1995.
- Kaufman, Y. J., P. V. Hobbs, V. W. J. H. Kirchhoff, P. Artaxo, L. A. Remer, B. N. Holben, M. D. King, E. M. Prins, D. E. Ward, K. M. Longo, L. F. Mattos, C. A. Nobre, J. D. Spinhirne, Q. Ji, A. M. Thompson, J. F. Gleason, e S. A. Christopher, The Smoke, Cloud and Radiation Experiment in Brazil (SCAR-B), *J. Geophys. Res.*, 103, 31783-31808, 1998.
- Kirchhoff, V. W. J. H., R. A. Barnes, e A. L. Torres, Ozone climatology at Natal, Brazil, from in situ ozonesonde data, *J. Geophys. Res.*, 96, 10899-10909, 1991.
- Kirchhoff, V. W. J. H., Y. Nakamura, E. V. A. Marinho, e M. M. Mariano, Excess ozone production in Amazon from large scale burning, *J. Atmosph. Terr. Phys.*, 54, 583-588, 1992.
- Kirchhoff, V. W. J. H., J. R. Alves, F. R. da Silva, e J. Fishman, Observations of ozone concentrations in the Brazilian cerrado during the TRACE-A field expedition, *J. Geophys. Res.*, 101, 24029-24042, 1996a.

- Kirchhoff, V. W. J. H., P. C. Alvalá, D. L. Mauzerall, A. M. Thompson, e D. P. McNamara, Ozonesonde observations in the cerrado troposphere during SCAR-B. Em: SCAR-B proceedings, editado por V. W. J. H. Kirchhoff, pp. 113-116, Trans. Tech. Klausthal-Zellerfeld, São José dos Campos, SP, 1996b.
- Kley, D., P. Crutzen, H. G. J. Smit, H. Vomel, S. J. Oltmans, H. Grassl, e V. Ramanathan, Observations of near-zero ozone concentration over the convective Pacific: Effects on air chemistry, *Science*, 277, 230-233, 1996.
- Kley, D., Tropospheric chemistry and transport, *Science*, 276, 1043-1045, 1997.
- Kuo, H. L., On formation and intensification of tropical cyclones through latent heat release by cumulus convection, *J. Atmos. Sci.*, 22, 40-63, 1965.
- Lelieveld, J., e P. J. Crutzen, Influences of clouds, photochemical process on tropospheric ozone process, *Nature*, 343, 227-233, 1990.
- Lelieveld, J., e P. J. Crutzen, Role of deep cloud convection in the ozone budget of the troposphere, *Science*, 264, 1759-1761, 1994.
- Lilly, D. K., On the numerical simulations of buoyant convection, *Tellus*, 14, 148-172, 1962.
- Longo, K. M., A. M. Thompson, V. W. J. H. Kirchhoff, L. A. Remer, S. R. Freitas, M. A. F. Silva Dias, P. Artaxo, W. Hart, J. D. Spinhirne, e M. A. Yamasoe, Correlation between smoke and tropospheric ozone concentration in Cuiabá during SCAR-B, *J. Geophys. Res.*, 104, 12113-12129, 1999.
- Louis, J. F., A parametric model of vertical eddy fluxes in the atmosphere, *Boundary-Layer Meteor.*, 17, 187-202, 1979.
- Maenhaut, W., L. de Reu, H. A. Van Rinsvelt, J. Cafmeyer, e P. Van Espen, Particle-Induced X-Ray Emission (PIXE) analysis of biological materials: precision, accuracy and application to cancer tissues, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B.*, 168, 557-562, 1980.

- Maenhaut, W., e H. Raemdonck, Accurate calibration of a Si(Li) detector for PIXE analyses, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B.*, 1, 123-136, 1984.
- Maenhaut, W., Recent advances in nuclear and atomic spectromic techniques for trace element analysis: a new look at the position of PIXE, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 49, 518-532, 1990.
- Mahrer, Y., e R. A. Pielke, The effects of topography on sea and land breezes in a two-dimensional numerical model, *Mon. Wea. Rev.*, 105, 1151-1162, 1977.
- Marenco, A., e J. C. Delauney, Experimental evidence of natural sources of CO from measurements in the troposphere, *J. Geophys. Res.*, 85, 5599-5613, 1980.
- Martins, J. V., O efeito das partículas de aerossol de queimadas da Amazônia no balanço radiativo da atmosfera, Tese de Doutorado, Instituto de Física, Universidade de São Paulo, 1999.
- McCumber, M. C., e R. A. Pielke, Simulation of the effects of surface fluxes of heat and moisture in a mesoscale numerical model. Part I: Soil layer, *J. Geophys. Res.*, 86, 9929-9938, 1981.
- Molinari, J., e T. Corsetti, Incorporation of cloud-scale and mesoscale downdrafts into a cumulus parameterization: results of one and three dimensional integrations, *Mon. Wea. Rev.*, 113, 485-501, 1985.
- Mueller, J.-F., Geographical distribution and seasonal variation of surface emissions and deposition velocities of atmospheric trace gases, *J. Geophys. Res.*, 97, 3787-3804, 1992.
- Nemwryk, G. E., Migration of salts into the atmosphere during transpiration, *Sov. Plant. Physiol.*, 17, 560-566, 1970.
- Nobre, C. A., L. F. Mattos, C. P. Deroczynski, T. A. Tarasova, e I. V. Trosnikov, Overview of atmospheric conditions during the Smoke, Clouds, and

- Radiation-Brazil (SCAR-B) field experiment, *J. Geophys. Res.* 103, 31809-31820, 1998.
- Novakov, T. e J. E. Penner, Large contribution of organic aerosols to cloud-condensation nuclei concentration, *Nature*, 365, 823-826, 1993.
- Pickering, K. E., A. M. Thompson, Y. Wang, W. K. Tao, D. P. McNamara, V.W. J. H. Kirchhoff, B. G. Heikes, G. W. Sachse, J. D. Bradshaw, G. L. Gregory, e D. R. Blake, Convective transport of biomass burning emissions over Brazil during TRACE-A, *J. Geophys. Res.*, 101, 23993-24012, 1996.
- Prins, E. M., e W. P. Menzel, Trends in South American biomass burning detected with the GOES VAS from 1983 to 1991, *J. Geophys. Res.*, 99, 16719-16735, 1994.
- Prins, E. M., J. M. Feltz, W. P. Menzel, and D. E. Ward, An overview of GOES-8 diurnal fire and smoke results for SCAR-B and 1995 fire season in South America, *J. Geophys. Res.*, 103, 31821-31835, 1998.
- Prospero, J. M. e T. N. Carlson, Vertical and areal distribution of Saharan dust over the Western Equatorial North Atlantic Ocean, *J. Geophys. Res.*, 77, 5255-5265, 1972.
- Prospero, J. M., e R. T. Nees, Impact of the North African drought and El Niño on mineral dust in the Barbados trade winds, *Nature*, 320, 735-738, 1986.
- Reichholf, J. H., Is Saharan dust the major source of nutrients for the Amazon rain forest?, *Studies on Neotropical Fauna and Environment* 21, 251-255, 1986.
- Reid, J. S., P. V. Hobbs, C. Lioussé, J. V. Martins, R. E. Weiss, e T. F. Eck, Comparison of technics for measuring shortwave absorption and black carbon content of aerosols from biomass burning in Brazil, *J. Geophys. Res.*, 103, 32031-32040, 1998.
- Remer, L. A., Y. J. Kaufman, B. N. Holben, A. M. Thompson, e D. McNamara, Biomass burning aerosol size distribution and modeled optical properties, *J. Geophys. Res.*, 103, 31879-31891.

- RiveraCarpio, C. A., C. E. Corrigan, T. Novakov, J. E. Penner, C. F. Rogers, e J. C. Chow, Derivation of contribution of sulfate and carbonaceous aerosols to cloud condensation nuclei from mass size distribution, *J. Geophys. Res.*, 101, 19483-19493, 1996.
- Salati, E., P. B. Vose, Amazon Basin: A system in equilibrium, *Science*, 223, 129-137, 1984.
- Savoie, D. L. e J. M. Prospero, Aerosol concentration statistic for the northern tropical Atlantic, *J. Geophys. Res.*, 82, 5954-5964, 1977.
- Savoie, D. L., J. M. Prospero, e E. S. Saltzman, Non-sea-salt sulfate and nitrate in trade wind aerosols at Barbados: Evidence of long-range transport, *J. Geophys. Res.*, 94, 5069-5080, 1989.
- Seibert, P., Convergence and accuracy of numerical methods for trajectories calculation, *J. Applied Meteor.*, 32, 558-566, 1993.
- Seinfeld, J. H., e S. N. Pandis, *Atmospheric chemistry and physics: From air pollution to climate change*, John Wiley & Sons, New York, 1997.
- Silva Dias, M. A. F., e R. N. Ferreira, Application of a linear spectral model to the study of amazonian squall lines, *J. Geophys. Res.*, 97 (D18), 20405-20419, 1992.
- Smagorinsky, J., General circulation experiments with the primitive equations. 1: The basic experiment, *Mon. Wea. Rev.*, 91, 99-164, 1963.
- Spinhirne, J. D., M. Z. Hanzen, e L. O. Caudill, Cloud top remote sensing by airborne lidar, *Appl. Opt.*, 22, 1564-1571, 1982.
- Swap R., M. Garstang, e S. Greco, Saharan dust in the Amazon Basin, *Tellus*, 44B, 133-149, 1992.
- Swap, R., S. Ulanski, M. Cobbett, e M. Garstang, Temporal an spatial characteristics of Saharan dust outbreaks, *J. Geophys. Res.*, 101 (D2), 4205-4220, 1996.

- Talbot, R. W., M. O. Andreae, H. Berresheim, P. Artaxo, M. Garstang, R. C. Harriss, K. M. Beecher, e S. M. Li, Aerosol chemistry during the wet season in Central Amazonia: The influence of long-range transport, *J. Geophys. Res.*, 95, 16955-16969, 1990.
- Thomas, E., Y. Rudich, S. Trackhtenberg, e R. Ussyshkin, Water adsorption by hydrophobic organic surfaces: Experimental evidence and implications to the atmospheric properties of organic aerosols, *J. Geophys. Res.*, 104, 16053-16059, 1999.
- Thompson, A. M., Oxidants in the unpolluted marine atmosphere. Em *Environmental Oxidants*, editado por J. O. Nriagu e M. S. Simmons, pp. 31-61, John Wiley, New York, 1994.
- Thompson, A. M., K. E. Pickering, D. P. McNamara, M. R. Schoeberl, R. D. Hudson, J. H. Kim, E. V. Browell, V. W. J. H. Kirchhoff, e D. Nganga, Where did tropospheric ozone over Southern Africa and the tropical Atlantic come from in October 1992? Insights from TOMS, GTE/TRACE A and SAFARI-92, *J. Geophys. Res.*, 101, 24251- 24278, 1996.
- Thompson, A. M., W. K. Tao, K. E. Pickering, J. R. Scala, e J. Simpson, Tropical deep convection and ozone formation, *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, 78, 1997.
- Toon, O. B., R. P. Turco, D. Westphal, R. Malone, e M. S. Liu, A Multidimensional model for aerosols: description of computational analogs, *J. Atmos. Sci.*, 45, 15, 2123-2143, 1988.
- Tremback, C. J., e R. Kessler, A surface temperature and moisture parameterization for use in mesoscale numerical models. Apresentado na 7^a Conference on Numerical Weather Prediction, Montreal, Canadá, AMS, 17-20, Junho 1985.
- Tremback, C. J., J. Powell, W. R. Cotton, e R. Pielke, The forward-in-time upstream scheme: extension to higher orders, *Mon. Wea. Rev.*, 115, 540-555, 1987.

- Tremback, C. J., Numerical simulations of a mesoscale convective complex: model development and numerical results. Ph.D. Dissertation, Atmos, Sci. Paper n. 465, Colorado State University, Dept. of Atmospheric Science, Fort Collins, CO 80523, 1990.
- Tripolli, G. J., e W. R. Cotton, The Colorado State University three-dimensional cloud/mesoscale model. Part I: General Theoretical Framework and Sensitive Experiments, *J. Res. Atmos.*, 16, 185-219, 1982.
- Van Espen, P., H. Nullens, e W. Maenhaut, AXIL. Em: Microbeam Analysis, editado por D. E. Newbury, San Francisco, San Francisco Press, 1979.
- Wang, Y., W.-K. Tao, K. E. Pickering, A. M. Thompson, J. S. Kain, R. F. Adler, J. Simpson, P. R., Keehn, e G. S. Lai, Mesoscale model simulations of TRACE A and preliminary regional experiment for storm-scale operational and research meteorology convective system and associated tracer transport, *J. Geophys. Res.*, 101, 24013- 24027, 1996.
- Westphal, D. L., O. B. Toon, e T. N. Carlson, A case study of mobilization and transport of Saharan dust, *J. Atmos. Sci.*, 45, 15, 2145- 2175, 1988.
- Westphal, D. L., e O. B. Toon, Simulations of microphysical, radiative, and dynamical processes in a continental scale forest fire smoke plume, *J. Geophys. Res.*, 96, 22379- 22400, 1991.
- Yamasoe, M. A., Estudo da Composição Elementar e Iônica de Aerossóis Emitidos em Queimadas na Amazônia. São Paulo. Dissertação de mestrado, Instituto de Física, Universidade de São Paulo, 1994.
- Yamasoe, M. A., Estudo de propriedades ópticas de partículas de aerossóis a partir de uma rede de radiômetros, Tese de Doutorado, Instituto de Física, Universidade de São Paulo, 1999.

Apêndice A

Artigo: “Numerical modeling of air mass trajectories from biomass burning areas of the Amazon basin”

Freitas S. R., *K. M. Longo*, M. A. F. Silva Dias, P. Artaxo.
Annais da Academia Brasileira de Ciências, Vol. 68, 193-206, 1997.

Numerical Modeling of Air Mass Trajectories from the Biomass Burning Areas of the Amazon Basin

SAULO RIBEIRO DE FREITAS¹, KARLA MARIA LONGO¹,
MARIA ASSUNÇÃO F. SILVA DIAS² and PAULO ARTAXO³

¹Centro Universitário de Palmas, Universidade do Tocantins

²Departamento de Ciências Atmosféricas, Instituto Astronômico e Geofísico, Universidade de São Paulo, Rua do Matão, 1226, Cidade Universitária, 05508-900 São Paulo, SP, Brasil

³Departamento de Física Aplicada, Instituto de Física, Universidade de São Paulo

Manuscript received on March, 1996; accepted for publication on October 30, 1996

ABSTRACT

The dry season in Central Brazil and Amazonia (from June to October) is characterized by intense biomass burning whose emissions are a major source of greenhouse gases and aerosol particles. In order to study sources, sinks and destination, Three Dimensional Air Mass Trajectories were calculated from source regions in the case where a north-bound mid-latitude cold front approaches southern Brazil. Two examples are shown: July 1993 and August 1995. The method of determining 3D air mass trajectories is based on a limited area atmospheric model with high resolution of 20 km in the area where the trajectories start, and a lower resolution of 80 km elsewhere. For the 1995 case only the coarser resolution grid is used. The model is nudged at every timestep towards a global analysis available every 12 hours. It was observed that the approaching cold front provides a conveyor belt where sloping ascent of the 3D trajectories takes place. This movement transports gases and aerosol particles up to upper troposphere. This long range transport of gases and aerosol particles may have a significant climate impact in the southern hemisphere.

Key words: biomass burning, trajectories, global change, Amazon.

INTRODUCTION

The dry season in Central Brazil and Amazon Region, from June to October, is characterized by intense biomass burning (Crutzen & Andreae, 1990). Large gas and aerosol particles emissions have been detected and reported by several authors (Andreae *et al.*, 1988; Kirchhoff *et al.*, 1985, 1991; Setzer & Pereira, 1991; Artaxo *et al.*, 1993, 1994, 1995; Setzer *et al.*, 1994). These studies discuss the local impacts and the possibility of long range transport of pollutants which could have a continental or even an hemispheric impact.

The transport of atmospheric pollutants, either in a regional scale or in a long range perspective, depends basically on the atmospheric structure of turbulence and winds which will disperse and advect the air mass, respectively. Kirchhoff *et al.* (1991) included in their discussion and interpretation of local measurements of ozone and carbon monoxide in southeastern Brazil the possible origin of the sampled air mass through the determination of isobaric air mass trajectories. In spite of the limitations on the isobaric approach restricted to a single level, they concluded that ozone enhancements were consistent with the origin of the air mass traced by backward trajectories towards the Central and Western regions of Brazil.

Correspondence to: M.A.F. Silva Dias

In the specific case of the air circulation in the dry season in Amazon and in Central Brazil, the possible air mass trajectories still present an open problem. From the climatology point of view, Central Brazil is dominated from June to September by a high pressure area with little precipitation and very slow wind speeds at lower levels (Riehl, 1979). However, on a day to day basis, the transient phenomena represent perturbations that may lead to a quite different picture. The approach of mid latitude fronts from the south as reported by Kousky & Ferreira (1981) and Fortune & Kousky (1983) produce a disturbance on the atmospheric stability and on the wind field. From the North, the propagating squall lines originated at the northern coast of Brazil (Silva Dias & Ferreira, 1992; Cohen *et al.*, 1995) present another perturbation typical of the dry season. Moreover, local circulation induced by topography in Central Brazil and by the

Andes mountains (*c.f.* Fig. 1) may provide another disturbance to the climatological set up.

Whenever one of these perturbations is acting in the area of interest, or in its proximity, the three dimensional wind field structure is affected and vertical advection becomes important. The wind field over the area in higher levels is prone to having higher wind speeds thus enhancing the long range transport of pollutants. The three dimensional air mass trajectories should therefore be examined in different atmospheric situations. This paper will focus on two examples of long range transport of pollutants through the direct interference of approaching mid latitude cold fronts.

THE METHOD OF AIR MASS TRAJECTORY CIRCULATION

The 3D trajectories were determined from the wind fields generated by the Regional Atmospheric

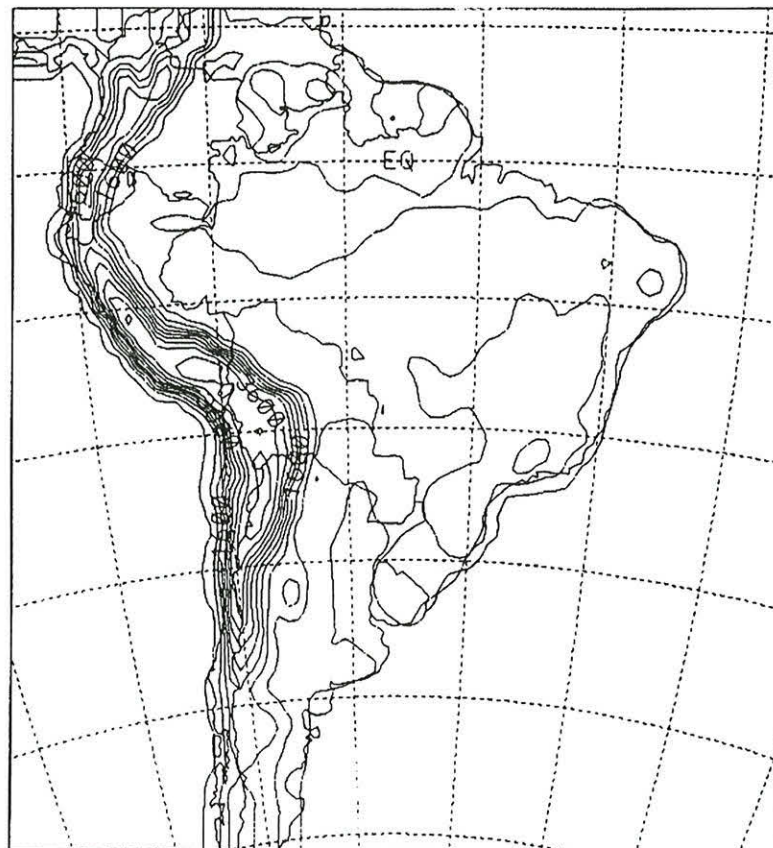


Fig. 1 — Topography of South America. Isolines start at 100m above sea level and increase by 250m.

Modeling System – RAMS model described by Tripoli & Cotton (1982) and Pielke *et al.* (1992). The model is run in a three dimensional version with a larger scale grid of 80 km resolution covering most of South America and neighboring Atlantic ocean. From the 1993 case study, a nested grid with 20 km resolution is located over Central Brazil and most of Amazon to provide a better description of the low level wind field. The model vertical resolution starts at 100m in lower levels stretching at a rate of 1.2 up to 1200m and then keeping a constant resolution up to model top located at 15.5 km. The physical parametrizations included are the anisotropic turbulence dependent on the deformation tensor, atmospheric long and short wave radiation interacting with water vapor and liquid water, surface interaction including the effect of vegetation, input from a soil model, and the effect of deep cumulus clouds and cloud microphysics. The details of these parametrizations may be found in the references of Pielke *et al.* (1992). The simulations are carried out from an initial condition provided by the interpolation of the National Centers for Environmental Prediction – NCEP – 2.5 degree analysis. The model is nudged at every time step towards the NCEP analysis, available at every 12 hours, at the boundaries and model top and in a lesser extent but still important at the model center. In this way the simulation can be carried out for several days and the simulated wind field reproduces the large scale features of the observed flow depicted in the NCEP analysis. The three dimensional simulated wind fields are stored at every 2 hours of simulation and are the input to the trajectory computation.

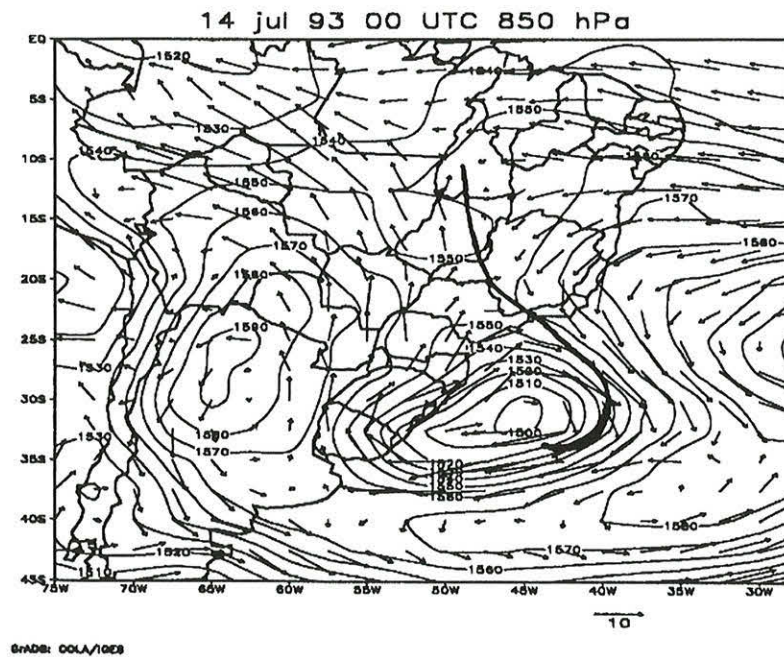
The method to determine the 3D trajectories is based on the equation $\frac{d\vec{r}}{dt} = \vec{v}[\vec{r}(t)]$ with an initial value $\vec{r}(t_0) = \vec{r}_0$, where \vec{r} is the position in space at time t and \vec{v} is the three dimensional velocity field. Petterssen (1956) suggested a recursive method to solve the trajectory equation to obtain \vec{r} at all times from \vec{v} . The position at a future time is calculated from the starting position wind speed vector. The future position is then recalculated from an interpolated wind speed vector, between the initial position and the future position

calculated in the previous iteration. This recursive method stops when convergence is achieved. Seibert (1993) discusses the numerical aspects of this scheme and shows that the numerical solution is accurate to the second order.

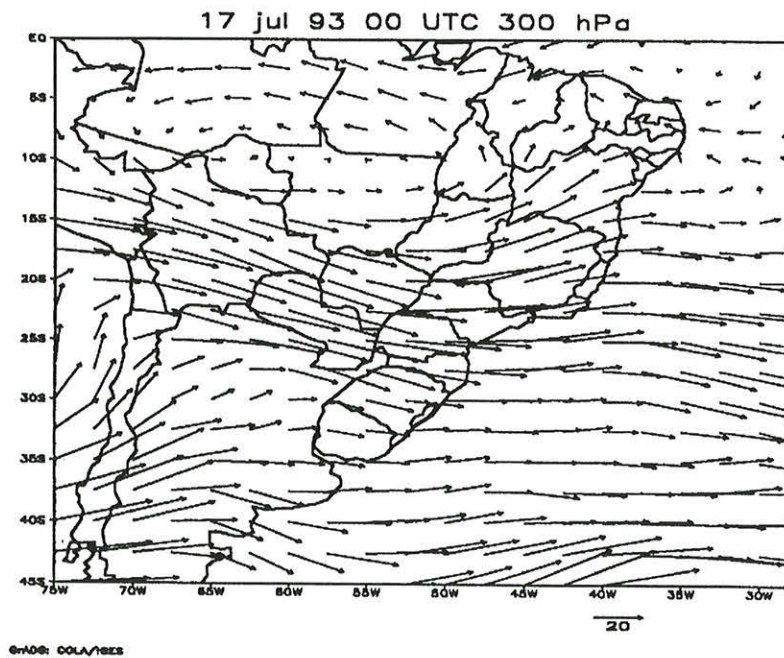
RESULTS AND DISCUSSION

The first example to be discussed is the period from 12 to 19 July, 1993. Figure 2 a,b shows, respectively, the NCEP analysis for the 14 July 1993, 00 UTC, at 850 hPa (approximately 1500m Above Sea Level – ASL) and 17 July 93, 00 UTC, at 300 hPa (\approx 9500m ASL). Figure 2c shows the METEOSAT satellite infrared – IR – image at 14 July – 01 UTC. The main feature depicted by the satellite image is the cold front which according to Figure 2a extends from a low pressure area at 30°S, 45°W, reaches the coast at 23°S and extends north-westward towards Central Brazil. On July 13, the front intersection with the coast line was about 3 degrees further south (not shown); the front remained almost stationary up to July 16 and then moved east. Figure 2d shows the main burning areas in Amazon and Central Brazil obtained from the NOAA-11 3.7 μ m IR channel for July 12. The positions indicated in Figure 2d were used as the starting position for the forward air mass trajectory calculations. The vertical level were trajectories start was varied from 50 to 500m above ground level without significant difference in the results. This insensitivity to the starting level is due basically to the strong vertical mixing in the boundary layer during the daytime period.

Figure 3 shows the ensemble of 3D air mass trajectories from the starting points in Figure 2d. Figure 3a shows all trajectories while Figures 3b,c,d show a few representative trajectories with the label indicating height in meters ASL; the time difference between dots along the trajectory is 24 hours. It may be seen that 3D air mass trajectories start moving towards the west and upwards; upon reaching western Amazonia between 2000 and 4000m ASL, they start turning southward (responding to the anticyclonic flow at 700 hPa, not shown) and, further along turn to southwest and still upward. The sloping ascent is in the form of a

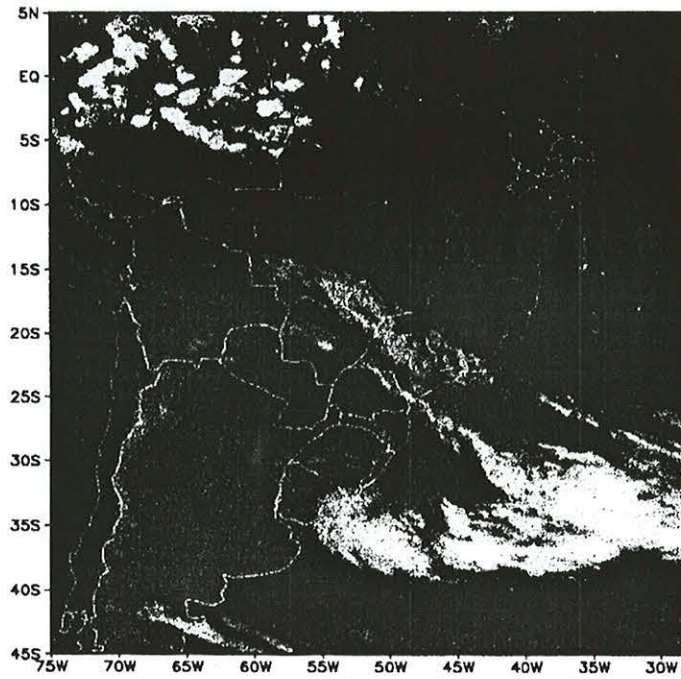


a



b

Fig. 2 — (a) Wind and geopotential field at 850 hPa for July 14, 1993 at 0 UTC (size of the arrow indicates wind speed in m.s^{-1} and over the Andes the fields are graphically interpolated); (b) wind field at 300 hPa for July 17, 1993 at 0 UTC (size of the arrow indicates wind speed in m.s^{-1}); (c) METEOSAT-5 IR image for July 14, 1993, 01 UTC; (d) burning spots for July 12, 1993 based on NOAA-11 IR images (obtained from A. Setzer).

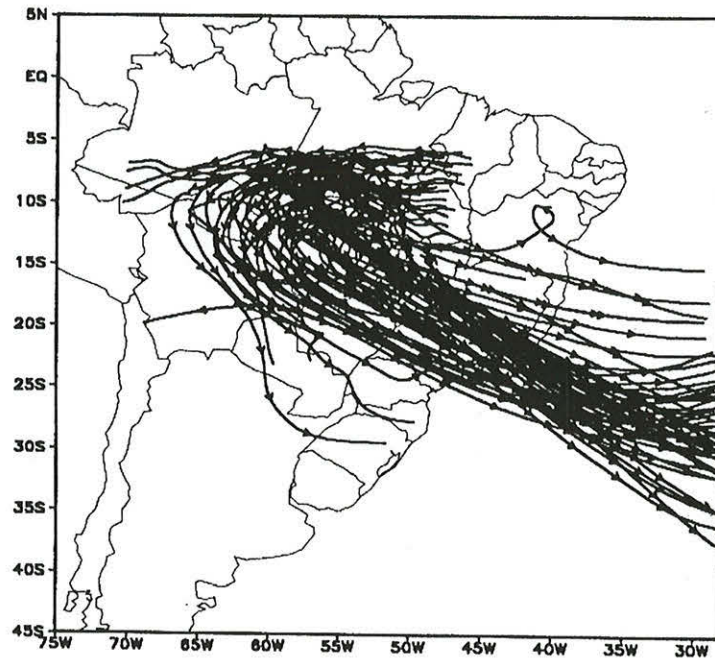


c

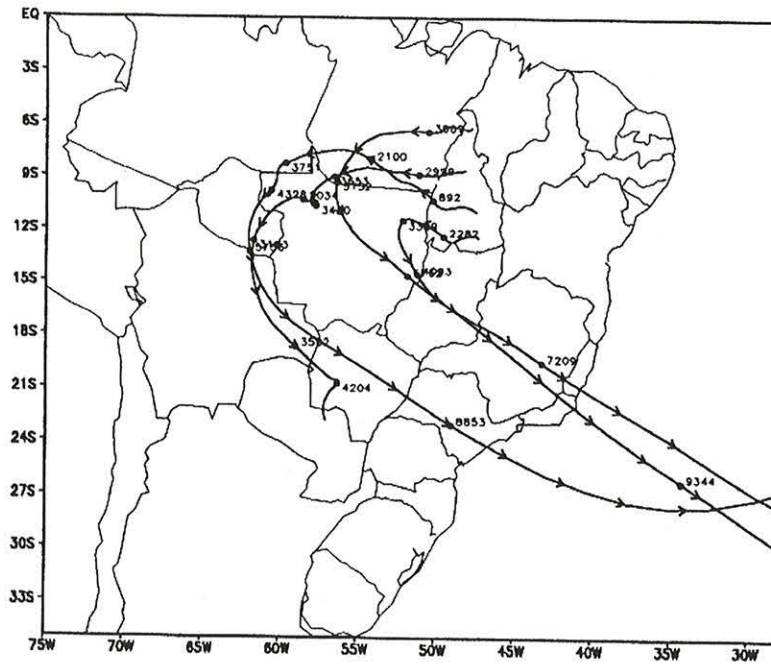


d

Fig. 2 (Continuation).

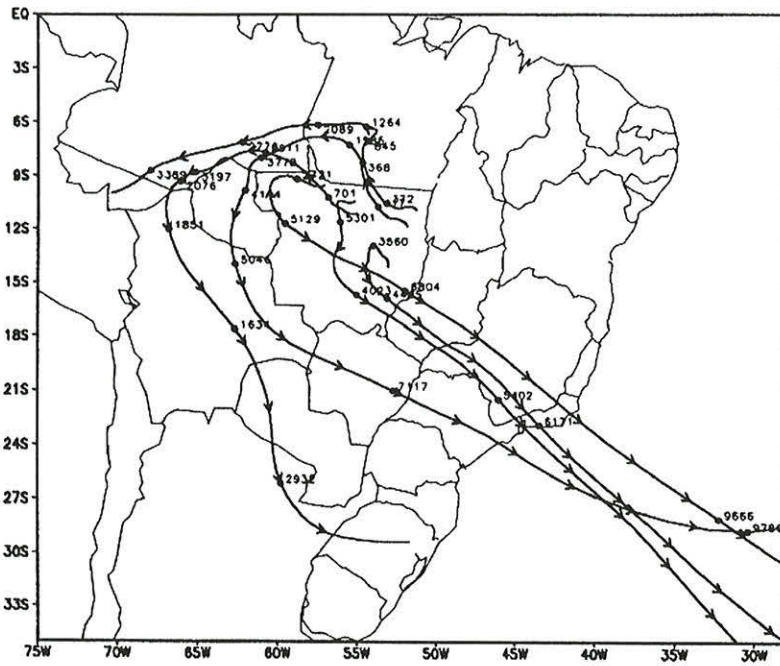


a

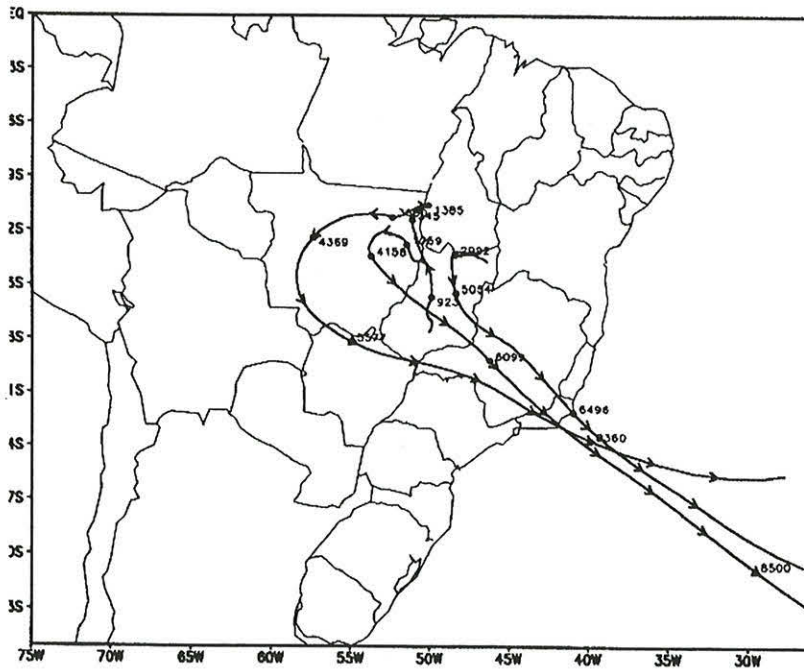


b

Fig. 3 — (a) Trajectory ensemble starting from the burning spots in Figure 2d; (b) a few trajectories starting in the state of Tocantins; the time difference between dots is 24 hours and the labels represent height ASL in meters; (c) same as (b) for the state of Mato Grosso; (d) same as (b) for the state of Goiás.



c



d

Fig. 3 (Continuation).

conveyor belt that reaches high altitudes at 6000 to 9000m ASL in the southern Atlantic. Figure 3c shows that the 3D air mass trajectories that move further west in the beginning actually succeed in avoiding the conveyor belt produced by the cold front; the air parcels then move further south towards northern Argentina and at about 300m ASL, turn to the east, cross southern Brazil at about the same height. Trajectories which start at about 10°S 52°W move initially northward and then westward; their progress is much slower than for the ones that turn to south and to southeast since the latter reach subtropical latitudes and higher levels where they encounter higher wind speeds (*c.f.* Fig. 2b). Figure 4 is similar to Figure 3 but the starting time of the trajectories is July 13, at 00 UTC, with the burning spots from the satellite image of July 13 (not shown). Although the same general features are found in this case, a few differences are noticeable. Figure 4b has a trajectory starting at 8°S 47°W which moved upwards quite fast and ended up after 6 days over the tropical Atlantic along 11°S and at about 12000m ASL. As the cold front remained in a quasi stationary position from July 14 to 16, the sloping ascent of the air mass in the conveyor belt persisted as the most permanent feature of this period.

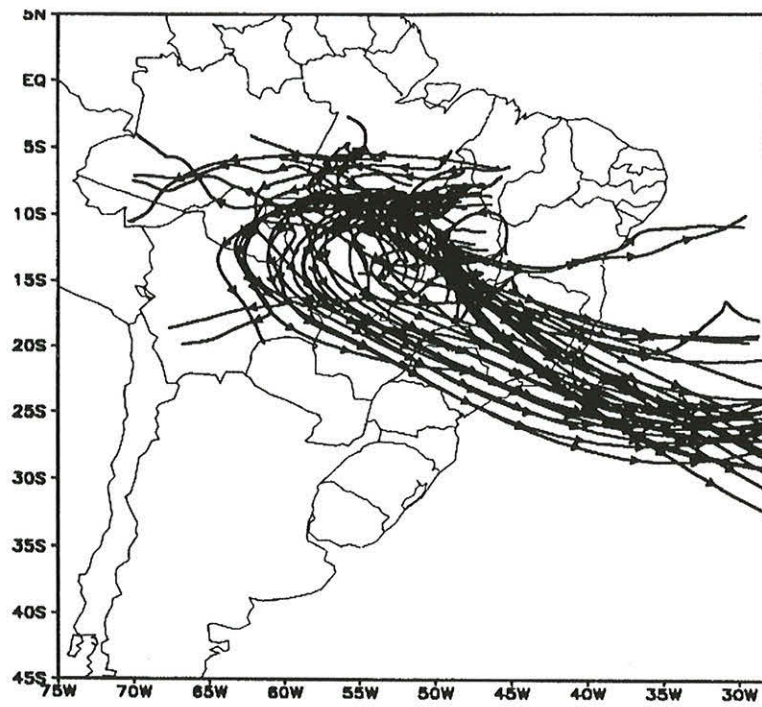
Throughout the whole simulation, Central Brazil showed no convective clouds. A few convective clouds were present in the simulation (not shown) and in the satellite image (Fig. 2c) in the northwestern part of Amazonia. The trajectories that move towards western Amazonia may be affected by clouds. However, the model does not have enough resolution to resolve convective scale transports of air parcels; what the convective parametrization induces is an enhanced large scale upward motion forced by local convective heating, which will turn the trajectories upward but with a velocity much smaller than the one inside convection. This is surely a shortcoming of the present approach and should be addressed in a future work through the introduction of nested grids in convective areas. In the present case, convective transports along the cold front ascent may be

considered negligible since no deep convection was observed along its inland portion.

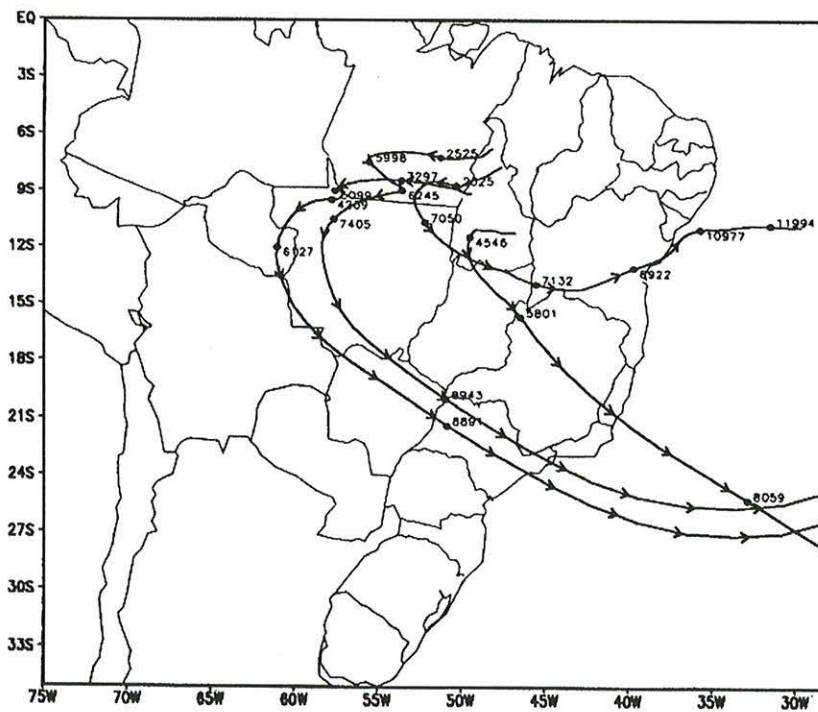
The second example discussed is the period from August 22 to 29 1995, during the SCAR-B (Smoke Clouds and Aerosols – Brazil) mission. Figure 5a shows the burning spots for August 23 from the GOES-8 4 μm IR image, and Figure 5b shows the GOES-8 corresponding visible image with the indication of smoky regions for August 29. Figure 6a,b shows the wind field at 850 hPa for August 26, 12 UTC and at 500 hPa (\approx 5500m ASL) for 12 UTC August 28, respectively. A cold front may be seen in Figure 6a extending from a low pressure area at 35°S, 62°W towards northern Argentina.

The 3D air mass trajectories from the burning spots of Figure 5a are shown in Figure 6c,d. In this case, two categories of trajectories are clearly defined. A first group of trajectories start north of about 10°S and move upwards and westwards crossing over the Andes after 5 days. A second group starts south of 10°S and then move southward, reach the conveyor belt associated with the cold front, go up to 3000m ASL just south of Paraguay, turn towards the east, travel over southern Brazil still in a sloping ascent and finally reach more than 5000m ASL in the southern Atlantic along 30°S, in accordance with the wind field in Figure 6d, and also in about 5 days. Comparing the heights in Figure 6d with the topography heights in Figure 1, it may be seen that from the equator to 10°S, the trajectories remain at about 4500m ASL while the deepest mountains seen by the 80 km grid have less than 3000m. This ascent is part of the local circulation in the boundary layer enhanced by the diurnal heating of the terrain. Ibañez (1995) had already pointed out this effect of the Andes in the local flow.

Comparing Figure 6c with Figure 5b it may be seen that there is a striking resemblance between the area indicated by the trajectories and the area covered by smoke. This fact shows that the 3D air mass trajectories correctly agree with the long range transport of biomass burning plumes. From this combined analysis of 3D trajectory analysis and satellite images it is clear that biomass

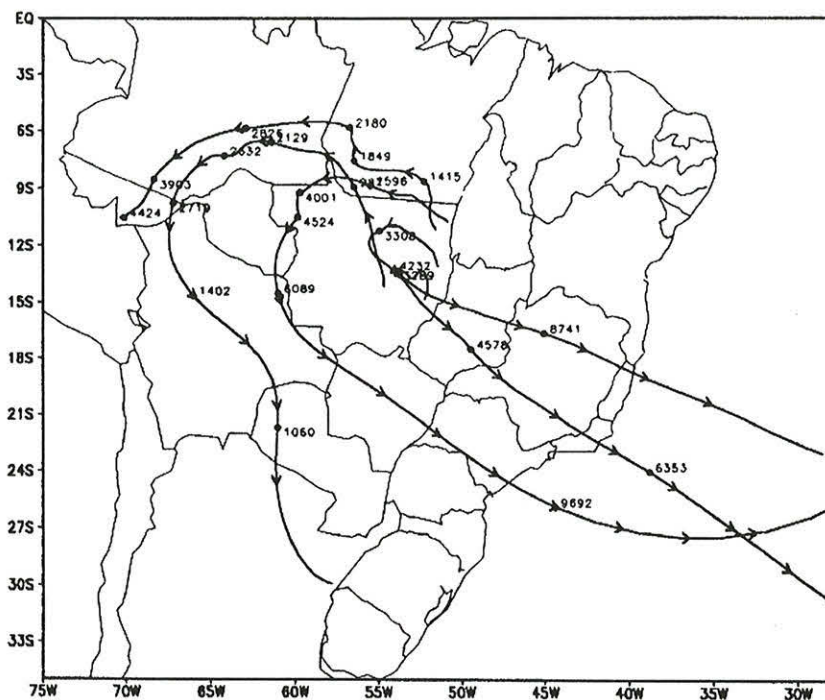


a

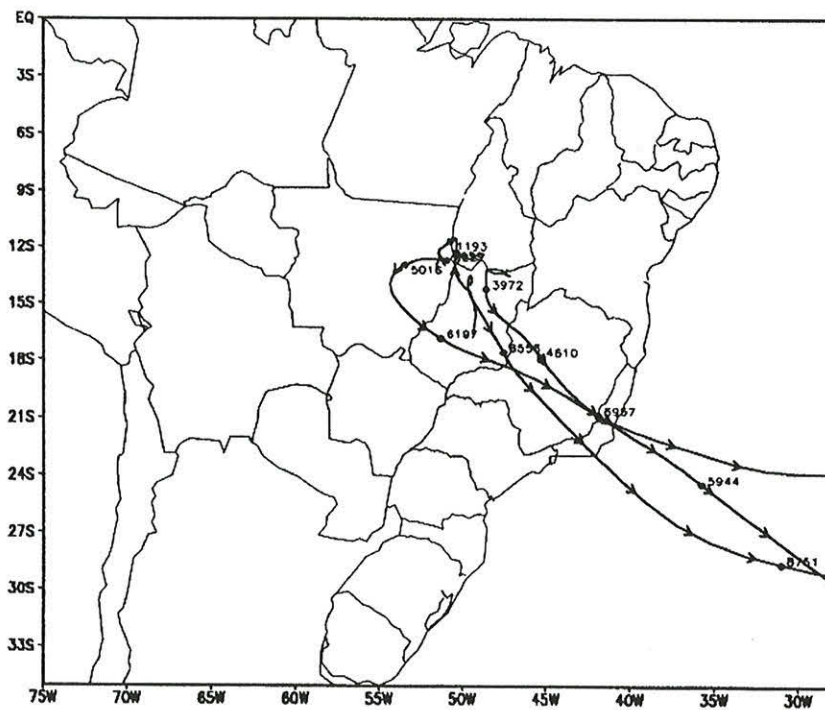


b

Fig. 4 — Same as figure 3 for the burning spots of July 13, 1993.



c



d

Fig. 4 (Continuation).

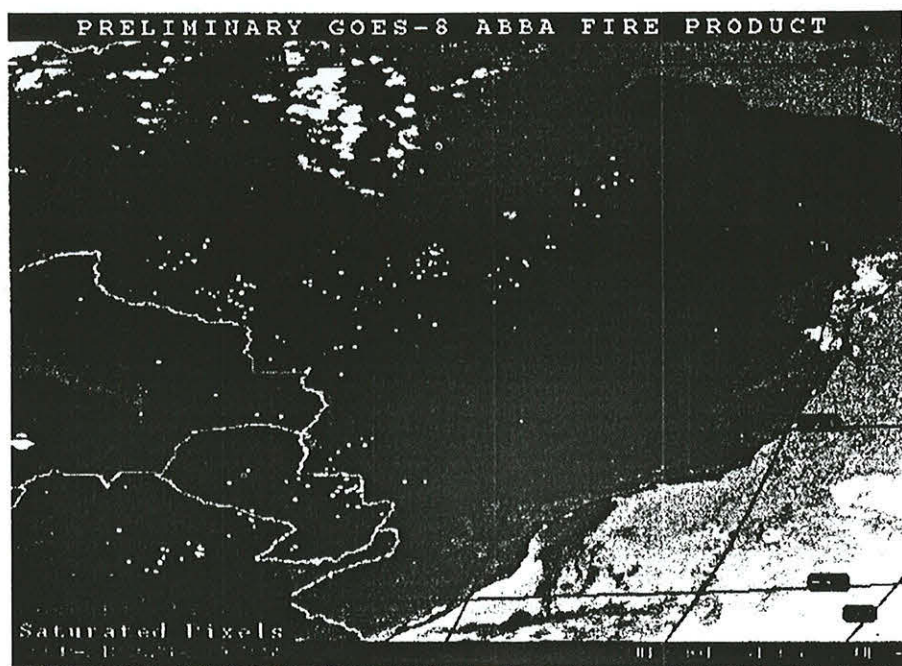
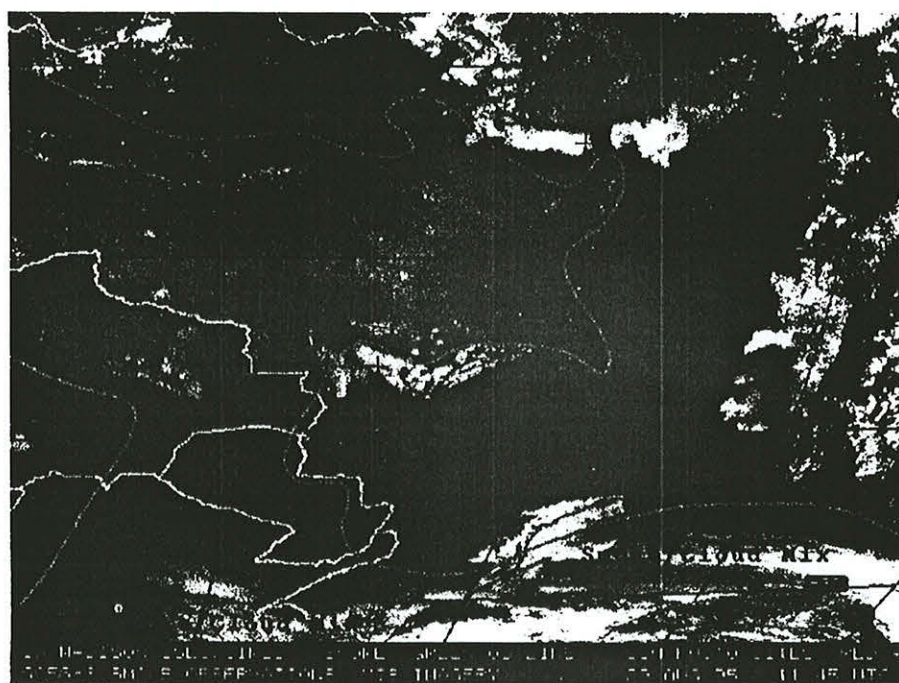
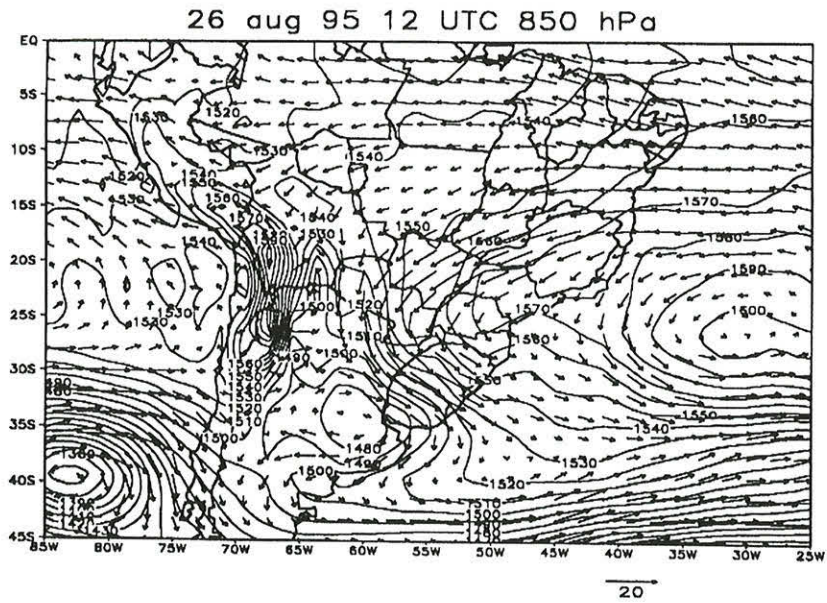
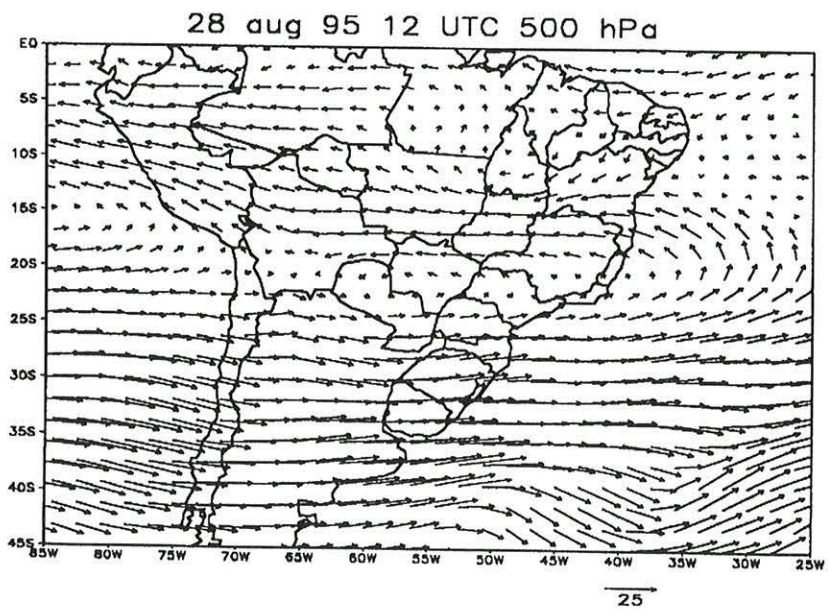
**a****b**

Fig. 5 — (a) GOES-8 IR image for August 23, 1994 showing the burning spots (white dots); (b) GOES-8 visible image for August 29, 1995, with the smoke analysis performed by the University of Wisconsin at Madison.

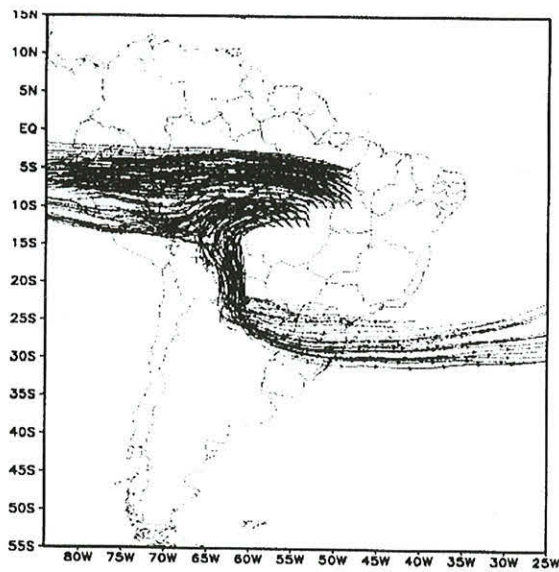


a

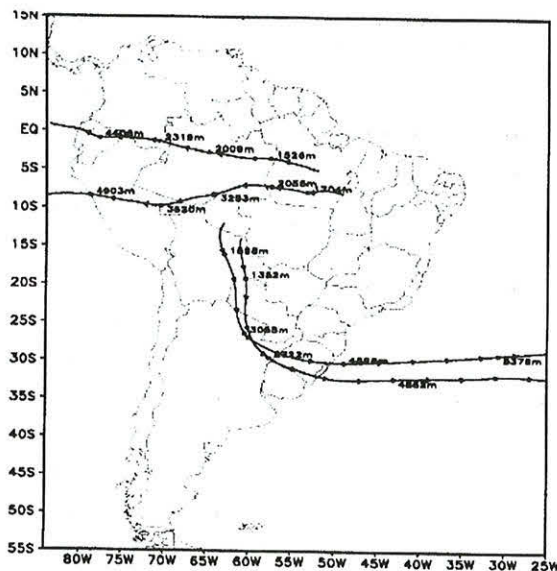


b

Fig. 6 — Wind and geopotential field at 850 hPa for August 26, 1995 at 12 UTC (size of the arrow indicates wind speed in m.s^{-1} and note that over the Andes the fields have been graphically interpolated); (b) wind field at 500 hPa for August 28, 1995 at 12 UTC (size of the arrow indicates wind speed in m.s^{-1}); (c) trajectory ensemble starting from the burning spots in Figure 4a; (d) a few representative trajectories with labels as in Figure 3b.



c



d

Fig. 6 (Continuation).

burning emissions strongly affected atmospheric characteristics over large areas of South America and the Southern Atlantic Ocean. The high aerosol loading in the troposphere affects the radiative balance of the atmosphere over large areas. One important result from these analyses is the indication of biomass burning emissions reaching high altitudes (6000-9000 meters ASL), where they can be

transported over the South Atlantic Ocean. These air parcels enter the global circulation pattern, affecting the Southern Hemisphere atmospheric composition. Similar biomass burning emissions in Southern Africa, Southeast Asia (e.g. Malaysia, Thailand), and Australia affect the global atmospheric composition with additional effects that are still unknown.

ACKNOWLEDGEMENTS

We would like to acknowledge the data on burning spots obtained from Dr. A. Setzer/INPE for the dry season of 1993 and the processed and analyzed images of the IR and visible channels obtained from the University of Wisconsin at Madison for the SCAR-B period through E. Prince. The large scale analysis data is from NCEP. The RAMS code is licensed by ASTER, Inc. The figures have been drafted using GrADS from COLA. This research has been supported by FAPESP and CNPq.

REFERENCES

- ANDREAE, M. O.; BROWELL, E. V.; GARSTANG, M.; GREGORY, G. L.; HARRISS, R. C.; HILL, G. F.; JACOB, D. J.; PEREIRA, M. C.; SACHSE, G. W.; SETZER, A. W.; SILVA DIAS, P. L.; TALBOT, R. W.; TORRES, A. L. & WOFSY, S. C., (1988), Biomass burning emissions and associated haze layers in Amazonia. *J. Geophys. Res.*, **93**: 1509-1527.
- ARTAXO, P.; GERAB, F.; YAMASOE, M. A. & MARTINS, J. C., (1994), Fine Mode Aerosol Composition in Three Long Term Atmospheric Monitoring Sampling Stations in the Amazon Basin. *J. Geophys. Res.*, **99** (D11): 22857-22868.
- ARTAXO, P.; GERAB, F.; YAMASOE, M. A. & MARTINS, J. C., (1995), The chemistry of atmospheric aerosols particles in the Amazon Basin. In: SEIDL, P. R.; GOTTLIEB, O. R.; KAPLAN, M. A. C., eds. *Chemistry of the Amazon: Biodiversity, natural products and environmental concerns*, American Chemical Society Books Series, ACS Symposium series 588, p. 265-280.

- ARTAXO, P.; YAMASOE, M. A.; MARTINS, J. C.; LOCINAS, S.; CARVALHO, S. & MAENHAUT, W., (1993), Case study of measurements in Brazil: Aerosol emissions from Amazon Basin fires. In: CRUTZEN, P. J. & J.G. GOLDAMMER, ed. *Fire in the Environment: Its Ecological, Climatic and Atmospheric Chemical Importance*, Wiley & Sons, p. 139-158.
- COHEN, J. C. P.; SILVA DIAS, M. A. F. & NOBRE, C. A., (1995), Environmental conditions associated with Amazonian squall lines: a case study. *Mon. Wea. Rev.*, **123** (11): 3163-3174.
- CRUTZEN, P. J. & ANDREAE, M., (1990), Biomass burning in the tropics: impact on atmospheric chemistry and biogeochemical cycles. *Science*, **250**: 1669-1678.
- FORTUNE, M. & KOUSKY, V. E., (1983), Two severe freezes in Brazil: precursors and synoptic evolution. *Mon. Wea. Rev.*, **111**: 181-196.
- IBAÑEZ, J. D., (1995), *Influência dos Andes nas circulações locais do Peru* (Master Thesis IAG-USP).
- KIRCHHOFF, V. W. J. H.; SAHAI, Y. & SILVA DIAS, P. L., (1985), Medidas de ozônio a bordo do avião Bandeirantes do INPE. *Revista Brasileira de Geofísica*, **4** (1): 21-26.
- KIRCHHOFF, V. W. J. H.; MARINHO, E. V. A.; DIAS, P. L. S.; PEREIRA, E. B.; CALHEIROS, R. V.; ANDRÉ, R. & VOLPE, C., (1991), Enhancements of CO and O₃ from Burnings in Sugar Cane Fields. *J. Atmosph. Chemistry*, **12**: 87-102.
- KOUSKY, V. E. & FERREIRA, N. J., (1981), Interdiurnal surface pressure variations in Brazil: their spatial distribution, origins and effects. *Mon. Wea. Rev.*, **109**: 1999-2008.
- PETTERSSSEN, S., (1956), *Weather Analysis and Forecasting*, vol. 1, McGraw Hill, 428p.
- PIELKE, R. A.; COTTON, W. R.; WALKO, R. L.; TREMBACK, C. J.; LYONS, W. A.; GRASSO, L. D.; NICHOLS, M. E.; MORAN, M. D.; WESLEY, D. A.; LEE, T. J. & COPELAND, J. H., (1992), A comprehensive meteorological modeling system - RAMS. *Meteor. Atmos. Phys.*, **49**: 69-91.
- RIEHL, H., (1979), *Climate and Weather in the Tropics*. Academic Press, 611p.
- SEIBERT, P., (1993), Convergence and accuracy of numerical methods for trajectory calculations. *J. Applied Meteor.*, **32**: 558-566.
- SETZER, A. W. & PEREIRA, M. C., (1991), Amazon biomass burning in 1987 and an estimate of their tropospheric emissions. *Ambio*, **20**: 19-22.
- SETZER, A. W.; PEREIRA, M. C. & PEREIRA JR., A. C., (1994), Satellite studies of biomass burning in Amazonia - some practical aspects. *Remote Sensing Review*, **10**: 91-103.
- SILVA DIAS, M. A. F. & FERREIRA, R. N., (1992), Application of a linear spectral model to the study of Amazonian squall lines. *J. Geophys. Res.*, **97** (D18): 20405-20419.
- TRIPOLI, G. J. & COTTON, W. R., (1982), The Colorado State University three-dimensional cloud/mesoscale model - 1982. Part I: General theoretical framework and sensitivity experiments. *J. Res. Atmos.*, **16**: 185-219.

Apêndice B

Artigo: “The Smoke Cloud and Radiation Experiment in Brazil (SCAR-B)”

Kaufman Y. J., P. V. Hobbs, V. W. J. H. Kirchhoff, P. Artaxo, L. A. Remer, B. N. Holben, M. D. King, D. E. Ward, E. M. Prins, *K. M. Longo*, L. F. Mattos, C. A. Nobre, J. D. Spinhirne, Q. Ji, A. M. Thompson, J. F. Gleason, S. A. Christopher, S.-C. Tsay.

Journal of Geophysical Research, 103, D24, 31783-31808, 1998.

Smoke, Clouds, and Radiation–Brazil (SCAR-B) experiment

Y. J. Kaufman,¹ P. V. Hobbs,² V. W. J. H. Kirchhoff,³ P. Artaxo,⁴ L. A. Remer,^{1,5}
 B. N. Holben,⁶ M. D. King,⁷ D. E. Ward,⁸ E. M. Prins,⁹ K. M. Longo,⁴
 L. F. Mattos,³ C. A. Nobre,³ J. D. Spinhirne,¹ Q. Ji,⁵ A. M. Thompson,¹
 J. F. Gleason,¹ S. A. Christopher,¹⁰ and S.-C. Tsay¹

Abstract. The Smoke, Clouds, and Radiation–Brazil (SCAR-B) field project took place in the Brazilian Amazon and cerrado regions in August–September 1995 as a collaboration between Brazilian and American scientists. SCAR-B, a comprehensive experiment to study biomass burning, emphasized measurements of surface biomass, fires, smoke aerosol and trace gases, clouds, and radiation, their climatic effects, and remote sensing from aircraft and satellites. It included aircraft and ground-based in situ measurements of smoke emission factors and the compositions, sizes, and optical properties of the smoke particles; studies of the formation of ozone; the transport and evolution of smoke; and smoke interactions with water vapor and clouds. This overview paper introduces SCAR-B and summarizes some of the main results obtained so far. (1) Fires: measurements of the size distribution of fires, using the 50 m resolution MODIS Airborne Simulator, show that most of the fires are small (e.g., 0.005 km²), but the satellite sensors (e.g., AVHRR and MODIS with 1 km resolution) can detect fires in Brazil which are responsible for 60–85% of the burned biomass; (2) Aerosol: smoke particles emitted from fires increase their radius by as much as 60% during their first three days in the atmosphere due to condensation and coagulation, reaching a mass median radius of 0.13–0.17 μm; (3) Radiative forcing: estimates of the globally averaged direct radiative forcing due to smoke worldwide, based on the properties of smoke measured in SCAR-B (–0.1 to –0.3 W m^{–2}), are smaller than previously modeled due to a lower single-scattering albedo (0.8 to 0.9), smaller scattering efficiency (3 m² g^{–1} at 550 nm), and low humidification factor; and (4) Effect on clouds: a good relationship was found between cloud condensation nuclei and smoke volume concentrations, thus an increase in the smoke emission is expected to affect cloud properties. In SCAR-B, new techniques were developed for deriving the absorption and refractive index of smoke from ground-based remote sensing. Future spaceborne radiometers (e.g., MODIS on the Earth Observing System), simulated on aircraft, proved to be very useful for monitoring smoke properties, surface properties, and the impacts of smoke on radiation and climate.

1. Introduction

Biomass burning in the tropics is one of the most important, although poorly quantified, human impacts on the environ-

ment. Tropical biomass burning now comprises about 80% of the biomass that is burned globally [Hao and Liu, 1994]. This is much higher than a century or two ago, due to increases in population in the tropical regions, steady encroachment on forested areas, and the use of controlled burning as a land management tool. Nevertheless, human impacts on the environment through fire are not new. Measurements of charcoal and pollen sediments show a clear correlation between rate of burning, human settlements, and a shift in the natural vegetation from pyrophobic to pyrotolerant and pyrophilic species [Crutzen and Andreae, 1990, hereinafter referred to as CA90].

Scientific interest in tropical biomass burning was heightened some two decades ago with the suggestion by Crutzen *et al.* [1979, 1985] that it is an important source of some key trace gases in the atmosphere. It is now known that biomass burning is responsible for 10–30% of the global CO budget, which is of particular importance since the emissions are in the tropics, a region of strong solar radiation, including UV, and therefore of major importance for tropospheric chemical processes [CA90]. CO, through interactions with the OH radical, can substantially reduce the oxidative (or cleansing) efficiency of the atmosphere; biomass burning may therefore increase the lifetime and concentrations of many trace gases [CA90]. In

¹Laboratory for Atmospheres, NASA Goddard Space Flight Center, Greenbelt, Maryland.

²Department of Atmospheric Sciences, University of Washington, Seattle.

³Instituto de Pesquisas Espaciais (INPE), São José dos Campos, São Paulo, Brazil.

⁴Instituto de Física, Universidade de São Paulo, São Paulo, Brazil.

⁵Science Systems and Applications Inc., Lanham, Maryland.

⁶Laboratory for Terrestrial Physics, NASA Goddard Space Flight Center, Greenbelt, Maryland.

⁷Earth Sciences Directorate, NASA Goddard Space Flight Center, Greenbelt, Maryland.

⁸Intermountain Research Station, Forest Service, USDA, Missoula, Montana.

⁹National Oceanic and Atmospheric Administration/NESDIS/ORA, Madison, Wisconsin.

¹⁰Department of Atmospheric Sciences, University of Alabama in Huntsville, Huntsville.

Copyright 1998 by the American Geophysical Union.

Paper number 98JD02281.
 0148-0227/98/98JD-02281\$09.00

regions of biomass burning, oxidation of CO and hydrocarbons in the presence of elevated concentrations of NO_x causes formation of ozone in concentrations as high as in strongly polluted urban smogs [Kirchhoff, 1984; Logan and Kirchhoff, 1986; CA90]. Since NO_x has a lifetime of only a few days (similar to the lifetime of smoke aerosol), and CO of 10 to 100 days, the high NO_x concentration from biomass burning is mainly in smoke regions. Biomass burning is also a source of CH_4 [CA90].

Biomass burning is also a major source of atmospheric aerosol. It emits submicron particles composed mainly of partially oxidized organic materials. These particles are both efficient scatterers and absorbers of sunlight. They are also efficient cloud condensation nuclei (CCN) and therefore interact with clouds [Warner and Twomey, 1967; Hobbs and Radke, 1969; Holben et al., 1991; Kaufman et al., 1992]. The global rate of production of biomass burning aerosol is not much smaller than the global rate of production of sulfate aerosol [Radke, 1989]. The possible climatic effects of smoke particles was pointed out by Crutzen et al. [1985] and provided the basis for the "nuclear winter" hypothesis [Crutzen and Birks, 1982], in which smoke from fires caused by a nuclear attacker was hypothesized to diminish sunlight and agricultural productivity over the entire hemisphere. Heavy smoke in northern latitudes is known to reduce daytime ground temperature by several degrees [Robock, 1988]. Emission of smoke particles is estimated to have a similar direct effect (through interaction with solar radiation) and indirect effect (through interacting with clouds that reflect sunlight) on the Earth's radiation balance to that of sulfates [Penner et al., 1992]. However, recent revised estimates of the radiative forcing of smoke worldwide, based on measurements from SCAR-B, are significantly lower both for the direct [Hobbs et al., 1997] and the indirect [Kaufman and Fraser, 1997] effects. Nevertheless, the effect of smoke on radiation, cloud microstructure, and air pollution are of major importance on local and regional scales. The effects of smoke on atmospheric temperature profiles and cloud microstructures may disturb the hydrological cycle in the tropics, with potential effects on regional and global climate. Long-range transport fueled by convective injection into higher altitudes has been documented [Pickering et al., 1996; Fishman et al., 1996], but the effects on global climate and atmospheric chemistry are not well established. Other important impacts of biomass burning on regional environments were reviewed by CA90. They include acid deposition, effects on soil degradation and nutrient cycle, deforestation, and effects on local biota, animals, and people.

Early field studies of biomass burning in the tropics emphasized measurements of the emission of trace gases and their evolution in the atmosphere, particularly the formation of tropospheric ozone. These included measurements in Brazil by Crutzen et al. [1985], Andreae et al. [1988], and Fishman et al. [1996], and in Africa by Lindesay et al. [1996] and Lacaux et al. [1995]. Studies of biomass burning that have placed more emphasis on the properties of the smoke aerosol in North America include those of Radke et al. [1991], Ward and Hardy [1991], and Hobbs et al. [1996]; in Brazil by Holben et al. [1991], Kaufman et al. [1992], Ward et al. [1992], Artaxo et al. [1996], Pereira et al. [1996], Browell et al. [1996]; and in Africa by Andreae et al. [1994], Anderson et al. [1996], Le Canut et al. [1996], Maenhaut et al. [1996], Kuhlbusch et al. [1996], Ward et al. [1996], and Swap et al. [1996]. A network of Sun/sky radiometers has operated in Brazil since 1993 [Holben et al., 1996;

Kaufman and Holben, 1996; Remer et al., 1996, this issue] in an effort to characterize the aerosol properties and to develop methods for remote sensing from space of fires, smoke aerosol, and their impact on clouds [Kaufman et al., 1990, 1994, 1998; Kaufman and Fraser, 1997].

There are many uncertainties in the rates of biomass burning, its spatial and temporal distributions, the emission of particles and trace gases, and the atmospheric and radiative processes and effects associated with smoke. The horizontal and vertical heterogeneities in the distribution of smoke, its variability with time, and the presence of many small sources (see Plates 1 and 2) increase the difficulty in estimating the rate of biomass burning and its effects on climate. Recent interest in the climatic effects of smoke [CA90; Penner et al., 1992; IPCC, 1995; Seinfeld et al., 1996] and the new capability of satellite instrumentation to measure aerosols and their interactions with water vapor, clouds, and radiation (POLDER on ADEOS [Herman et al., 1997a], MODIS on EOS [Kaufman et al., 1997; Tarré et al., 1997], and MISR on EOS [Martonchik and Diner, 1992; Kahn et al., 1997]) have generated a need for a biomass burning experiment with emphasis on the physical properties and processes associated with smoke emissions and their remote sensing. The SCAR-B experiment in Brazil, which was conceived by American and Brazilian scientists, was designed to meet this need.

In the remainder of this paper, we first describe the goals of SCAR-B. We then review previous studies of biomass burning in Brazil. This is followed by an overview of the SCAR-B measurement program and some of the main results from SCAR-B. Comprehensive accounts of specific aspects and findings of SCAR-B may be found in the papers in this special issue.

2. Goals of SCAR-B

SCAR-B was a comprehensive experiment to measure the emissions of trace gases and aerosol particles from biomass fires in Brazil and their evolution and interactions in the atmosphere. Three main goals guided SCAR-B: (1) characterization of the effects of emissions from biomass burning on direct and indirect forcing of solar radiation; (2) evaluation of the effects of biomass burning on atmospheric chemistry and radiation; and (3) evaluation of remote sensing techniques against *in situ* measurements, in preparation for the launch of the NASA moderate resolution imaging spectroradiometer (MODIS) on an Earth Observing System AM-1 satellite in 1999.

Some of the more specific objectives of SCAR-B were (1) to establish the thermal properties of fires, their remote sensing from space, and the relationship among fire thermal properties, the emission rates of smoke, and the rate of biomass consumption; (2) to establish the rates of emissions of trace gases and particles (including the effective concentration of black carbon) from biomass burning; (3) to measure the distribution and evolution of trace gases in the atmosphere; (4) to measure the optical/radiative properties of smoke, including scattering and absorption efficiencies, spectral extinction, scattering phase function and single-scattering albedo, the effects of humidity on smoke aerosol size, and the evolution of these properties with smoke age; (5) to develop a physical and radiative model of smoke that can be used for remote sensing of smoke aerosol and for estimating its direct radiative forcing; (6) to understand the interactions of smoke particles with water vapor and clouds; their CCN nucleating efficiency; their

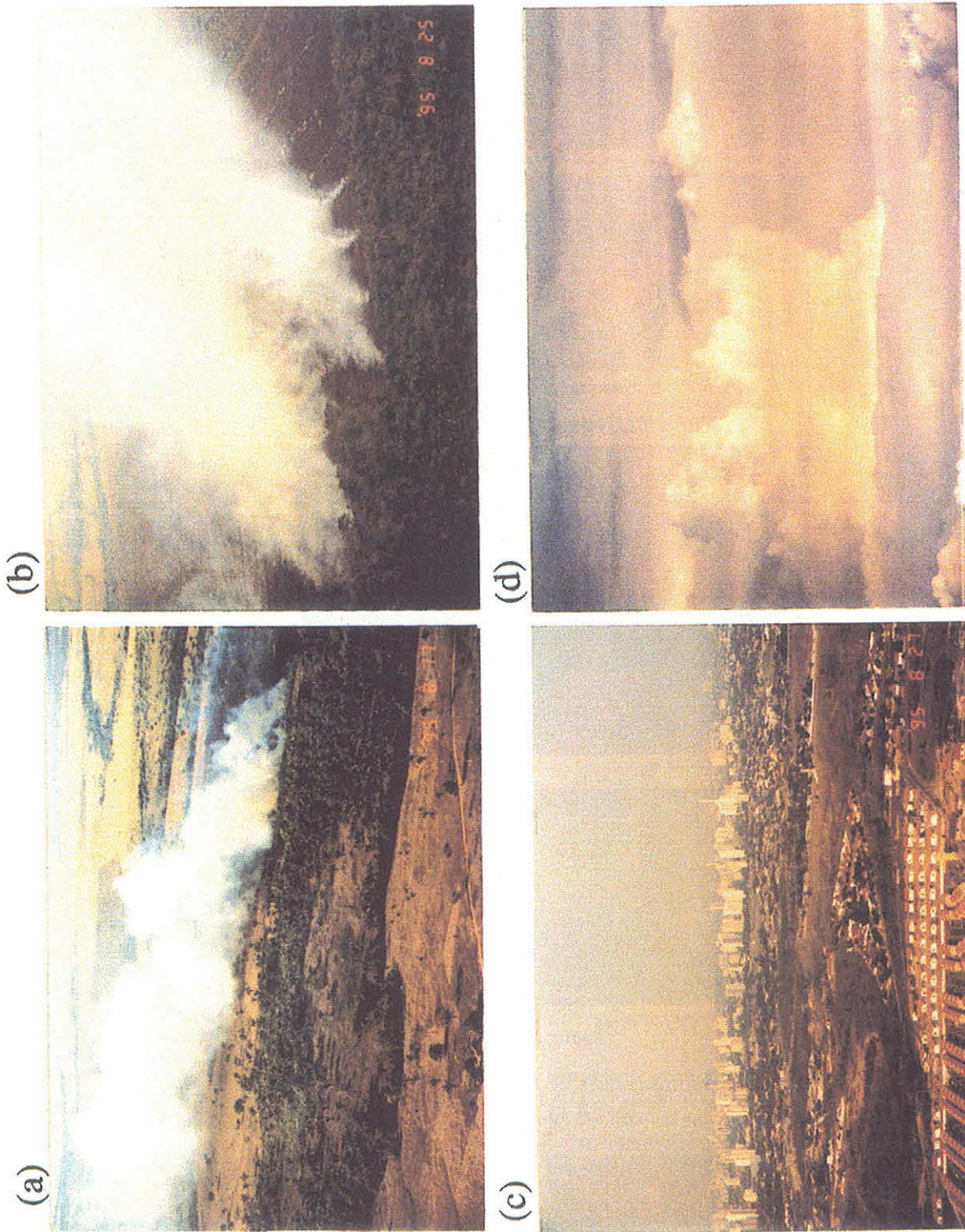


Plate 1. Examples of smoke from biomass burning in Brazil during SCAR-B. (a) A small cerrado fire north of Brasília. (b) Lines of fire in cerrado northwest of Curitiba. (c) Regional haze dominated by smoke over Curitiba. (d) Cumulus clouds produced by fires near Marabá. Note the banded smoke layers. Photos by Peter V. Hobbs.

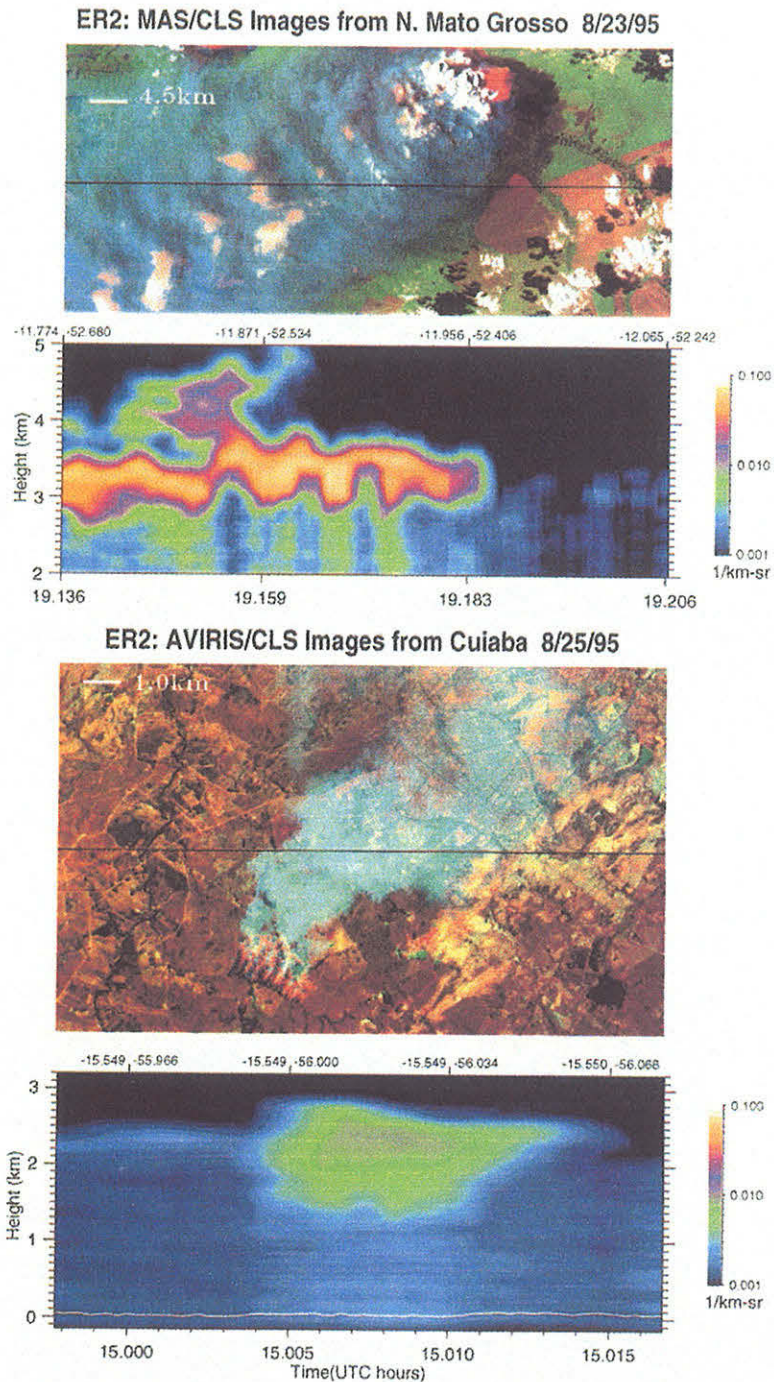


Plate 2. Examples of fires, burn scars, smoke, and clouds observed from the NASA ER-2 aircraft. (Top panels) MAS and lidar images of the landscape in Northern Matto Grosso, Brazil (11.9°S, 52.5°W), showing a large fire of dense biomass emitting smoke into a humid atmosphere at 3–4 km with evident cloud formation (August 23, 1995, at 1910 GMT). The MAS image is composed of the 660 nm channel (blue), the 860 nm channel (green), and the 1650 nm channel (red). The fire is the red spot in the top right part of the image. The orange clouds are darker in the 660 and 860 nm channels due to absorption of smoke above them. The lidar image is the backscattering coefficient measured from the lidar. (Bottom panels) AVIRIS and lidar images of the landscape in Cuiabá, Brazil (9.9°S, 56.1°W) with a large fire of lower-density biomass emitting smoke into a drier atmosphere at 2 km (August 25, 1995 at 1500 GMT); no cloud activity is evident. The AVIRIS image is composed of the 460 nm channel (blue), the 550 nm channel (green), and the 1650 nm channel (red). The fire is in the bottom left part of the image with red fire strips emitting the smoke and black burn scars formed between them.

Table 1. Summary of Field Experiments to Study Smoke From Biomass Burning in Brazil

Experiment	Period	Main Focus	Reference
Brushfire-80	1980	analysis of trace gas and aerosol emissions from biomass burning in Manaus and Rondonia	<i>Crutzen et al.</i> [1985]
CAMREX (Carbon in the Amazon River Experiment)	1982–1996	study the carbon and hydrologic cycles	<i>Richey et al.</i> [1990]
ARME (Amazon Region Micrometeorological Experiment)	1983–1985	Forest-atmosphere micrometeorological interactions	
ABLE-2A and -2B (Amazon Boundary Layer Experiment)	1985 and 1987	large-scale aircraft measurements of trace gases and aerosol from biomass burning (ABLE-A), and biogenic emissions (ABLE-B)	<i>Harriss et al.</i> [1988, 1990]
FLUAMAZ (Atmospheric Fluxes in Amazonia)		water and energy balances for western Amazonia	
BASE-A and -B (Biomass Burning Airborne and Spaceborne Experiment—Amazon and Brazil)	1989 and 1990	emission ratios of trace gases and aerosol particles and their optical properties for calibration of spaceborne estimates of the emissions from biomass burning	<i>Kaufman et al.</i> [1992]; <i>Ward et al.</i> [1992]
ABRACOS (Anglo-Brazilian Amazonian Climate Observations Study)	1990–1996	CO ₂ water, and energy fluxes between the forest and the atmosphere over pasture and primary rain forest	<i>Gash et al.</i> [1996]
TRACE-A (Tropical Atmospheric Chemistry Experiment—Atlantic)	1992	atmospheric exchange and formation of ozone from biomass burning emissions in the South Atlantic Ocean	<i>Fishman et al.</i> [1996]
FLOR-PAST (Land use Change and Ecosystem Processes in the Brazilian Amazon Basin)	1992–1994	dynamics of the atmospheric boundary layer over deforested areas in Rondonia	
MACOE (Manaus Carbon Observation Experiment)		CO ₂ fluxes in a forested area	<i>Grace et al.</i> [1995]
SCAR-B (Smoke, Clouds, and Radiation—Brazil)	1995	characterization of fires, emissions of trace gases and aerosol, their evolution, and interactions in the atmosphere with clouds and radiation	this issue
BIONTE (Experiment on Biomass and Nutrients in Terra-Firme Forests in Central Amazonia)	1996	nutrient cycles and biomass in "terra-firme" forests looking at sustainable development strategies	<i>Mello-Ivo et al.</i> [1996]

effects on cloud microphysics, cloud reflectance and indirect forcing of climate; and, cloud effects on smoke aerosol size distributions, concentrations, and properties; and (7) to establish the effects of biomass burning on surface reflective properties, albedo, and their remote sensing from space in the presence of smoke.

3. Previous Experiments in Brazil

SCAR-B follows a series of 10 field campaigns on biomass burning and biogenic emissions conducted in Brazil, between 1980 and 1994, and the monitoring of various atmospheric constituents from ground sites. Table 1 summarizes the main objectives of these experiments. The shifting interest from emissions of trace gases and tropospheric chemistry to include the emission of smoke particles and their radiative effects was already reflected in some of the measurements in ABLE-2A [Andreae *et al.*, 1988], it was one of the main objectives of the BASE and TRACE experiments, and it is reflected in the types of measurements obtained in SCAR-B. In the last decade,

long-term continuous ground-based measurements have also been conducted in Brazil of aerosol concentration and composition, black carbon concentration, and trace gases and ozone concentrations [Artaxo *et al.*, 1994, this issue; Kirchoff, 1988, 1996]. Continuous monitoring of fires from satellites is also available [Setzer and Pereira, 1991].

4. Interannual Variability of Biomass Burning in Brazil

The rate of biomass burning in Brazil, and therefore the amounts of trace gases and aerosols emitted, changes from year to year. Meteorological conditions affect the area of the forests and grass lands that burn each year and the fraction of the biomass consumed in the fire. It is also affected by many social factors. In this section, we discuss various measures of the interannual variability of biomass burning in Brazil and the rates of emissions and formation of pollutants in the atmosphere from this source. This will help put the 1995 SCAR-B

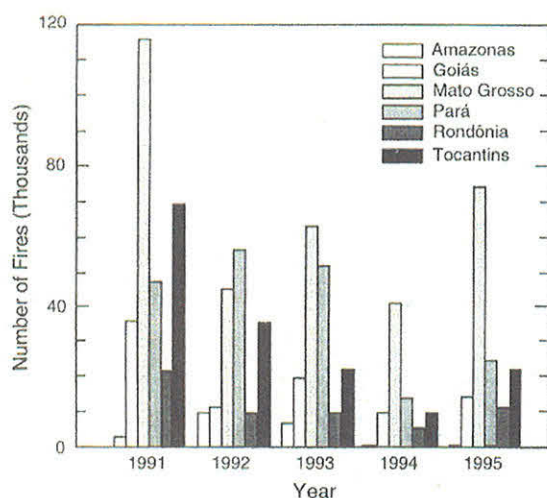


Figure 1. Biomass burning in Brazil from 1991 to 1995 by state (see key) as represented by the AVHRR fire count. The data were collected and processed by INPE. Because of differences in AVHRR instrumentation and observation time in 1994 and 1995 the afternoon and morning satellites were used at the beginning and end of the dry season, respectively. The change in the detection of fire rate between the two orbits was compared in August and corrected (from INPE reports).

measurements into perspective in terms of the longer-term biomass burning record in South America.

4.1. Fires

The advanced very high resolution radiometer (AVHRR) aboard the NOAA satellite can provide daily data on the number of fires in Brazil. The fires are identified in the AVHRR 3750 nm channel [Setzer and Pereira, 1991]. The total number of fire pixels for different Brazilian states are summarized in Figure 1. One complication in this multiyear comparison is that different instruments and different satellites have been used. Until August 14, 1995, the afternoon NOAA 14 satellite was used, whereas from August 15 to the end of the burning season in 1995, the morning NOAA 12 satellite was used. A similar procedure was adopted to detect fires in 1994 from two NOAA satellites, but the afternoon NOAA 11 was used first, which was then replaced by the morning NOAA 10. Switching between satellites was dictated by the change in the diurnal passing time of the afternoon satellites, which affected the reflection of sunlight at 3700 nm and the ability to observe the fires. The rate of fire detection from both sensors was compared for the August period and used to recalculate the fire rate. The recalculated fire count is shown in Figure 1. Figure 1 shows that the fire activity in 1995 was in the upper range of fire activity and biomass burning for other years.

4.2. Deforestation

Deforestation accounts for a major part of biomass burning in Brazil [Skole and Tucker, 1993]. Figure 2 shows the rate of deforestation in Brazil, based on analysis of Landsat images by the Ministry of Science and Technology, Brazil. For the period 1978–1988 the average estimate of deforestation is plotted. The rate of deforestation in the 1990s is lower than in the 1980s. However, in 1995 the rate of deforestation was double that in previous years and in 1996.

4.3. Emissions of Smoke Particles, Black Carbon and Ozone Formation

During the 1990s, long-term, ground-based monitoring of the emission of trace gases and aerosols from biomass burning was conducted by INPE and the University of São Paulo [Kirchhoff, 1988; Artaxo et al., 1988, 1994]. The concentrations of fine and coarse mode particles (under and above 2 μm diameter, respectively) and the equivalent concentrations of black carbon, as derived from absorption measurements, are shown in Figure 3 [Artaxo et al., 1988, 1990, 1994, 1997]. The concentration of smoke particles was high in Alta Floresta in 1995, probably due to enhanced deforestation, but lower in Cuiabá. The black carbon fraction was higher in Cuiabá than in Alta Floresta.

Ozone is a by-product of biomass burning and depends in complex ways on the concentrations of CO, hydrocarbons, NO_x, and the availability of sunlight. Ground-based ozone measurements were made at two sites: Natal, on the eastern corner of northern Brazil, upwind from South American biomass burning, and in air that enters Brazil; and Cuiabá in the center of the cerrado region where smoke concentrations are high due to transport from the north and northeast as well as from local sources [Kirchhoff, 1996]. The difference between the diurnal cycle of ground-based ozone at these two sites, shown from 1990 to 1995 in Figure 4, is a clear indication of the effect of biomass burning on daily ozone production. As in the case of the fire count, or the concentration of smoke particles and black carbon in Cuiabá (Figures 1 and 3), the ozone concentrations show that 1995 was in the upper range for biomass burning, similar to 1993 and 1994. In 1992, the year of the TRACE-A experiment, the rainy season arrived earlier. 1992 also had a relatively low fire count (Figure 1) and was a minimal year for smoke and black carbon both in Cuiabá and Alta Floresta. Higher ozone and NO_x concentrations at higher altitudes were detected during the TRACE-A experiment in Natal (not shown) as compared to SCAR-B. These higher concentrations are due to long-range transport from Africa and South America and enhancement by lightning [e.g., Pick-

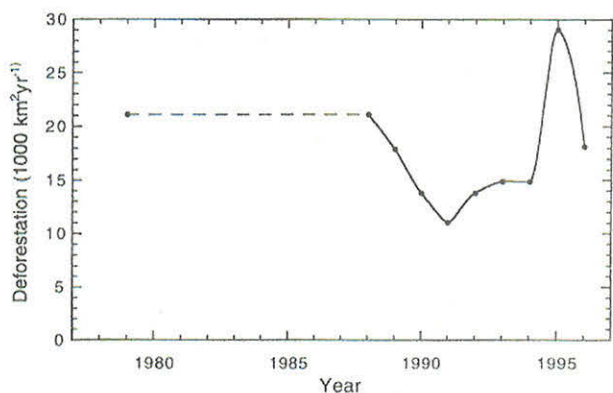


Figure 2. Rate of deforestation in km²/yr (from INPE/MCT, Ministry of Science and Technology, Brazil). The dashed line between 1979 and 1988 indicates a multiyear average. Note that the reported value for the additional deforestation between two consecutive years (e.g., 1990 and 1991) is plotted for the later year (e.g., 1991). The deforestation during 1995 was significantly larger than during the other years.

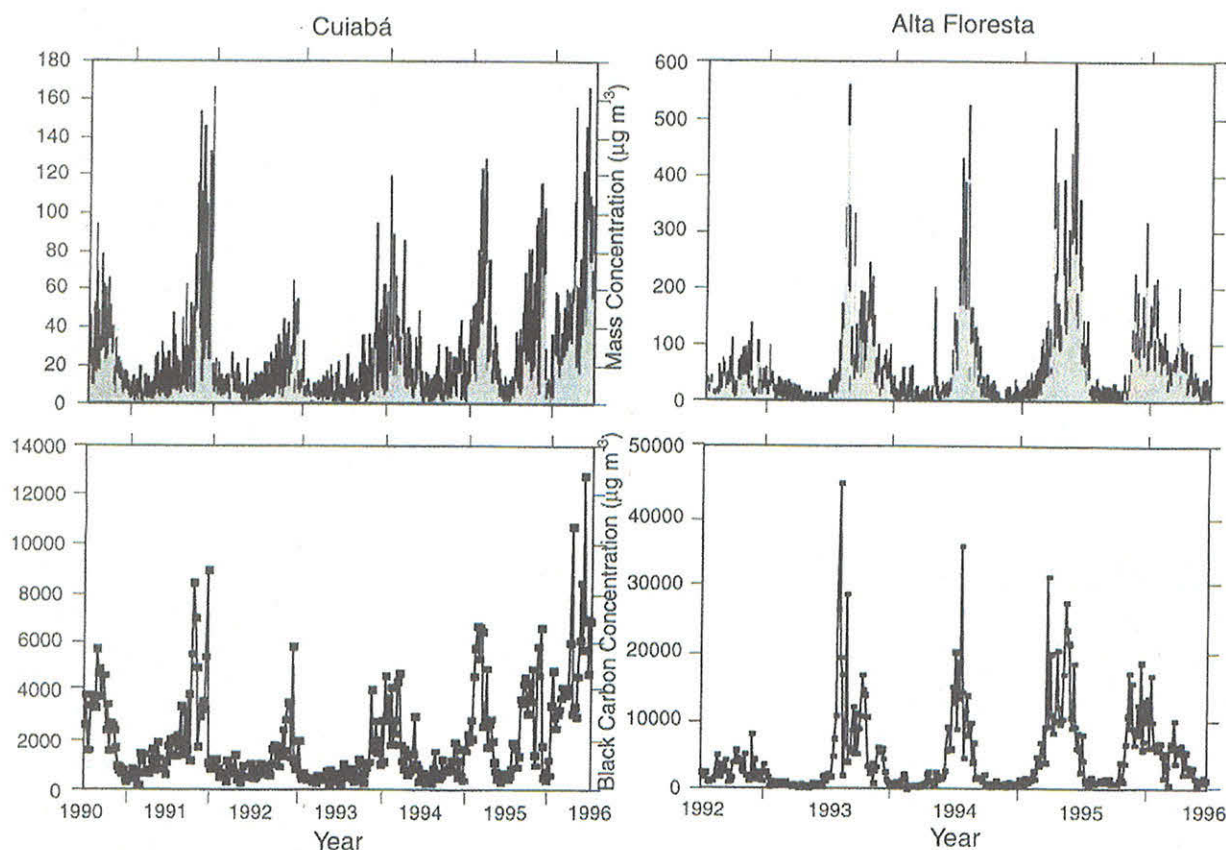


Figure 3. Ground-based measurements of the concentrations of smoke particles (top panels) and equivalent black carbon concentration derived from absorption measurements (bottom panels). The particle concentration ($\mu\text{g m}^{-3}$) is shown in gray for the fine particle mode (diameter $<2 \mu\text{m}$) and in black for the coarse mode (diameter $>2 \mu\text{m}$). The results for Cuiabá (326 samples), representing cerrado and agricultural fires, collected from 24 July 1990 to 2 September 1996, are shown on the left. The results for Alta Floresta (353 samples), representing deforestation and regrowth fires, are given on the right for the period from August 23, 1992 to October 25, 1996. The concentrations of black carbon were derived from light absorption measurements.

ering et al., 1996; Thompson et al., 1996; Kirchoff and Avalá, 1996].

4.4. Regional Smoke

Measurements from the Nimbus 7 TOMS instrument can be used to estimate the regional rate of emission of aerosol particles from biomass burning in the Amazon Basin and cerrado. The TOMS instrument measures the effect of aerosol absorption on the scattering of solar ultraviolet radiation from the Earth's atmosphere. Smoke aerosol absorbs ultraviolet radiation, which has a stronger effect on the TOMS 340 nm channel than on the 380 nm channel. This differential absorption is used to derive the aerosol index [Herman et al., 1997b]. The differential absorption and the 380 nm radiance can be used to retrieve the aerosol optical thickness (AOT) at 380 nm, τ_{380} [Hsu et al., 1996; Torres et al., 1998; Gleason et al., this issue]. The AOT retrieval is dependent on aerosol model assumptions and the aerosol scale height. The analysis of the TOMS data is particularly important due to its long-term data record, which was recently integrated and intercalibrated [Herman et al., 1997b]. The area of the Brazilian cerrado and forest covered by smoke is shown in Figure 5 for four thresholds of the smoke optical thickness. Similar smoke aerial coverage data for 1978

through 1995, using multiple satellites, is shown by Gleason et al. [this issue]. The integrated smoke loading (given by the product of the smoke area covered by a given smoke optical thickness) is also plotted. The smoke loading varies from year to year by more than 50%. Comparison with the fire count from AVHRR (Figure 1) shows that 1992 had less smoke and fewer fires than 1991. Comparison with the ozone production shown in Figure 4 confirms that 1991 had a stronger biomass burning signal.

4.5. Summary of Interannual Variability

The measures of deforestation, fire frequency, and concentration of emissions, shown in Figures 1–5, provide an overall picture of the interannual variability of biomass burning in Brazil. On the basis of these indicators, it is clear that biomass burning in 1995 was relatively high (see Figures 1, 3, and 4). In particular, the rate of deforestation was large in 1995. An additional common feature shown by these features is the lower rate of biomass burning in 1992.

5. Meteorological Conditions in SCAR-B

A meteorological operations center was set up at the Brazilian office of IBAMA (Instituto Brasileiro do Meio Ambiente

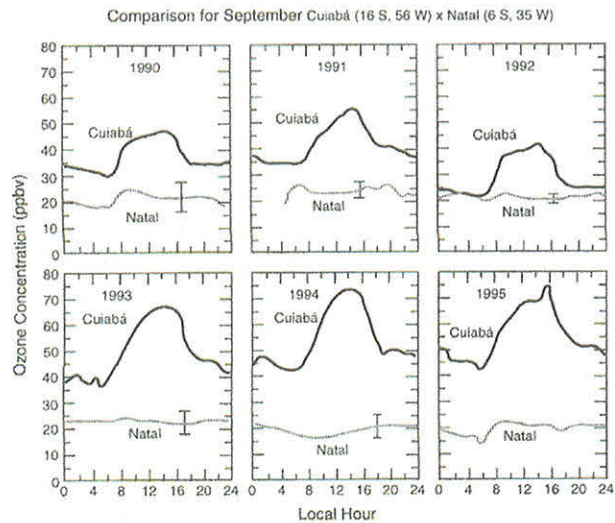


Figure 4. Time evolution of surface ozone concentrations measured at Cuiabá (16°S, 56°W), in the middle of the biomass burning area, and Natal (6°S, 35°W), on the northeastern Atlantic Coast of Brazil. Natal receives air from the east and is therefore not directly affected by smoke from biomass burning. The measurements are for the month of September. A clear tendency for increasing ozone concentration due to biomass burning can be seen (from Kirchhoff [1996]).

e dos Recursos Naturais) to guide the SCAR-B field operations. Data from the INPE meteorological center, Centro de Previsão de Tempo e Estudos Climáticos (CPTEC), and GOES 8 satellite data analyzed for smoke, clouds, and fire

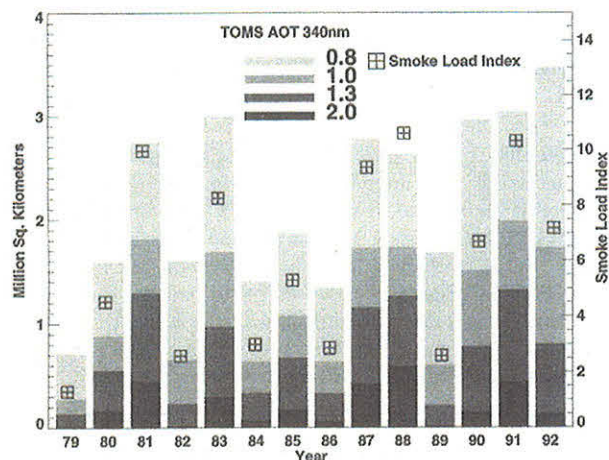


Figure 5. Long-term smoke measurements from TOMS. The gray bars show the area covered by smoke with TOMS-detected aerosol optical thickness (AOT) at a wavelength of 340 nm exceeding a given threshold (shown in the legend). The term "effective" is used for AOT since the measurements depend on assumptions concerning aerosol absorption and vertical profile. The area is used to calculate the total smoke load index (in units of km², sum of the products of the effective AOT and the corresponding area covered by it) and is shown by the symbols for each year. The data are detected in an L-shaped box between 40° and 70°W and 2°N and 30°S (see Gleason et al. [this issue] for more details).

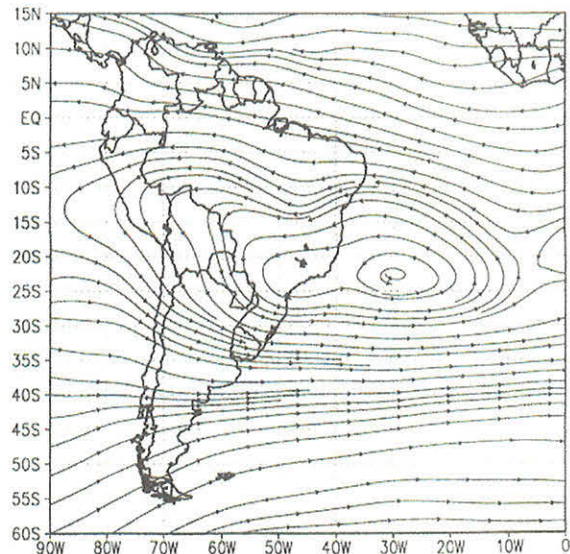


Figure 6. Time-averaged 700 mbar wind field for the SCAR-B period (August 16 to September 10, 1995), derived from four daily (0000, 0600, 1200, and 1800 UTC) National Centers for Environmental Prediction (NCEP) global reanalyses.

distribution were obtained electronically and displayed in the SCAR-B operations center in IBAMA. Meteorological forecasts were based on the numerical weather prediction models of CPTEC and the medium-range forecast and aviation models from the U.S. National Center for Environmental Prediction (NCEP). Detailed meteorological information from the INPE meteorological center, CPTEC, and the location and transport of smoke from the GOES satellite images was monitored continuously and used to aid decision making on deployment of the aircraft [Prins et al., this issue; Nobre et al., this issue].

Average streamlines over South America during the August–September 1995 time frame of SCAR-B are shown in Figure 6. The meteorological conditions are described in detail by Nobre et al. [this issue] and summarized below. The large-scale systems responsible for the climate in the region covered by SCAR-B are the Intertropical Convergence Zone (ITCZ) in the north, frontal systems (FS) pushing up from the south, and the South Atlantic subtropical high (SASH) off the east coast of Brazil. In the southern hemisphere winter the ITCZ generally migrates northward, reducing large-scale convective rainfall. The FS reach their lowest latitudes in South America during this season; however, they bring cold surges without convective activity. The combination of these two factors creates a typically dry region over most of Brazil during the southern hemisphere winter, called the "dry season."

During the dry season, the SASH drifts back toward the continent from its wet season location in the mid-Atlantic (see Figure 6 for the conditions in the dry season). Together with the presence of the Andes, the SASH generates the air circulation shown in Figure 6. East winds dominate the northern parts of the SCAR-B area. The western part has northern winds with lower speeds, higher temperatures, and lower pressure. The anticyclonic circulation persists throughout the lower troposphere to an altitude of 5 km, causing long periods of little cloudiness. This system was dominant during SCAR-B,

blocking and diverting the FS at lower latitudes toward the ocean. The anticyclonic pattern creates high-level subsidence that decreases humidity and results in stagnant conditions conducive to the formation of hazes in the boundary layer. During August and the first half of September 1995 a strong SASH generated higher temperature and lower humidity than usual, which virtually eliminated convective activity in the central area of the cerrado. The result was a very dry season and high incidences of fires and smoke, as evident in Figures 2 and 4. After the termination of SCAR-B on 15 September the SASH weakened and cloudiness increased.

Trajectory analyses are shown in Plate 3. Forward trajectories (Plate 3a) show mostly stagnant conditions that initially kept the smoke close to the source regions but then eventually transported the smoke from the major biomass burning regions following the anticyclonic flow. Cuiabá, where many of the SCAR-B measurements took place, received smoke from the north and northeast and maritime and urban air from the southeast and southwest (Plate 3b). The origin of the air mass up to 800 mbar over the central cerrado area was predominantly from the east but with occasional bursts from the northern and even southern quadrants [Freitas *et al.*, 1996; Longo *et al.*, 1998]. There is an apparent contradiction between the trajectory analysis, which shows transport over the Atlantic, and the analysis of AVHRR data for aerosol over the ocean, which does not show this transport [Husar *et al.*, 1997]. This is due to the association of the transport of the smoke with heavy clouds. Analysis of GOME data (Plate 3) during the SCAR-B experiment (GOME observes smoke in a similar fashion to TOMS) shows substantial transport of smoke to the Atlantic Ocean. The analysis of the GOME ultraviolet data is less sensitive to the presence of clouds and shows, in this case, 10% of the smoke present over the ocean. Analysis of smoke occurrence in GOES images during the dry season of June to October 1995 [Prins *et al.*, this issue] shows that the smoke presence over the Atlantic Ocean south of 20°S is 15–20% of that over South America. The smoke presence is calculated as a summation of the area covered by smoke throughout the 5 month period. Note that because of the larger cloud cover and higher speed of transport over the ocean, the actual fraction of the smoke exiting from South America to the Atlantic can be higher. Chemical analysis of air samples over the Atlantic Ocean during TRACE-A in 1992 confirm the influence of smoke from biomass burning in South America and from Africa [Gregory *et al.*, 1996]. In 1992 there was a vertical separation between the smoke from South America, which was carried aloft by strong convection, and the smoke advected from Africa, which was located below [Browell *et al.*, 1996].

6. Overview of SCAR-B Measurements Program

The main instruments and platforms used in SCAR-B were (1) the NASA ER-2 high-altitude aircraft, which provided multispectral imagery and vertical profiles of clouds and aerosol; these measurements were used to derive fire thermal properties, burn scars, aerosol concentrations, cloud reflectance, cloud microphysics, temperature and spectral reflective properties of the surface, and locations of smoke and cloud layers in the vertical; the ER-2 aircraft conducted 11 flights between August 16 and September 11, 1995; (2) airborne in situ measurements and sampling of aerosol particles, trace gases, and clouds from the University of Washington C-131A research aircraft; measurements included emission factors, the chemi-

cal, physical, and optical properties of the aerosol (including the concentration and absorption by black carbon), trace gases, and profiles of the aerosol optical thickness; spectral bidirectional reflectances of various types of surfaces were measured by a scanning, multispectral radiometer to infer hemispherical albedo and to study the correlation of spectral reflectance between the visible and the shortwave-infrared wavelengths [Tsai *et al.*, this issue]. The C-131A aircraft conducted 29 flights in Brazil between August 17 and September 20, 1995 [Hobbs, 1996]; (3) airborne in situ measurements and sampling of aerosol particles and selected trace gases by the INPE Bandeirante aircraft; (4) ground-based remote sensing of aerosol from the Aerosol Robotic Network (AERONET). These autonomous Sun photometers provide solar spectral measurements every 15 min that can be used to derive spectral aerosol optical thickness and total precipitable water vapor; once an hour, AERONET provides the spectral sky radiance used to derive aerosol size distributions and estimates of the refractive index of the aerosol and solar absorption by the aerosol; these instruments were operated in Brazil from 1993 to 1995. (5) ground-based in situ measurements at Cuiabá, Alta Floresta, and Natal of the downward spectral radiation field as well as smoke aerosol properties, including size distributions, CCN concentrations, and elemental composition; ground survey measurements of vegetation properties, their spectral and angular reflectance, biomass fuel before and after fires, and fire development; (6) ozonesondes were launched from Cuiabá; and (7) satellite imagery (GOES and AVHRR) were collected to guide the field operations by showing the locations of fires and smoke, for comparisons with the aircraft measurements, and to represent the whole diurnal cycle.

The location of the aircraft on eight representative days of SCAR-B are shown in Plate 4 against a background of the GOES satellite imagery. While the fast-flying ER-2 was able to cover large areas of the cerrado and forest regions on every flight, the C-131A operated successively in several locations obtaining detailed in situ measurements, and shifting its operation center clockwise across the cerrado and Amazon Basin, from Brasília at the beginning of the experiment (Plate 4a) to Cuiabá (Plates 4b through 4c), Porto Velho (Plate 4f through 4h), and eventually to Marabá (see Figure 7) after the ER-2 left Brazil. Figure 7 shows the ground-based stations with the AERONET Sun/sky radiometers and the ground-based sampling of aerosol and trace gases.

6.1. NASA ER-2 Aircraft

Between August 16 and September 11, 1995, the NASA ER-2 aircraft conducted 11 research flights in Brazil as part of the SCAR-B campaign. With its stability, long range (speed of 750 km h⁻¹), and high altitude (20 km), it is an excellent platform to simulate satellite observations of the Earth surface and atmosphere. During SCAR-B the ER-2 was equipped with a cross-track scanning spectrometer (MODIS airborne simulator (MAS)), a hyperspectral imager (airborne visible/infrared imaging spectrometer (AVIRIS)), a downward looking lidar (cloud lidar system (CLS)), and a visible video camera (VIS camera) system.

The MAS is used for measuring reflected solar and emitted thermal radiation in 50 narrowband channels between 550 and 14200 nm [King *et al.*, 1996]. The instrument provides multispectral images of outgoing radiation for the remote sensing of cloud, aerosol, water vapor, and surface properties (see Plate 2). It scans perpendicular to the aircraft flight track with a scan

Trajectories Parcels Distribution SCAR-B

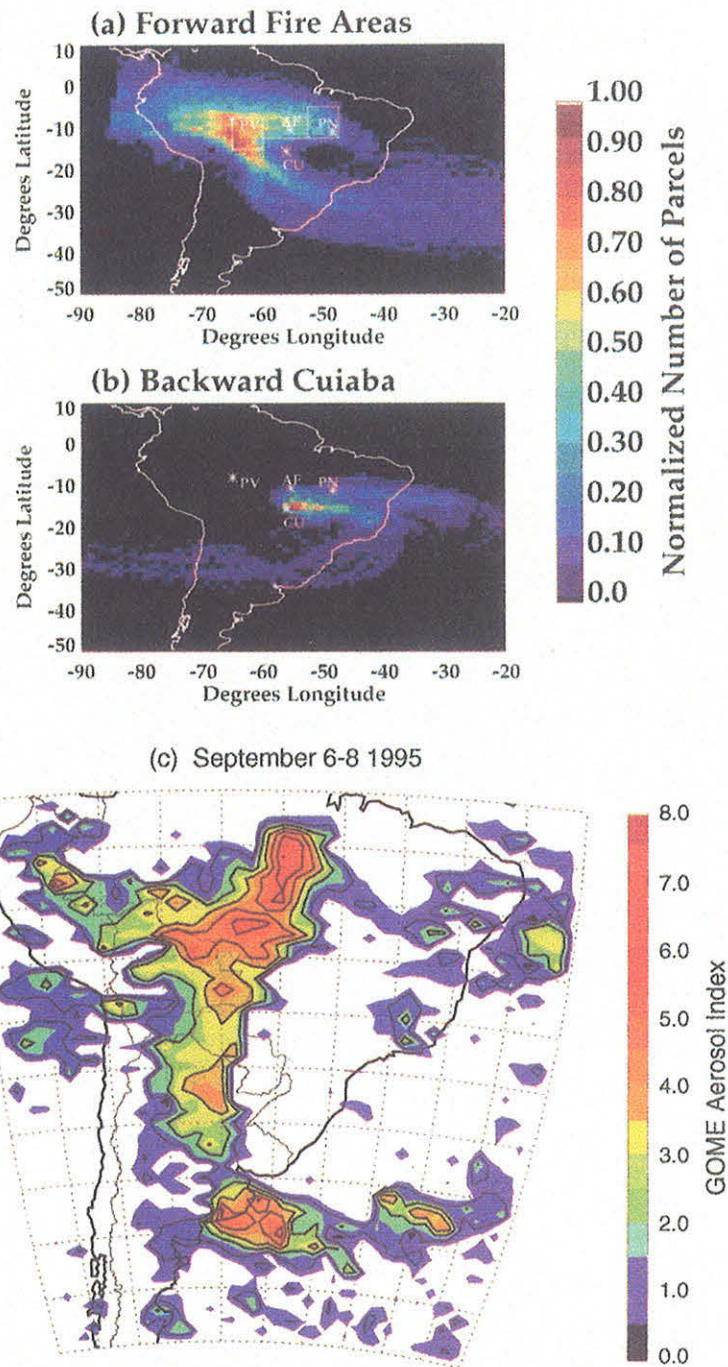


Plate 3. Hourly air parcel locations along (a) 6 day forward trajectories originating from the main biomass burning areas and (b) along 6 day backward trajectories starting from a cluster of points near Cuiabá (16°S , $>56^{\circ}\text{W}$). Starting levels are ~ 700 mbar. The trajectory starting points in Plate 3a are distributed according to the main biomass burning areas observed during the experiment from the GOES-8 fire product [Prins *et al.*, this issue]. The trajectories are three-dimensional cinematic calculated from the University of São Paulo model [Freitas *et al.*, 1996] using simulated wind fields with 80 km resolution. (c) Example of GOME data from September 6 to 8, 1995, during the SCAR-B experiment showing the transport of smoke to the Atlantic Ocean. Heavy clouds associated with the transport reduce the ability of satellites to observe it. In this case, 10% of the smoke detected by GOME is over the ocean.

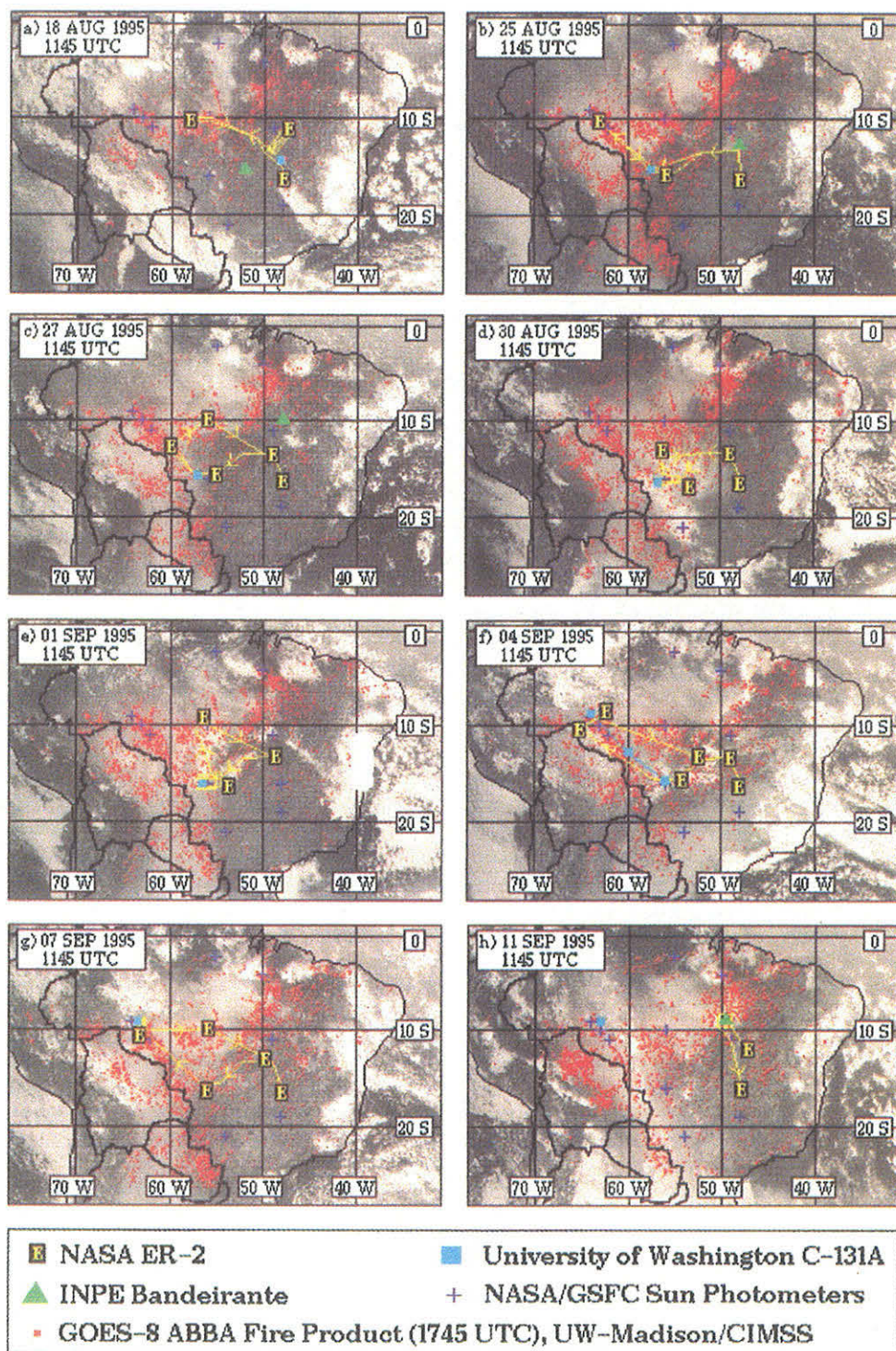


Plate 4. Locations of the SCAR-B aircraft on eight representative days against a background of the GOES satellite images. The GOES data show the distribution of fires (red dots), clouds (white choppy stains), and smoke (light gray smooth features). Ground not covered by smoke appears dark gray. The ER-2 was able to cover cerrado and forest regions on most of the flights; the C-131A operated in several locations moving from Brasília at the beginning of the experiment (a) to Cuiabá (b–e), then to Porto Velho (f–h), and finally to Marabá. The locations of the AERONET Sun/sky radiometers are also shown by the blue crosses.

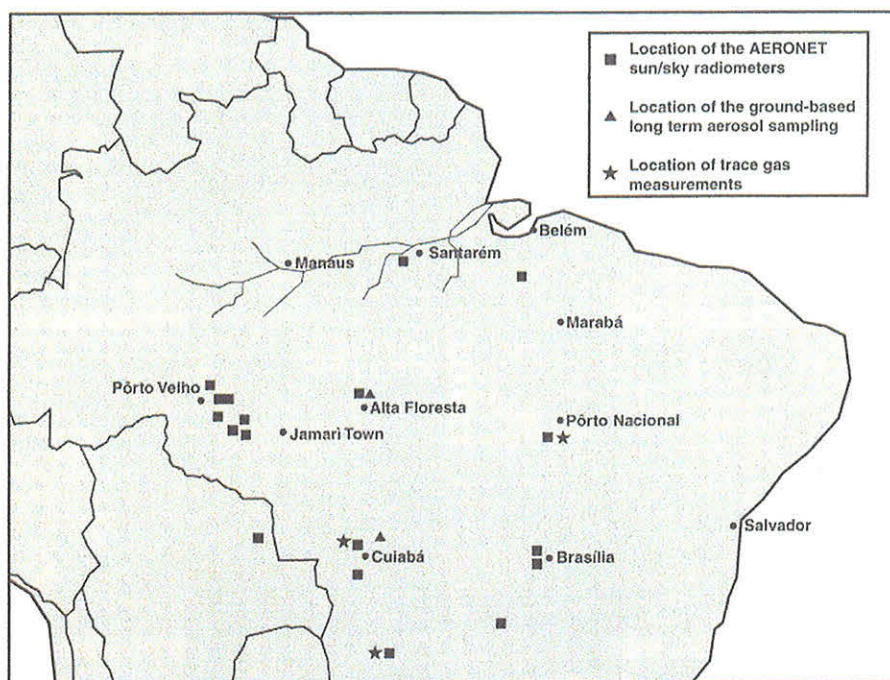


Figure 7. Location of the ground-based measurements. (squares) Location of the AERONET Sun/sky radiometers, (diamonds) location of the ground-based long-term aerosol sampling, (stars) location of trace gas measurements.

angle of $\pm 43^\circ$ about nadir, spatial resolution of 50 m at nadir, and a 37 km swath width. Radiometric calibration of the short-wave (< 2500 nm) channels is obtained by observing laboratory-standard integrating sphere sources on the ground before and after flights; calibration of the infrared channels is performed by viewing two onboard blackbody sources.

The AVIRIS is used to acquire reflected solar radiation in 224 narrow (10 nm width) contiguous spectral bands from 400 to 2500 nm [Vane *et al.*, 1993]. It is a whisk-broom imager, consisting of four spectrometers and linear array detectors, with a spatial resolution of 20 m at nadir and a 10 km swath width. Spectral and radiometric calibrations of the AVIRIS are performed yearly in the laboratory, while in-flight calibrations are conducted before, during, and after each flight season. The recently modified onboard calibrator is expected to achieve 1% stability in radiometric calibration. An AVIRIS image from SCAR-B is also shown in Plate 2.

The CLS is a nadir-viewing monostatic lidar [Spinhirne *et al.*, 1982]. It uses a pulse Nd:YAG laser, transmitting at 532 and 1064 nm with 20 m horizontal resolution. The highest attainable vertical sampling resolution is 7.5 m. This allows construction of detailed cloud and boundary layer aerosol topography and vertical structure (see Plate 2).

During SCAR-B, the ER-2 collected some 69 hours of MAS and CLS data and 11 hours of AVIRIS data. These data sets, taken together, constitute a rich source of information on smoke, clouds, and radiation in Brazil during the biomass burning season of 1995.

6.2. University of Washington Convair C-131A Aircraft

The University of Washington (UW) C-131A research aircraft flew 29 research flights (~ 90 flight hours) in SCAR-B

between August 17 and September 20, 1995. The flights ranged in location from $\sim 16^\circ\text{S}$ to 3°S and from $\sim 64^\circ\text{W}$ to 48°W , which covers the main cerrado and forested areas of Brazil (see examples in Plate 4).

The primary objectives of the C-131A flights were to collect data needed to determine the emission factors of gases and particles, the nature of the gases and particles emitted by various types of fire, the optical and radiative properties of the regional smoke and various types of surfaces, direct and indirect radiative forcing by the smoke, the evolution of smoke properties from local to regional scales, in situ measurements for comparison with remote sensing measurements from the AERONET, the ER-2 aircraft and satellites, and measurements of the spectral bidirectional reflectance function of a wide variety of surfaces in Brazil.

To achieve these goals, the C-131A carried comprehensive instrumentation for measuring the nature and concentrations of gases and aerosols, and surface radiative properties measured by the cloud absorption radiometer (CAR). The CAR, which is mounted on the nose of C-131A, contains 13 narrow-band spectral channels between 300 and 2300 nm with a 190° scan aperture (5° before zenith to 5° past nadir) and 1° instantaneous field of view [King *et al.*, 1986]. The bidirectional reflectance is obtained by flying a clockwise circular orbit above the surface, resulting in a ground track approximately 3 km in diameter within about 2 min [Tsay *et al.*, this issue]. A complete listing of the instrumentation on the C-131A and the types of data obtained in SCAR-B are given by Hobbs [1996]. The main data collected on the C-131A during SCAR-B were (1) aerosol and gas (NO , NO_2 , SO_2 , CO , CO_2 , O_3 , and hydrocarbons) measurements on smoke from 16 cerrado and grass fires and 16 forest and/or slash fires; (2) twenty-three samples for emis-

sion factors for particulates, NO, NO₂, SO₂, CO, CO₂, and total volatile organic compounds (VOCs); (3) four thousand measurements of aerosol size distributions in regional haze and plumes; (4) measurements of volatility of aerosols (at $\leq 320^{\circ}\text{C}$); (5) seventy measurements of humidification factor of aerosols from individual fires and in regional haze; (6) extensive effective black carbon measurements by four techniques (optical extinction cell (OEC), aethelometer, Teflon filters, and thermal-optical); on 26 occasions, simultaneous measurements were obtained using all four techniques; (7) one hundred and 30 measurements of single-scattering albedo of smoke from individual fires and in regional haze; (8) smoke-cloud interaction studies; (9) seven direct aerosol "closure" experiments over ground-based Sun photometers; (10) six coordinated flights with ER-2 aircraft (plus three other "crossings"); (11) four flights during satellite overpasses (AVHRR and Landsat); (12) and seven dedicated surface and smoke reflectivity measurements.

6.3. INPE Bandeirante Aircraft

The INPE Bandeirante aircraft flew from mid-August to mid-September 1995. In the first two weeks it concentrated on measurements of the spatial and vertical variability of trace gases and ozone. In the last two weeks it was equipped with aerosol and trace gas sampling devices and a nephelometer to sample smoke from individual fires and regional smoke haze. The location of the Bandeirante on some representative days is shown in Plate 4.

6.4. AERONET

During SCAR-B the AERONET, consisting of 13 autonomous Sun/sky radiometers, was deployed in the Amazon and cerrado regions of Brazil (see Figure 7). The AERONET provides remote sensing of aerosol loading and properties from the ground, providing validation of aerosol optical properties retrieved from the EOS and ADEOS satellite instrumentation [Holben *et al.*, 1998]. The measurements characterize aerosol properties through continuous long-term monitoring at selected sites around the globe.

AERONET instruments measure the direct solar spectral irradiance and the angular distribution of sky brightness in cloud-free or low-cloud conditions. The data collected by these autonomous instruments, which were preprogrammed and used solar power for energy, were transmitted to satellites and then to NASA GSFC. The data, screened for clouds, were interpreted into spectral aerosol optical thickness, aerosol size distribution, phase function, and for some sites, polarization of sky radiances. The spectral dependence of the optical thickness was represented by the Ångström exponent (defined as the slope of the logarithm of optical thickness as a function of logarithm of wavelength between 440 and 870 nm). The measurements represent the whole atmospheric column of aerosol. The total precipitable water vapor was also derived from the differential absorption of water vapor at 940 nm relative to 860 nm. Observations were made at 15 min intervals of the direct Sun in eight spectral wavelengths from 340 to 1020 nm. Measurements of sky radiance (440, 670, 870, and 1020 nm) were made at hourly intervals in an almucantar (a horizontal plane containing the Sun) or principal plane (a vertical plane containing the Sun) scanning mode. In the absence of clouds the almucantar data can be inverted to particle volume size distributions, aerosol optical thickness, and phase function, using a

fast radiation transfer inversion code [Nakajima *et al.*, 1996; Holben *et al.*, 1996; Kaufman and Holben, 1996].

6.5. Ground-Based Measurements

In addition to the long-term monitoring of trace gases and the production of ozone and smoke aerosol discussed in reference to Figures 1 and 3, measurements were made in SCAR-B of (1) the meteorological conditions in the boundary layer and their effects on the dispersion of pollutants (e.g., mercury) in the atmosphere [Alvalá *et al.*, 1996]; (2) the effects of biomass burning on vegetation and nutrients [Guild *et al.*, this issue; Castro *et al.*, this issue]; (3) the energy budget and distribution of heat in the boundary layer [Ross and Hobbs, this issue; T. A. Tarasova *et al.*, unpublished data, 1998], and (4) ground-based measurements of the cloud conditions, nuclei spectrum, and emission factors of individual fires and of the properties of smoke aerosol in regional smoke haze, conducted with the fire atmospheric sampling system (FASS) and compared with the Bandeirante and C-131A aircraft [Babbitt *et al.*, 1996]. Smoke aerosol samples collected on filters were used to determine the elemental compositions and origins of the aerosol [P. Artaxo *et al.*, unpublished data, 1998; Martins *et al.*, this issue (a), (b)].

6.6. Satellite Data

Throughout the 1995 biomass burning season in South America (June–October) the Cooperative Institute for Meteorological Satellite Studies (CIMSS) at the University of Wisconsin-Madison collected 3 hourly, multispectral (visible, 3900, 10,700, and 12,000 nm) Geostationary Operational Environmental Satellite (GOES 8) imagery to monitor diurnal fire activity and smoke coverage and transport [Prins and Menzel, 1996]. The study domain included the continent of South America and the South Atlantic Ocean. In support of SCAR-B, half hourly GOES 8 data were collected coinciding with the NASA ER-2 flights. A preliminary version of the CIMSS GOES 8 automated biomass burning algorithm (ABBA version 1.0) was operational during SCAR-B and provided diurnal information on the location of fires and of the extent and transport of smoke throughout the Amazon Basin and over the South Atlantic Ocean (for examples, see Plate 4). GOES 8 imagery, conventional meteorological data, and GOES 8 derived fire and smoke products were also made available daily to SCAR-B scientists, in near-real time as guidance for field program planning.

NOAA 14 advanced very high resolution radiometer (AVHRR) local area coverage (LAC) data were also collected during the experiment and used to estimate the spatial and temporal distribution of fires and smoke during SCAR-B.

7. Overview of SCAR-B Findings

7.1. Fire Properties, Distribution, and Remote Sensing

Fires were detected in SCAR-B using the 20 m resolution AVIRIS and the 50 m resolution MAS on the ER-2 and from GOES (with 4 km resolution) and AVHRR (with 1 km resolution) on satellites. While the ER-2 provided periodic measurements of the fires in many spectral bands and with high spatial resolution (see Plate 2 and Kaufman *et al.* [this issue] and King *et al.* [this issue]), the satellites measured the regional distribution of fires once a day (AVHRR) or several times a day (Plate 4 and GOES [Prins *et al.*, this issue]). The spatial resolution of the images determines the number of fires that

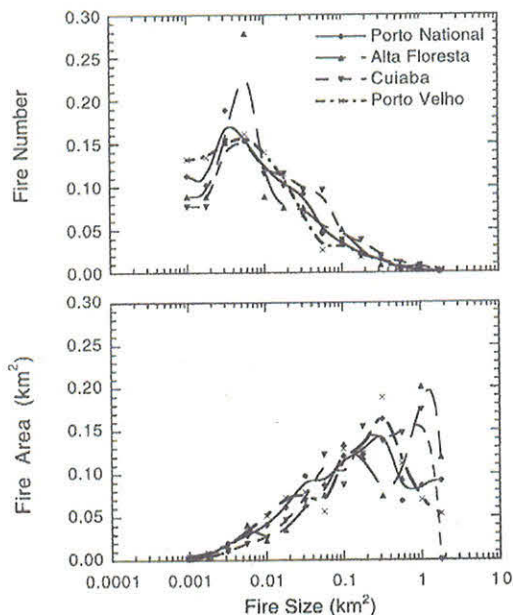


Figure 8. Histograms of the fire size distribution for four locations in Brazil sampled by the MAS instrument on the ER-2 in SCAR-B. Fires are detected using the 3950 nm channel (fire pixel is detected for apparent temperature at 3950 nm $>$ 335 K). (top) The distribution of number of fires as a function of the fire size. (bottom) The distribution weighted by the fire area. All the distributions are normalized to a total probability of 1.0 (data from Kaufman *et al.* [this issue]). Note that the fire size is defined here by the MAS 50 m pixels that have an average apparent temperature at 3950 nm $>$ 335 K.

can be detected, since most fires have a very small flaming or smoldering region, much smaller than 1 km². The fire number distribution (Figure 8a) shows maximum concentration of fires of 0.005 km² in size. This is the size of the hot region with apparent temperature at 3950 nm greater than 335 K based on MAS observations. Most of these fires cannot be detected by the 1 or 4 km resolution satellite instruments. However, weighting the number of fires by their area (Figure 8b), shows that the bigger fires, which can be observed from satellites, dominate the fire aerial distribution and therefore the rate of biomass burning and emissions. Detailed analysis of the fire detection scheme of the MODIS instrument (1 km resolution) shows that for the four locations studied, MODIS should detect 25% of the fires, but these fires include 60–85% of the thermal radiative energy, a measure that is expected to reflect the rate of biomass burning [Kaufman *et al.*, this issue]. In a previous experiment, we correlated the rate of emission of the fire radiative energy with the rate of emission of smoke into the clean environment of the Northwest United States. In SCAR-B we found a correlation of $r = 0.99$ between the integral of the rate of emission of fire radiative energy and the increase in the size of the burn scar formed by that fire. These measurements were taken in the cerrado region [Kaufman *et al.*, this issue]. Therefore MODIS detection of the thermal energy radiated from the fires should be a good measure of fire intensity and the rate of biomass burning. Only small, nonsystematic differences between the four locations shown in Figure 8 are observed, despite differences in the vegetation cover.

The diurnal evolution of fires was measured in a cerrado region north of Porto Nacional by the ER-2 on September 11. The results plotted in Figure 9 for four flight segments show an increase in the fire density, and an increase in the fire size, as a function of time from noon 1200 (1600 UTC) to 1700. The diurnal cycle is also detected by the GOES 8 fire products that include fire location, ecosystem type, estimates of fire size and temperature at 1145, 1445, 1745, and 2045 UTC each day from June to October 1995 [Prins *et al.*, this issue]. Throughout SCAR-B the GOES 8 ABBA detected a strong diurnal cycle in fire activity, with a peak burning in the middle of the afternoon (1745 UTC), in agreement with the ER-2 data and measurements and observations from the Convair C-131A. Plate 5a provides an example of the fire product at 1745 UTC on August 24, 1995, which was one of the peak burning days during SCAR-B. The figure shows the location of over 4400 fires detected by GOES 8 on this day. The majority of fires were concentrated along the perimeter of the Amazon Basin, in the Brazilian states of Para, Mato Grosso, Amazonas, and Rondonia. There is also considerable activity in Bolivia, Paraguay, and northern Argentina. Large smoke palls were identified in the GOES 8 visible imagery throughout the burning season. During SCAR-B, smoke coverage extended over a large por-

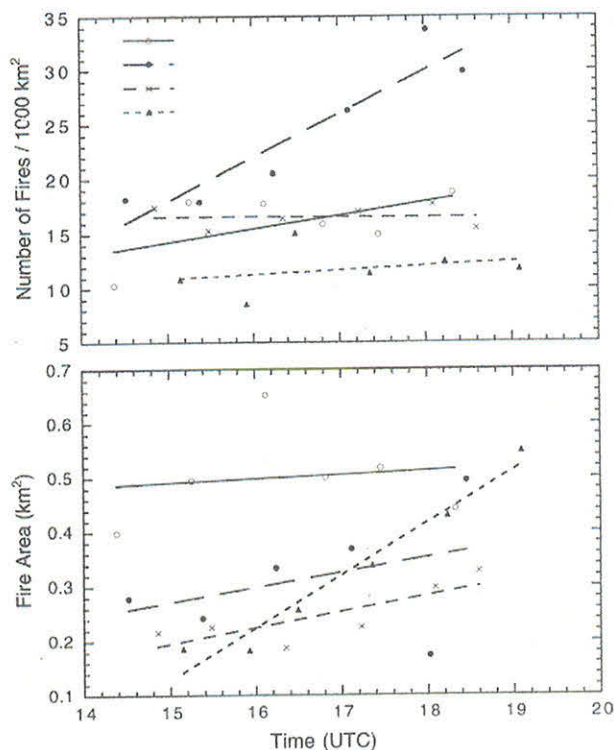


Figure 9. Time dependence of the density of fires (top) and the average area of fires (bottom) measured by the MAS instrument on the ER-2 on September 11, 1995, over a cerrado region north of Porto Nacional, Brazil. The ER-2 returned 6 times to the same four legs of a square box, bounded by latitude lines of 8.2°S and 9.5°S and longitude lines 49°W and 50.5°W. The local time was 4 hours less than UTC, therefore the six repeated measurements occurred from noon until 1700 LT. The different symbols correspond to four legs of a box flown by the ER-2. The straight lines are least square fits to the data on each leg.

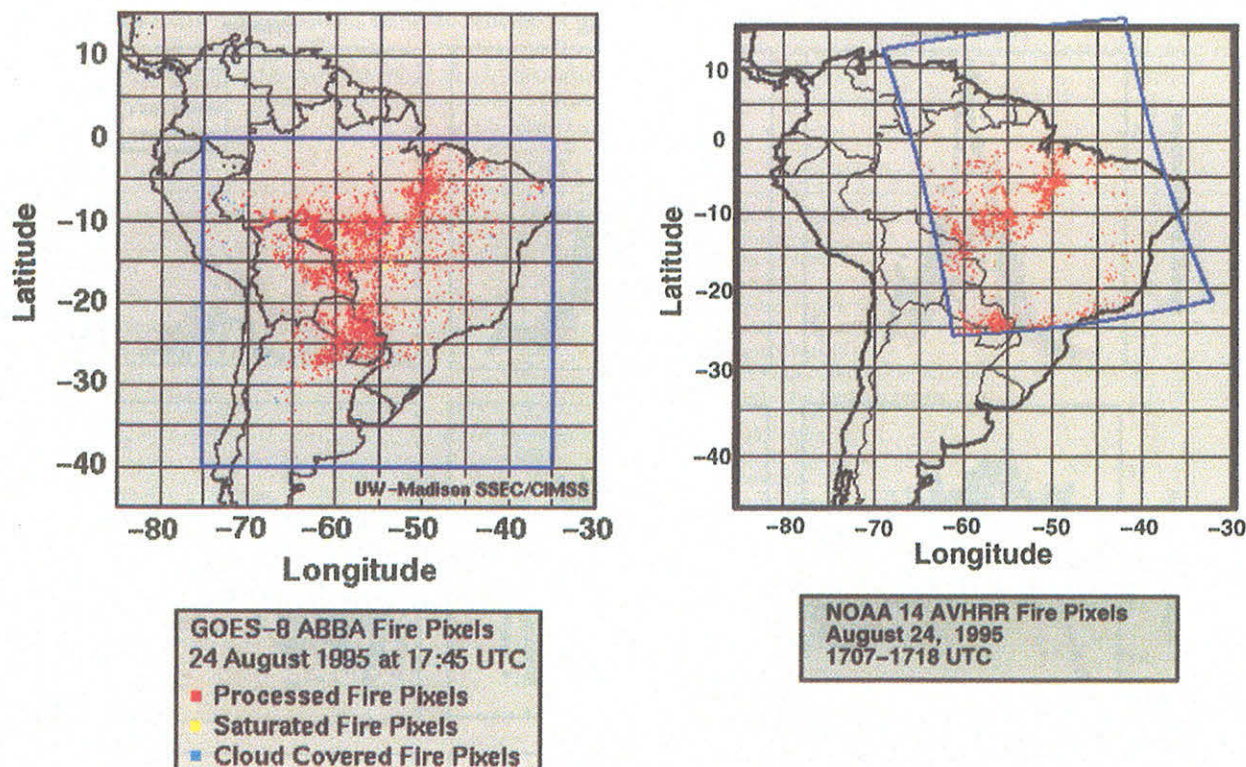


Plate 5. Example of fire detection from satellites by GOES-8 (4 km resolution 3950 nm channel) and AVHRR (1 km resolution 3750 nm channel). (a) The GOES-8 fire product at 1745 UTC on August 24, 1995, one of the peak burning days during SCAR-B, showing the locations of over 4400 fires detected with the GOES-8 ABBA algorithm. The red markers indicate fires that were processed by the GOES-8 ABBA providing estimates of subpixel fire size and temperature; yellow indicates saturated fire pixels; and blue represents cloud-covered fire pixels. (b) NOAA-14 advanced very high resolution radiometer (AVHRR) local area coverage (LAC). The red dots indicate the fire pixels, and the region enclosed in blue is the area covered by the NOAA-14 AVHRR for this day between 1707 and 1718 UTC.

tion of the continent east of the Andes Mountains for a period of several weeks, with transport over the Atlantic Ocean on many days [Prins *et al.*, this issue].

Fire pixels were also identified from the NOAA 14 AVHRR 1 km resolution data using a series of spectral conditions, and the results are categorized for major ecosystems within South America. An example of the AVHRR-derived fire pixels for 24 August 1995, is shown in Plate 5b. The red dots indicate the fire pixels detected in the enclosed area covered by the NOAA 14 AVHRR for this day between 1707 and 1718 UTC. The fire activity is mainly in the states of Rondonia, Para, Amazonas, and Mato Grosso. A total of 3150 fire pixels were detected from this image, with large smoke palls extending from Rondonia and Mato Grosso into Bolivia, Paraguay, and Argentina. A comparison to the GOES 8 fire detection shows similar fire patterns along the perimeter of the Amazon in the states of Maranhao, Tocantins, Para, Mato Grosso, Rondonia, and Amazonas, although the GOES 8 ABBA shows considerably more fire activity in Rondonia. The ABBA also shows more fires in the cerrado/grassland regions of eastern Brazil and in Paraguay. The AVHRR fire product shows more fire activity associated with deforestation along the Amazon River and along the Atlantic Coast in southeast Brazil. The difference in fire counts for NOAA 14 AVHRR (3150) and GOES 8 (4417) is due, in part, to a difference in study domains as depicted in the blue outlines in Plate 5; it also reflects the difference in

observing time, sensing capabilities, and fire detection algorithms. Although the NOAA 14 and GOES 8 observing times are separated by less than 1 hour in this example, the strong diurnal cycle in burning may result in significant changes within this time period.

7.2. Emission Factors

The modified combustion efficiency (MCE) and the emission factors (EF in g kg^{-1}) of trace gases and smoke particles from individual fires were measured by the FASS system from a ground-based station in Porto Velho and from the Bandeirante aircraft [Babbitt *et al.*, 1996]. They were also measured aboard the C-131A aircraft [Ferek *et al.*, this issue; Reid and Hobbs, this issue]. The modified combustion efficiency is defined as

$$\text{MCE} = \frac{[\text{CO}_2]}{[\text{CO}] + [\text{CO}_2]} \quad (1)$$

The main results are summarized in Table 2. Detailed results are given in the above referenced papers in this special issue. While the FASS measurements concentrated on a few fires and on comparisons between ground-based and aircraft measurements, the measurements made aboard the UW C-131A aircraft were for a wide variety of vegetation (grass, cerrado, forest) and in various regions of Brazil.

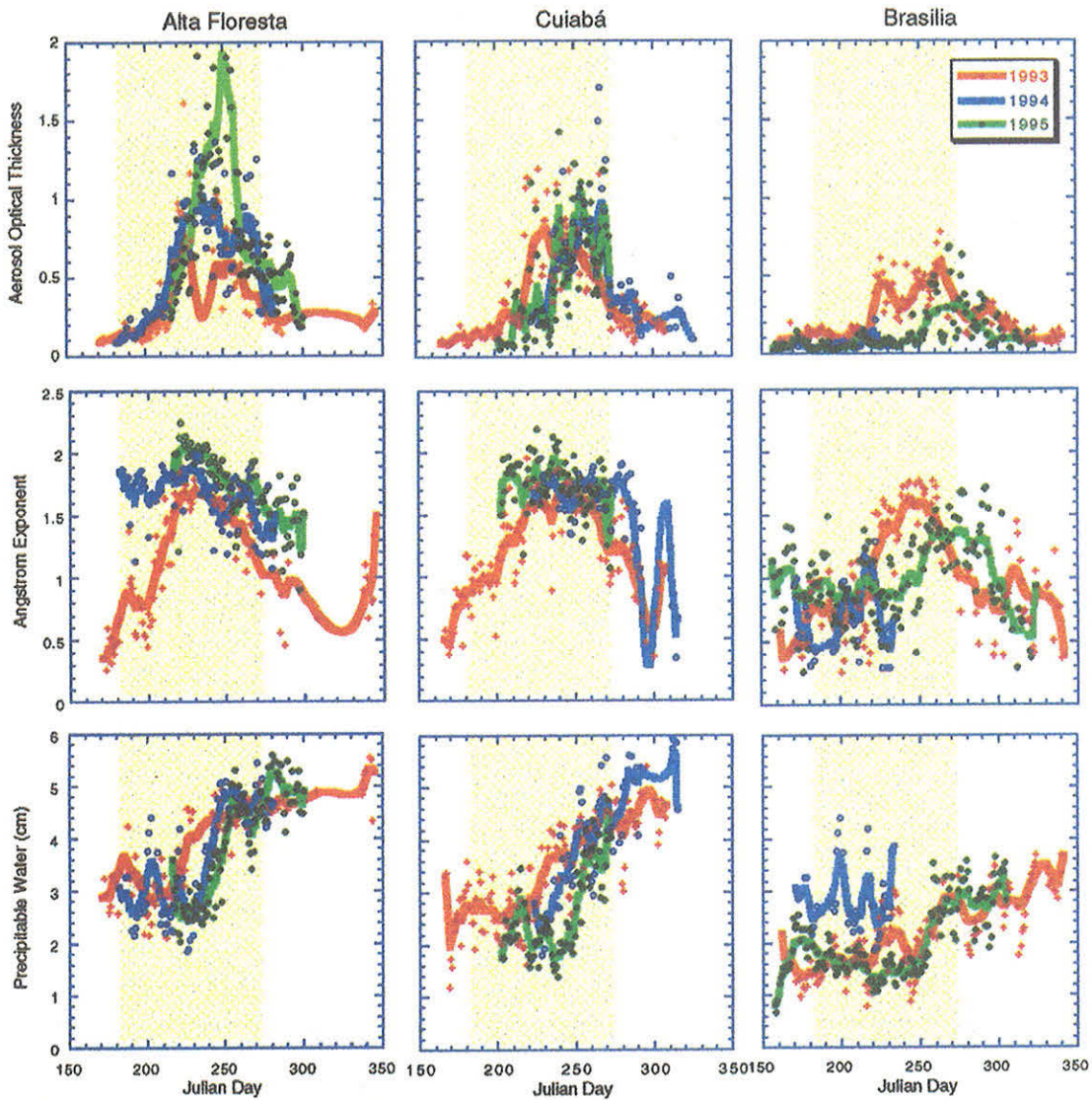


Plate 6. Measurements from the AERONET Sun/sky scanning spectral radiometers at three SCAR-B sites for 1993–1995. (top row) Aerosol optical thickness at 670 nm. (middle row) Ångström exponent (slope of the logarithm of the optical thickness as a function of the logarithm of the wavelength between 440 and 870 nm). Higher values of the Ångström exponent correspond to larger contributions of smoke particles. Because of a failure of the 870 nm filter at Alta Floresta in 1994, the Ångström exponent for that year was based on 440 and 670 nm combination. (bottom row) Total precipitable water vapor, derived from the differential absorption of water vapor at 940 nm relative to 860 nm. The dots are daily averages approximately between 0900 and 1500 LST. A smooth curve is drawn through the data for each year. The yellow band in each figure shows the burning season (July 1 to September 30).

In agreement with ground-based measurements in Brazil and Africa [Ward *et al.*, 1992, 1996] the C-131A measurements showed hydrocarbon (HC) emissions to be associated with smoldering combustion (i.e., low temperature, inefficient combustion). The concentration of total nonmethane hydrocarbons (NMHC), as well as individual HC, correlated better with CO than with CO₂, regardless of vegetation type, in agreement with Lobart *et al.* [1991]. For NMHC versus CO the correlation coefficient (r) was generally $r > 0.90$, whereas for NMHC versus CO₂, the correlation was generally $r < 0.75$. Methane behaved similarly to the NMHC. The CO concentration is an

indicator of the combustion inefficiency given by (1-MCE) in Table 2.

Halocarbons exhibited a complex emission pattern. Only methyl bromide, methyl chloride, and methyl iodide appeared to derive unambiguously from biomass burning, and they correlated reasonably well with the MCE (see Table 2). The negative correlation indicates more efficient emissions in the smoldering stage, which is identified with a lower MCE.

SO₂ and NO_x behaved opposite to that of the HC, in that their emission factors increased with increasing combustion efficiency. Thus the emissions of these gases were associated

Table 2. Summary of Correlations Between Modified Combustion Efficiency (MCE = $[\text{CO}_2]/([\text{CO}_2] + [\text{CO}])$) and Emission Factors (EF in g/kg) of Trace Gases and Particles and Particles Sizes, Measured From Ground by FASS System [Babbitt et al., 1996] and From C-131A Aircraft [Ferek et al., this issue; Reid and Hobbs, this issue].

Parameter	Correlation Coefficient (r) With MCE	Biomass Type	EF/(1 - MCE)
<i>FASS Measurements From Ground and From Bandeirante [Babbitt et al., 1996]</i>			
Methane	-0.92	pasture	~70
Methane	-0.95 to -0.98	primary forest	84
NMHC	-0.28	pasture	27
NMHC	-0.87 to -0.91	primary forest	34 ± 9
Smoke fine particles ($d < 2.5 \mu\text{m}$)	-0.26	pasture	57
Smoke fine particles ($d < 2.5 \mu\text{m}$)	-0.44	primary forest	
	-0.72	ground-based measurements	13
		airborne measurements	40
<i>C-131A Measurements, [Ferek et al., this issue]</i>			
NMHC	-0.70	primary forest, cerrado, and pasture	10
Methyl bromide	-0.89 or -0.66	primary forest, cerrado, and pasture	1.16
Methyl chloride	-0.70	primary forest, cerrado, and pasture	
Methyl iodide	-0.81	primary forest, cerrado, and pasture	
Smoke fine particles ($d < 3.5 \mu\text{m}$)	-0.49	primary forest, cerrado, and pasture	10
SO ₂	0.36	primary forest, cerrado, and pasture; emission ratio of 0.02% per volume	
NO _x	0.39	primary forest, cerrado, and pasture; emission ratio of 0.2% per volume	
Parameter	Correlation Coefficient (r) With MCE	Properties	
<i>Reid and Hobbs [this issue]</i>			
Count median diameter (CMD) for young smoke from forest fires	0.83	CMD = 0.10 μm for MCE = 0.84 CMD = 0.14 μm for MCE = 0.98	
Particle volume median diameter (VMD)	-0.44	VMD for young smoke ~0.26 μm , VMD for older smoke in regional hazes ranged from 0.28 to 0.35 μm	
Black carbon	no correlation	about 6-8% of the emitted particle mass	

more with flaming combustion. The NO_x to CO₂ emission ratio measured on the C-131A was 0.2%. This is just under the range of 0.3-0.6% measured in Africa [Lacaux et al., 1996]. Higher NO_x emission rates in Africa can be expected due to the higher combustion efficiencies (95%) of these fires. Lacaux et al. [1996] found that the NO_x emissions are also correlated with the nitrogen concentrations in the burned biomass.

Measurements from the C-131A aircraft showed that the particle count median diameter (CMD) was strongly and positively correlated with the MCE. For young smoke from forest fires, the CMD varied from 0.10 μm for smoldering condition (MCE = 0.84) to 0.14 μm for flaming condition (MCE = 0.98). The particle volume median diameter (VMD) decreased slightly with increasing MCE. The VMD correlated well with the emission factors for particles and unsaturated hydrocarbons. The mean value of the VMD for young smoke was ~0.26 μm , and for older smoke in regional hazes, it ranged from 0.28 to 0.35 μm [Reid and Hobbs, this issue; Reid et al., this issue]. The effective emitted amount of black carbon (BC), derived from absorption measurements, overall comprised about

6-8% of the emitted particle mass and appeared to vary randomly from fire to fire. Details are given by Ferek et al. [this issue]. Discussion of the relationship between BC and smoke absorption is given in section 7.4 below.

7.3. Trace Gas Measurements

Atmospheric trace gases were measured on the INPE Bandeirante aircraft, a Brazilian research aircraft described in detail by Kirchhoff and Alvalá [1996]. The gases measured were (1) CO₂ by an IR nondispersive technique, (2) O₃ by a UV photometer, and (3) CH₄, N₂O and CO collected by grab samples [Alvalá and Kirchhoff, this issue]. A composite of the CO₂ results is shown in Figure 10. These results show a considerable dispersion of the data around an average CO₂ value of 8 ppmv above the background conditions of 352 ppmv. Despite the fact that direct biomass burning plumes were avoided in this survey, clearly biomass burning affected the regional values of CO₂. Note the repeatability of the different measurements. The enhanced CO₂ does not vary significantly with altitude under the strong inversion.

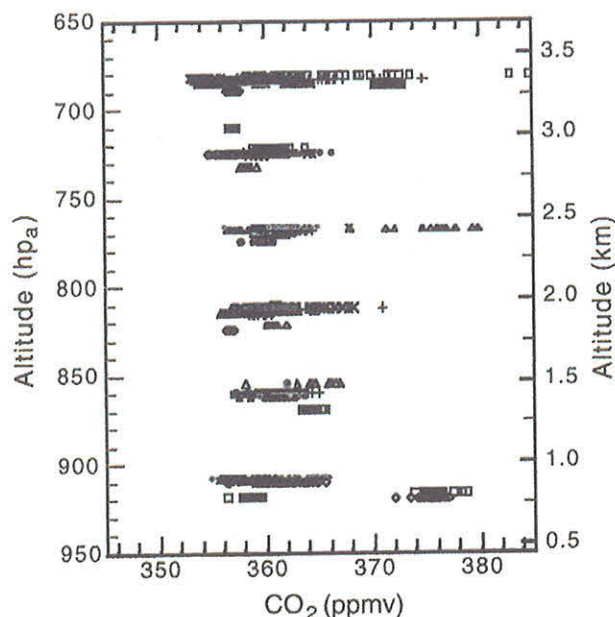


Figure 10. Vertical profiles of CO_2 . Altitudes are given in hPa on the left and in kilometers on the right. Different symbols are used for different flights/locations. The spread of CO_2 mixing ratios indicates the spatial variability of its concentration. The lowest values correspond to the background CO_2 concentrations at different altitudes.

Ozonesondes were launched from Cuiabá, and a total of 25 vertical profiles of ozone, relative humidity, and temperature were obtained during SCAR-B. The tropospheric ozone concentration appeared enriched during the period. Average values ranged from 40 to 90 ppbv; wet season values are typically around 15 ppbv. A correlation between tropospheric ozone concentration and aerosol optical thickness in Cuiabá (e.g., Figure 11) was observed with two patterns that reflect different air circulations [Longo *et al.*, 1998]. The increase in ozone concentration with aerosol optical thickness is an additional indication of the direct effect of biomass burning on ozone concentration.

7.4. Aerosol Properties and Evolution

One of the main objectives of SCAR-B was to obtain comprehensive measurements of the properties of the smoke aerosol. Remote sensing techniques from ground, aircraft, and satellites were used in conjunction with in situ measurements. Long-term monitoring of aerosol properties was conducted in Cuiabá and Alta Floresta, as indicated in Figure 3. Aerosol properties and loading were also measured in situ from the C-131A and Bandeirante aircraft, as well as from a ground-based site in Cuiabá. They were also monitored by remote sensing from the ground-based Sun/sky radiometer (AERONET) sites and by spaceborne remote sensors. The C-131A aircraft also provided comprehensive measurements of the optical and radiative properties of the smoke particles.

7.4.1. Aerosol retrieval from AERONET. The AERONET sites at Brasília, Cuiabá, and Alta Floresta have been instrumented since 1993 for the duration of the dry season, which typically begins around 1 June (Julian day 152) and lasts through 1 November (day 305). The data are used here to

describe the smoke evolution during SCAR-B and to compare the SCAR-B measurements with previous years. These measurements are not described elsewhere in this issue.

In Plate 6 the evolution of aerosol optical thickness at 670 nm, Ångstrom exponent, and total precipitable water vapor are shown for these three sites for the three years of observations. The Ångstrom exponent provides a crude measure of the aerosol size distribution. A zero value indicates mainly large particles (e.g., the presence of desert dust); a value of 2 indicates dominance by small particles (e.g., fine-mode smoke particles). Brasília, Cuiabá, and Alta Floresta represent three diverse measurement locations. Brasília, a high-elevation cerrado region, is characterized by a significant conversion of natural vegetation cover to agriculture. Cuiabá, a low-elevation cerrado region located in an agricultural area, is within 500 km of forest-to-agricultural conversion to the north and the Pantanal to the South (both noted for dry season burning). Alta Floresta is located in a region of very active forest conversion to agriculture. The AERONET measurements at this site show considerable variation from year to year in the smoke concentrations at midseason and at the onset and termination of the burning season [Holben *et al.*, 1996]. All sites exhibit an aerosol optical thickness in the preburning season of 0.10 to 0.15 (higher in 1993 due to the presence of stratospheric aerosol from the eruption of Mount Pinatubo in the Philippines). This stratospheric aerosol also lowered the Ångstrom exponent in 1993, mainly before and after the burning season.

For all three years shown in Plate 6, the interannual variability of the burning is within the envelope of meteorological variables that broadly control the burning season (e.g., the length of drying time and the onset of rains). The precipitable water and aerosol optical thickness records clearly show that the majority of emissions occur when the water vapor content of the atmosphere is increasing. This can potentially affect the aerosol optical properties during the burning season, although due to the small humidification factors of the smoke aerosol found in SCAR-B [Kotchenruther and Hobbs, this issue], we do not anticipate large effects of humidity on particle size. For 1995 the water vapor content of the atmosphere was lower for longer periods than in previous years, which likely accounts for a more intense late burning season and an associated higher aerosol optical thickness. The optical thickness was higher in the forest regions (Alta Floresta) than in the cerrado regions near Brasília. In Cuiabá, smoke was transported part of the

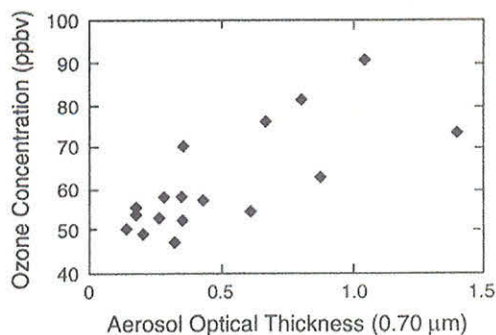


Figure 11. Average ozone concentration (from 1000 to 500 mbar) as function of the aerosol optical thickness, AOT (0.70 μm channel). A split pattern is observed due to a change in the air circulation pattern.

time from forest conversion areas to the north of the city, increasing the optical thickness.

The burning season in Brasília was relatively weak in 1995, starting thirty days later than in 1993 and terminating around 30 October (day 310). The Ångström exponent mirrors the optical thickness, with an increase from 0.8 to 1.4 from pre-burning to the burning season. Precipitable water increased from 1.3 cm (day 240) to 3 cm (day 260), in both 1993 and 1995. For the first part of the dry season, 1994 shows elevated precipitable water compared to the other two years.

Cuiabá shows twice as much smoke (optical thickness $\tau_a \sim 0.9$) as Brasília, due to transport from the north. Here also the duration of the burning season was shorter in 1995 than in 1993. The Ångström exponent in the burning season ranged from 1.6 to 1.8, dropping to 0.9 before and after the burning season. Precipitable water varied from 2 to 5 cm within 60 days of the most intense part of the burning season. In 1995 the increase in precipitable water began 30 days later than in 1993. All years reached a wet season value for the precipitable water of 4.6 cm. The effect of a more intense dry season in 1995, and the higher rate of deforestation, is marginally apparent in higher late season optical thickness values in 1995 as compared to 1993.

Alta Floresta has a significantly higher optical thickness than the cerrado sites, mainly in 1995, due to its proximity to the burning areas. The Ångström exponent is accordingly higher (~ 2). The onset and duration of the burning season is approximately the same for all years, and similar to Cuiabá and Brasília. The precipitable water vapor increased from 2.0 to 5.5 cm in each of the three years but more gradually in 1993 than for the other years.

7.4.2. Aerosol measurements aboard the C-131A. In situ measurements aboard the C-131A aircraft provided detailed information on the composition, size distributions, shapes, humidification factors, and optical properties of aerosols in the smoke from various types of biomass fires and in the aged smoke that dominated regional hazes in the study areas.

7.4.2.1. Composition: For smoke from individual fires, inorganic ions and black carbon (BC) together accounted for only ~ 15 – 20% of the mass of the smoke aerosol; the remaining mass is surmised to have been organics. The corresponding percentage for aerosols in regional hazes dominated by smoke was ~ 20 – 25% [Reid and Hobbs, this issue; Reid et al., this issue (a), (b)]. Biomass burning aerosol particles dominated the mass loading, but three other aerosol components were also observed: soil dust particles, natural biogenic particles, and NaCl particles. Individual particle analysis as well as multivariate statistical techniques showed similar type of particles [Artaño et al., this issue].

7.4.2.2. Growth: As the smoke particles aged, the CMD (count median diameter) increased from about 0.10 – $0.13 \mu\text{m}$ diameter in smoke plumes to 0.11 – $0.18 \mu\text{m}$ diameter in regional hazes. This growth appeared to occur equally between the first few hours following emission and the next few days. The Ångström exponent (for the wavelength range 550 – 700 nm) was 2.5 – 2.9 for smoke plumes and 1.8 – 2.3 for regional hazes (similar to the AERONET results), which supports a significant increase in particle size with aging. The growth with age of the aerosols appeared to depend equally on the availability of condensates relative to the particle concentrations and on coagulation. Condensation was mainly onto existing particles. Changes in the contributions of BC, potassium, and CO (all conservative traces) to the mass of aerosols indicate

that aerosol mass increased by ~ 20 – 50% during aging. About 75% of this growth was due to the condensation of organic species and $\sim 25\%$ from ammonium, sulfate, and nitrate.

The growth of the particles with age had a large effect on their optical properties. The hemispheric backscatter fraction of the particles decreased from ~ 0.18 to 0.12 , and the single-scattering albedo of the particles at 550 nm increased from ~ 0.79 for young smoke to ~ 0.85 in regional hazes [Reid and Hobbs, this issue; Reid et al., this issue (a)].

7.4.2.3. Shapes: Since Mie calculations apply strictly only to spherical particles, it is important to obtain information on the shapes of the aerosol particles produced by biomass burning. The paper by Martins et al. [this issue (b)] provides such information from electron microscopy of individual particles and from an instrument aboard the C-131A aircraft that provided continuous measurements of the effect of the asymmetry of the particles on the light-scattering coefficient. The results indicate that for optical calculations the smoke particles in regional hazes dominated by smoke in Brazil can be reasonably approximated as spherical.

7.4.2.4. Humidification factors (HFs): Kotchenruther and Hobbs [this issue] define the HF as the light-scattering coefficient for particles at 80% relative humidity (RH) divided by the light-scattering of dry particles (40% RH). For smoke in Brazil, 80% of the measured HF were in the range 1.05 – 1.35 (compared to a mean value of 2.30 ± 0.24 for urban/industrial aerosol on the U.S. East Coast [Kotchenruther et al., 1998]). These relatively low values for the HF have an important effect on direct radiative forcing by smoke [Hobbs et al., 1997; Kotchenruther and Hobbs, this issue]. Similar values were found in the TRACE-A experiment for smoke both from Brazil and from South Africa (Table 3) [Anderson et al., 1996]. But a mixture of smoke with industrial sulfate aerosol such as in South Africa [Maenhaut et al., 1996] may increase the hygroscopicity. In the recent Indonesian biomass fires, low refractive indexes were derived [von Hoyningen-Huene et al., 1998] indicating, indirectly, a higher hygroscopicity of the smoke. In this case, high-sulfate concentrations were measured due to underground coal that was burning together with the biomass, or due to industrial emissions (T. Nakajima, personal communication, 1998).

7.4.2.5. Measurements of black carbon (BC) and short-wave absorption by smoke aerosol: BC is the major component of the atmospheric aerosol that absorbs solar radiation, and biomass burning is an important source of BC, although other components of the aerosol can also absorb sunlight. Unfortunately, measurements of the concentrations of BC in the atmosphere and measurements of absorption are subject to many uncertainties. In SCAR-B, five different measurement techniques were used to measure BC aboard the C-131A. Two additional methods were applied using ground-based remote sensing. The results of these comparisons are described by Reid et al. [this issue]. In brief the correlation between the concentrations of BC derived from thermal techniques and optical absorption was poor. This could be due to uncertainties in some of the measurements, from the presence of absorbing "gray" organic material [Novakov et al., 1997], or from mixtures of BC with nonabsorbing materials. The various values derived for the light absorption coefficient (σ_a) agreed to within $\pm 20\%$. The in situ measurements show that the single-scattering albedo (ω_0) of smoke varied from 0.35 for plumes from vigorous flaming grass fires to 0.9 for smoldering slash. The uncertainty in the single-scattering albedo for the plume

Table 3. Smoke Aerosol Dynamic Model Based on *Remer et al.* [this issue] Describing Variability of Regional Smoke Ambient Aerosol Optical and Physical Parameters for Total Vertical Column As Function of Aerosol Loading (Given by Optical Thickness)

Parameter	Fine Particle Mode ($d < 2 \mu\text{m}$)	Coarse Particle Mode ($d > 2 \mu\text{m}$)	Remark/Reference
Particle volume ($\mu\text{m}^3 \mu\text{m}^{-2}$)	0.37 (± 0.017)	0.87 (\pm large)	<i>Remer et al.</i> [this issue]
r_m = volume mode radius (μm)	0.135 \pm 0.02 0.13–0.17 0.15 (SCAR-B in situ) 0.13–0.15 (TRACE-A, SAFARI)	10 (\pm large)	<i>Remer et al.</i> [this issue] <i>Reid et al.</i> [this issue] <i>Artaxo et al.</i> [this issue] <i>Anderson et al.</i> [1996] <i>Le Canut et al.</i> [1996]
σ = standard deviation (s.d.) of $\ln \sigma_{gv}$, where σ_{gv} = geometric s.d. of particle volume distribution	0.60 \pm 0.05 0.4–0.6	1.2 \pm 0.3	<i>Remer et al.</i> [this issue] SCAR-B in situ [<i>Ross and Hobbs</i> , this issue]
Parameter	Values of Wavelength λ		Remarks/Reference
Single-scattering albedo (ω_0)	$\lambda 470$ – 670 : 0.9 $\lambda 450$: 0.86, $\lambda 550$: 0.83, $\lambda 700$: 0.71 (± 0.04) $\lambda 440$: 0.80, $\lambda 670$: 0.87, $\lambda 870$: 0.88 (± 0.06) broadband (Indonesian 1997 fires) 0.90–0.91 0.90–0.92 model for South America and Africa 1.52–1.60 1.37–1.55—Indonesian 1997 fires		<i>Remer et al.</i> [this issue] <i>Kaufman et al.</i> [1992] <i>Hobbs et al.</i> [1997] <i>Reid et al.</i> [this issue (a)] <i>Dubovik et al.</i> [this issue] <i>von Hoyningen-Huene et al.</i> [1998] <i>Liou et al.</i> [1996] <i>Yamasoe et al.</i> [this issue] <i>von Hoyningen-Huene et al.</i> [1998]
Real part of refractive index	1.52–1.60 1.37–1.55—Indonesian 1997 fires		<i>Yamasoe et al.</i> [this issue] <i>von Hoyningen-Huene et al.</i> [1998]
Asymmetry parameter (g)	$\lambda 440$: 0.65, $\lambda 670$: 0.57, $\lambda 870$: 0.49, $\lambda 1020$: 0.45 (± 0.06)		<i>Remer et al.</i> [this issue]
Upscatter fraction (β)	$\lambda 440$: 0.24, $\lambda 670$: 0.27, $\lambda 870$: 0.31, $\lambda 1020$: 0.32 (± 0.02) $\lambda 450$: 0.24, $\lambda 550$: 0.25, $\lambda 700$: 0.28 (± 0.20)		<i>Remer et al.</i> [this issue] <i>Hobbs et al.</i> [1997], <i>Reid et al.</i> [this issue (a)]
CCN/ τ	130 \pm 40 (μm^{-2}) at supersaturation $S = 0.3\%$ 170 \pm 80 (μm^{-2}) at supersaturation $S = 1\%$		<i>Remer et al.</i> [this issue]
Mass scattering efficiency ($\text{m}^2 \text{g}^{-1}$)	$\lambda 440$: 6.6, $\lambda 670$: 3.2, $\lambda 870$: 2.1, $\lambda 1020$: 1.6 $\lambda 450$: 4.1–4.9, $\lambda 550$: 2.9–4.1, $\lambda 700$: 1.6–2.4, $\lambda 600$: 4.2		<i>Remer et al.</i> [this issue] <i>Hobbs et al.</i> [1997], <i>Reid et al.</i> [this issue (a)], <i>Anderson et al.</i> [1996]
Mass absorption efficiency ($\text{m}^2 \text{g}^{-1}$)	$\lambda 550$: 0.6–0.9		<i>Reid et al.</i> [this issue (a)]
Humidification factor at 80% relative humidity	$\lambda 450$ – $\lambda 700$: 1.05–1.35 1.37 \pm 0.14 in Brazil, TRACE-A 1.14 \pm 0.02 in South Africa, TRACE-A		<i>Kothenruther and Hobbs</i> [1998] <i>Anderson et al.</i> [1996]

The optical thickness τ is measured at 670 nm. The wavelengths are noted e.g., $\lambda 44$ means $\lambda = 440$ nm). Comparisons to SCAR-B and non-SCAR-B in situ measurements are given based on *Hobbs et al.* [1997] and *Reid et al.* [1998a, b]; these measurements are for dry aerosol. Therefore small differences due to humidity are expected.

data was ± 0.03 . For regional hazes, ω_0 varied between 0.8 and 0.9, with an uncertainty of ± 0.04 to ± 0.08 for the different optical methods. Ground-based remote sensing of ω_0 using irradiance data gave values of 0.8 to 0.92, decreasing with wavelength, similar to the in situ measurements [*Eck et al.*, this issue]. Values of ω_0 derived from sky radiances [*Dubovik et al.*, this issue] indicate that ω_0 may increase with wavelength from 0.80 at $\lambda = 440$ nm to 0.88 at 870 nm. Therefore although these methods agree on an average single-scattering albedo in the visible wavelengths ($\lambda = 440$ – 660 nm) of 0.86 ± 0.05 , they disagree at longer wavelengths. The differences could be due to measurement techniques and differences in the smoke composition.

Mass absorption efficiencies for black carbon (α_{abc}) in smoke particles were derived using the thermal evolution [*Cachier et al.*, 1989] and optical absorption techniques [*Reid et al.*, this issue]. Values of α_{abc} ranged from 5 to $58 \text{ m}^2 \text{g}^{-1}$ (see Figure 12). The variability of α_{abc} was modeled for internal (layered sphere and closely packed clusters) and external mix-

ing between BC and nonabsorbing materials. The calculated values of α_{abc} were between 5 and $25 \text{ m}^2 \text{g}^{-1}$ for the measured size distributions [*Martins et al.*, this issue (a)]. Measured values of α_{abc} higher than $25 \text{ m}^2 \text{g}^{-1}$ were attributed to possible artifacts in the measurements by the thermal technique due to a catalytic effect on BC particles caused by certain chemical compounds. *Novakov et al.* [1995] suggested that K may have a catalytic effect on BC, lowering its volatilization temperature. On the basis of this assumption, a threshold value of $\text{K/BC} = 0.78$ was established for which most of the α_{abc} measurements could be explained by the assumed models. Figure 12 shows the measured values of α_{abc} compared to the modeled values. On average, for samples with $\text{K/BC} < 0.78$, the value of α_{abc} is $12.1 \pm 4.0 \text{ m}^2 \text{g}^{-1}$ [*Martins et al.*, this issue (a)].

7.4.2.6. Closure studies: Data for aerosol column closure studies (i.e., consistency tests) were obtained by flying the C-131A in vertical profiles over AERONET Sun photometers in Brazil under conditions dominated by regional smoke. From the airborne in situ measurements of the aerosol properties,

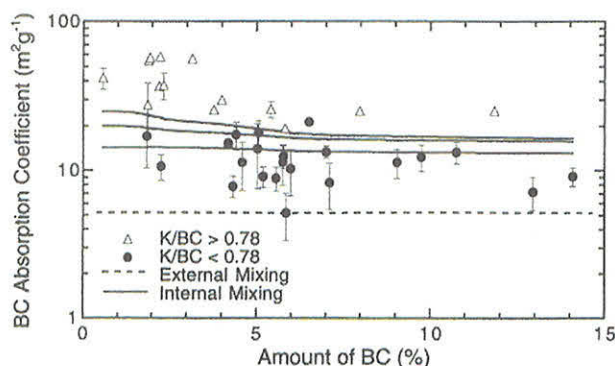


Figure 12. Measured and modeled black carbon (BC) absorption efficiency (α_{abc}) at $\lambda = 550$ nm versus the amount of BC in the sample determined from thermal analysis. Solid lines represent the modeled α_{abc} for three measured particle size distributions using a layered sphere model with a BC core and a nonabsorbing shell. The dashed line is the asymptotic limit for α_{abc} assuming external mixing and the measured particle size distributions. The solid circles correspond to samples with $K/BC < 0.78$, which are suspected to underestimate the BC concentration. For the data points for which the symbol size is equal to or greater than the error bar, the error bar has been omitted.

the optical depths of the smoke layers were computed and compared with those measured directly by the Sun photometers. Seven such data sets were obtained [Hobbs, 1996]. Optical depths derived from these two independent methods agreed to within 30% (J. L. Ross et al., unpublished data, 1998, (hereinafter referred to as R98)).

R98 also describe internal closure calculations using SCAR-B data. Particle size distributions measured from the C-131A aircraft were used as inputs to theoretical calculations of particle scattering, absorption, and mass concentrations. The calculated scattering and absorption were compared to direct measurements of these quantities at several discrete wavelengths. The calculated values were generally within $\sim 25\%$ of the measurements, with the former generally being slightly lower. The computations were then applied over the complete wavelength range of the solar spectrum. Parameterizations of the total scattering, scattering asymmetry, and absorption were derived. These are appropriate for use in radiative forcing calculations of regional smoke in Brazil as well as for remote sensing applications.

Using the parameterizations of the optical properties, radiative transfer theory was used to estimate the instantaneous and daily average direct radiative forcing of the regional hazes dominated by smoke in Brazil and their sensitivities to solar zenith angle, aerosol optical thickness, and surface type [Ross and Hobbs, this issue]. At point locations the daily average direct radiative forcing per unit optical depth (at $\lambda = 550$ nm) varied from $-26 \pm 6 \text{ W m}^{-2}$ (cooling) over a dark surface to $+25 \pm 12 \text{ W m}^{-2}$ (warming) over a reflective surface.

Using SCAR-B data, Ross and Hobbs [this issue] have studied the effects of solar zenith angle, smoke optical thickness, and cloud properties on atmospheric heating rates. Daily heating rates of 3.5 K per day were calculated for a haze layer 3000 m thick with an optical thickness of 1 at a wavelength of 600 nm. Reductions due to regional hazes in Brazil of 30, 43, and 58% per day per unit optical depth were calculated for the

total shortwave flux, photosynthetically active radiation, and total UV radiation, respectively. Similar reductions of irradiance were measured by Eck et al. [this issue].

7.5. Aerosol Radiative Model for Direct Radiative Forcing and Remote Sensing

7.5.1. Radiative model. The AERONET Sun photometer measurements from 1993 to 1995 were used to derive a self-consistent aerosol model that can be used as a basis for remote sensing of aerosol [Kaufman et al., 1990, 1997] and for estimating the aerosol radiative forcing of climate [Hobbs et al., 1997]. Remote sensing is limited in its capability to retrieve aerosol information. For example, inversion of spectral radiances from MODIS, to be launched on the NASA Earth Observing System in 1999, will include the aerosol optical thickness or mass concentration derived from radiances over dark land [Kaufman et al., 1997]. Over the oceans, a two-parameter aerosol size distribution will also be retrieved [Tauré et al., 1996, 1997]. Other aerosol optical and physical parameters have to be assumed, based on dynamic aerosol models [Remer and Kaufman, 1998] which describe the variability of the aerosol size distribution with aerosol loading. To be used for remote sensing, these models have to describe the whole vertical column and the properties of the ambient aerosol particles, which are derived from climatology of the AERONET sky data and compared with in situ properties [Remer et al., 1997; Ross et al., this issue]. Aerosol models have been developed for urban/industrial aerosol and, in this issue, for smoke aerosol [Remer et al., this issue]. Table 3 summarizes the results and compares them with in situ measurements. While there is good agreement between the model based on the AERONET data and the in situ measurements of the particle size distribution, the single-scattering albedo (ω_0) of 0.9 at 660 nm used in the model is larger than the values measured in situ. Analysis of the variation of sky data with aerosol optical thickness at a scattering angle of 120° shows that a lower value of ω_0 (e.g., $\omega_0 = 0.85$) does not make a good fit [Remer et al., this issue].

Two new techniques were applied to AERONET sky data to derive the aerosol real refractive index from the diffuse sky data at large scattering angles (80° – 120°) [Yamasoe et al., this issue] and to derive the aerosol single-scattering albedo by comparison of the sky-scattered solar radiation with the extinction of solar radiation from the direct solar beam [Dubovik et al., this issue]. The results of these studies are also included in Table 3.

7.5.2. Optical properties and direct radiative forcing. To calculate direct aerosol radiative forcing, values of the following optical parameters are needed: mass light-scattering efficiency, the fraction of incident solar radiation backscattered by the aerosols, the single-scattering albedo, and the humidification factor. The University of Washington team used its C-131A aircraft to obtain extensive measurements of all four of these parameters for smoke in SCAR-B [Hobbs et al., 1997; Reid et al., this issue]. Hobbs et al. [1997] showed that if these measurements are applied to the simple model used by Penner et al. [1992], the derived magnitude of the globally averaged direct radiative forcing due to smoke from biomass burning worldwide is only -0.1 to -0.3 W m^{-2} , compared to -0.8 W m^{-2} estimated by Penner et al. [1992].

7.5.3. Application to remote sensing. Aircraft in situ and remote sensing measurements are not sufficiently frequent to document the spatial and temporal variability of aerosol loading, properties, and interactions with water vapor, clouds, and

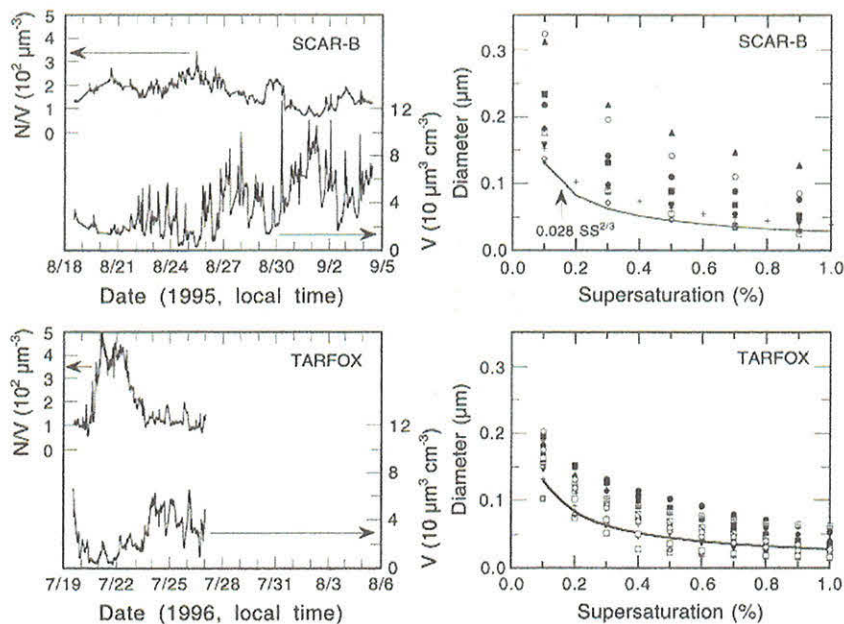


Figure 13. Results from ground-based measurements of the aerosol size distribution and CCN spectrum (after Ji et al., unpublished data, 1998). Time sequence of the ratio of the number of potential CCN (N) to the smoke aerosol volume (V) measured in (top left) Cuiabá, Brazil, and (bottom left) in Wallops, Virginia, during the TARFOX field experiment. N is defined as the number of particles with diameter $d \geq 0.1 \mu\text{m}$. V is the volume of part of the accumulation mode being measured (for $d \geq 0.6 \mu\text{m}$). The large change of the ratio N/V during TARFOX is due to a passage of a cold front that cleaned the air (low volumes) but generated a relatively high number of small particles. The critical diameter of particles activated in a given supersaturation (SS), d_c , is shown in (top right) for Brazil and (bottom right) for TARFOX. The Twomey expression ($d_c = 0.0028SS^{-2/3}$) is shown for reference [Twomey, 1977].

radiation. Long-term monitoring of the variability of these quantities requires ground-based and spaceborne monitoring. However, because of the inherent complexity and assumptions involved in deriving aerosol properties from spaceborne measurements, precise evaluation of the techniques is required [e.g., Vermote et al., 1997]. Chu et al. [this issue] applied the MODIS algorithm to derive the aerosol optical thickness from the MAS data recorded in SCAR-B over the AERONET Sun photometers and compared the results with the AERONET measurements. Using 17 such coincidental measurements, they concluded that the performance of the algorithm is better than anticipated, resulting in an error in the retrieved aerosol optical thickness ($\Delta\tau$) of $\pm 0.05 \pm 0.15\tau$. This result was obtained in spite of inherent errors in the ground-based measurements of aerosol optical thicknesses of ± 0.01 to ± 0.02 and an uncertainty in the MAS calibration that is larger than the anticipated uncertainty in the meticulously characterized and calibrated MODIS instrument [Salomonson et al., 1989]. Application of a similar remote sensing technique to AVHRR data over Brazil in 1993 resulted in a similarly good agreement [Vermote et al., 1997].

7.6. Aerosol Size Distribution, CCN, and Indirect Forcing

The low variability in the size distribution of aged smoke (i.e., smoke more than about 3 days old) is of significant importance for the estimation of its effect on cloud microstructures, reflectance, and indirect radiative forcing, and for remote sensing of this forcing [Kaufman and Fraser, 1997]. Aerosol models used to estimate aerosol forcing are based on

information on source loading, evolution, and sinks of the aerosol mass (e.g., for sulfates see Kiehl and Briegleb [1993]). To estimate aerosol indirect forcing, the relationship between the number of CCN and their volume needs to be established. For sulfates, very nonlinear relationships have been used [Boucher and Lohmann, 1995; Jones et al., 1994] due to the complex competition between gas phase and cloud phase oxidation of SO_2 into sulfate particles [Langner et al., 1992; Kaufman and Tanré, 1994]. For smoke we anticipate the relationship between aerosol volume and CCN concentration to be more linear. In Cuiabá, Q. Ji et al. (unpublished data, 1998) measured the aerosol size distribution for $D < 0.6 \mu\text{m}$ and the corresponding CCN spectrum. Similar instrumentation was used in the Tropospheric Aerosol Radiative Forcing Observational (TARFOX) experiment in Wallops, Virginia, in 1996 for urban/industrial aerosol. In Figures 13a and 13b the ratio of the number of potential CCN, N (particles with diameter $> 0.1 \mu\text{m}$) to aerosol volume V (for diameter $< 0.6 \mu\text{m}$) is plotted as a function of time for Cuiabá and Wallops, respectively. The variability of N/V is negatively correlated with V . The variability of N/V for the smoke aerosol is much smaller than that of urban/industrial aerosol. The main variation in N/V for the urban/industrial aerosol is between the aerosol properties before and after a passage of a front. The front cleans the atmosphere reducing the aerosol volume while generating the conditions for the formation of new aerosol particles. In Figures 13c and 13d the critical activation diameter d_c (i.e., the diameter, in μm , of the particle activated by a given supersaturation) is compared for Cuiabá and Wallops. The activation

diameter is calculated as the threshold diameter above which the number of particles is equal to the CCN concentration for the given supersaturation. The spectrum is compared with the empirical formula given by Twomey [1977]:

$$d_c = 0.028 S^{-2.3} \quad (2)$$

where S is the supersaturation given in percent. While for smoke in Cuiabá the measured values of d_c are above the "Twomey" line, the results for TARFOX are mixed. This is in agreement with the lower hygroscopicity of smoke compared to that of urban/industrial aerosol.

The effects of smoke on cloud microphysics and reflectance have not been studied extensively yet using the SCAR-B data, but a previous study using AVHRR images over the same region in 1987 [Kaufman and Nakajima, 1993; Kaufman and Fraser, 1997] showed that aerosol effects on the cloud microphysics and reflectance is, on average, similar to the predictions of the Twomey model. This is in agreement with the small variability of the N/V ratio for smoke.

7.7. Surface Albedo and Surface Cover

Surface albedo is an important parameter in studying the interaction of solar radiation with the Earth. Anthropogenic changes in surface cover and its albedo affect the fraction of solar radiation reflected back to space and therefore constitute a radiative forcing of climate. The aerosol direct effect depends on the spectral relationship between surface bidirectional reflectance and the aerosol optical properties. The spectral bidirectional reflectance measurements by the CAR radiometer on the University of Washington C-131A aircraft contain very fine angular resolution (1° in zenith and $<2^\circ$ in azimuthal angles), and it is straightforward to compute the integrated hemispherical albedo for various types of surfaces (e.g., cerrado, dense forest, etc.). Comparing the computed albedo to the measured nadir reflectance (often used as a surrogate to the albedo in climate models), the nadir reflectance values underestimate the albedo generally by about 20%, with few extremes of up to 60%. Thus the analysis of CAR measurements during SCAR-B show that the estimation of spectral albedo from nadir reflectance produces large errors [Tsay et al., this issue]. Remote sensing of the surface cover is affected by the presence of smoke. Several methods were suggested to overcome this problem. Miura et al. [this issue] uses AVIRIS data collected simultaneously with aerosol optical thickness measured from the ground during SCAR-B to compare several methods for remote sensing of the surface cover through the smoke.

8. Conclusions

The detailed measurements of smoke aerosol composition, size, and optical properties, reported in this issue, and summarized in Tables 2 and 3, have been used for preliminary estimates of direct and indirect radiative forcing by smoke [Hobbs et al., 1997; Kaufman and Fraser, 1997]. The same parameters were measured or derived using several independent techniques. For example, several techniques were used to derive the aerosol absorption and black carbon concentration from laboratory analysis of filters, aircraft continuous in situ monitoring, and remote sensing from ground-based radiometers. More rigorous estimates of these forcings require documentation of the high spatial and temporal variability of smoke and its transport and dispersion over the globe. Such docu-

mentation is one of the objectives of the new satellite systems (e.g., POLDER on ADEOS, and MODIS and MISR on the NASA Earth Observing System to be launched in 1999). More detailed studies are needed of the effects of smoke on the properties of clouds.

Results from SCAR-B, and previous measurements, have been used to develop the capability of remote sensing of aerosol properties from the ground using Sun photometers. Detailed closure studies in SCAR-B have demonstrated general agreement between in situ and remote sensing measurements of smoke. The SCAR-B data have also been used to check the remote sensing of aerosol properties from satellites. Some understanding of the use of satellites to derive not only aerosol optical thickness but also aerosol mass loading and CCN concentrations has been initiated. New techniques for the use of satellites to expand remote sensing of fires to include measurements of the fire radiative energy for better quantifications of emissions were developed.

SCAR-B has continued previous efforts to estimate the emissions of trace gases and aerosol from fires, to understand the role of black carbon, and the effects of biomass burning on tropospheric ozone production.

Acknowledgments. Special thanks are due to the Brazilian government and Air Force, who went out of their way to make SCAR-B both successful and a pleasant experience. Special recognition goes to J. T. Suttles, previously at NASA Headquarters, for making SCAR-B happen. We thank L. G. M. Filho, head of Agencia Espacial Brasileira (Brazilian Space Agency), G. Shelton (NASA Ames Research Center), D. S. McDougal (NASA Langley Research Center), and A. Moita (INPE/Natal) for organizing the infrastructure of the experiment. The Brazilian Air Force observers: Capt. D. P. Damiao and Capt. N. S. de O. Andrade were superb guides through Brazil. We would like to thank J. Raposo from IBAMA for the logistical support for the meteorological center at IBAMA. The research reported in this paper was supported by the MODIS Science Team, the EOS Project Science Office, NASA's Radiation Science Program, the National Science Foundation, Environmental Protection Agency, the National Oceanic and Atmospheric Administration, and INPE.

References

- Alvalá, P. C., and V. W. J. H. Kirchoff. Observations of atmospheric methane and carbon monoxide in Brazil: SCAR-B mission. *J. Geophys. Res.*, this issue.
- Alvalá, R. C. S., E. J. P. da Rocha, R. Gielow, J. R. Feitosa, J. B. M. Riberio, and G. Fisch. The atmospheric boundary layer experiment in Alta Floresta during the dry season 1995, in *SCAR-B Proceedings*, edited by V. W. J. H. Kirchoff, pp. 5–8, Transtec, São Paulo, Brazil, 1996.
- Anderson, B. E., W. B. Grant, G. L. Gregory, E. V. Browell, J. E. Collins Jr., G. W. Sachse, D. R. Bagwell, C. H. Hudgins, D. R. Blake, and N. J. Blake. Aerosol from biomass burning over the tropical South Atlantic region: Distribution and impacts. *J. Geophys. Res.*, 101, 24,117–24,137, 1996.
- Andreae, M. O., et al., Biomass burning emissions and associated haze layers over Amazonia. *J. Geophys. Res.*, 93, 1509–1527, 1988.
- Andreae, M. O., B. E. Anderson, D. R. Blake, J. D. Bradshaw, J. E. Collis, G. L. Gregory, G. W. Sachse, and M. C. Shipham. Influence of plumes from biomass burning on atmospheric chemistry over the equatorial and tropical South Atlantic during CITE 3. *J. Geophys. Res.*, 99, 12,793–12,808, 1994.
- Artaxo, P., H. Storms, F. Bruynseels, R. Van Grieken, and W. Maenhaut. Composition and sources of aerosols from the Amazon Basin. *J. Geophys. Res.*, 93, 1605–1615, 1988.
- Artaxo, P., W. Maenhaut, H. Storms, and R. Van Grieken. Aerosol characteristics and sources for the Amazon basin during the wet season. *J. Geophys. Res.*, 95, 16,971–16,985, 1990.
- Artaxo, P., F. Gerab, M. A. Yamasoe, and J. V. Martins. Fine mode aerosol composition in three long-term atmospheric monitoring

- sampling stations in the Amazon Basin, *J. Geophys. Res.*, **99**, 22,857–22,868, 1994.
- Artaxo, P., F. Gerab, M. A. Yamasoe, and J. V. Martins, *Global Biomass Burning*, edited by J. Levin, 519 pp., MIT Press, Cambridge, Mass., 1996.
- Artaxo, P., F. Gerab, and M. A. Yamasoe, Long term atmospheric aerosol characterization in the Amazon Basin, in *Environmental Geochemistry in the Tropics*, edited by J. Wasserman, E. V. Silva Filho, and R. Villas Boas, pp. 227–250, Springer-Verlag, New York, 1997.
- Artaxo, P., E. T. Fernandes, J. V. Martins, M. A. Yamasoe, P. V. Hobbs, W. Maenhaut, K. M. Longo, and A. Castanho, Large-scale aerosol source apportionment in Amazonia, *J. Geophys. Res.*, this issue.
- Babbitt, R. E., D. E. Ward, R. A. Susott, P. Artaxo, and J. B. Kaufman, A comparison of concurrent airborne and ground based emissions generated from biomass burning in the Amazon Basin, in *SCAR-B Proceedings*, edited by V. W. J. H. Kirchhoff, pp. 23–27, Transtec, São Paulo, Brazil, 1996.
- Browell, E. V., et al., Ozone and aerosol distributions and air mass characteristics over the South Atlantic basin during the burning season, *J. Geophys. Res.*, **101**, 24,043–24,068, 1996.
- Boucher, O., and U. Lohmann, The sulfate-CCN-cloud albedo effect, a sensitivity study with two general circulation models, *Tellus, Ser-B*, **47**, 281–300, 1995.
- Cachier, H., M. P. Brémond, and P. Baut-Ménard, Determination of atmospheric soot carbon with a simple thermal method, *Tellus, Ser B*, **41**, 379–390, 1989.
- Castro, E. A., et al., Nutrient losses during biomass burning in Brazil, *J. Geophys. Res.*, in press, 1998.
- Chu, D. A., Y. J. Kaufman, L. A. Remer, and B. N. Holben, Remote sensing of smoke from MODIS airborne simulator during SCAR-B experiment, *J. Geophys. Res.*, this issue.
- Crutzen, P. J., and M. O. Andreae, Biomass burning in the tropics: Impact on atmospheric chemistry and biogeochemical cycles, *Science*, **250**, 1669–1678, 1990.
- Crutzen, P. J., and J. W. Birks, The atmosphere after a nuclear war: Twilight at noon, *Ambio*, **11**, 114–125, 1982.
- Crutzen, P. J., L. E. Heidt, J. P. Krasnee, W. H. Pollock, and W. Seiler, Biomass burning as a source of atmospheric gases: CO, H₂, N₂O, NO, CH₃Cl, and COS, *Nature*, **282**, 253–256, 1979.
- Crutzen, P. J., A. C. Delany, J. Greenberg, P. Haagensohn, L. Heidt, R. Lueb, W. Pollock, W. Seiler, A. Warburg, and P. Zimmerman, Tropospheric chemical composition measurements in Brazil during the dry season, *J. Atmos. Chem.*, **2**, 233–256, 1985.
- Dubovik, O., B. N. Holben, Y. J. Kaufman, M. Yamasoe, A. Smirnov, D. Tanré, and I. Slutsker, Single-scattering albedo of smoke retrieved from sky radiance and solar transmittance from ground, *J. Geophys. Res.*, this issue.
- Eck, T. F., B. N. Holben, I. Slutsker, and A. Setzer, Measurements of irradiance attenuation and estimation of aerosol single-scattering albedo for biomass burning aerosols in Amazonia, *J. Geophys. Res.*, this issue.
- Ferek, R. J., J. S. Reid, P. V. Hobbs, D. R. Blake, and C. Liousse, Emission factors of hydrocarbons, halocarbons, trace gases, and particles from biomass burning in Brazil, *J. Geophys. Res.*, this issue.
- Fishman, J., J. M. Hoell Jr., R. D. Bendura, R. J. McNeal, and V. W. J. H. Kirchhoff, NASA GTE TRACE A experiment (September–October 1992): Overview, *J. Geophys. Res.*, **101**, 23,865–23,880, 1996.
- Freitas, S. R., K. M. Longo, M. A. F. Dias, and P. Artaxo, Numerical modeling of air mass trajectories from the biomass burning areas of the Amazon Basin, *Ann. Acad. Bras. Cienc.*, **68**, 193–206, 1996.
- Gash, J. H. C., C. A. Nobre, J. M. Roberts, and R. L. Victoria (Eds.), *Amazon Deforestation and Climate*, John Wiley, New York, 1996.
- Gleason, J. F., N. C. Hsu, and O. Torres, Biomass burning smoke measured using backscattered ultraviolet radiation: SCAR-B and Brazilian smoke interannual variability, *J. Geophys. Res.*, this issue.
- Grace, J., J. Lloyd, J. McIntyre, A. C. Miranda, P. Meir, H. Miranda, C. Nobre, J. Moncrieff, J. Massheder, and Y. Malhi, Carbon dioxide uptake by an undisturbed tropical rain forest in SW Amazonia, 1992 to 1993, *Science*, **270**, 778–780, 1995.
- Gregory, G. L., H. E. Fuelberg, S. P. Longmore, B. E. Anderson, J. E. Collins, and D. R. Blake, Chemical characteristics of tropospheric air over the tropical South Atlantic Ocean: Relationship to trajectory history, *J. Geophys. Res.*, **101**, 23,957–23,972, 1996.
- Guild, L. S., J. B. Kauffman, L. J. Boeder, D. L. Cummings, E. A. Castro, R. E. Babbitt, and D. E. Ward, Dynamics associated with total aboveground biomass, carbon, nutrient pools, and biomass burning of primary forest and pastures in Rondônia, Brazil, *J. Geophys. Res.*, this issue.
- Hao, W. M., and M.-H. Liu, Spatial and temporal distribution of tropical biomass burning, *Global Biol. Cycles*, **8**, 495–503, 1994.
- Harriss, R. C., et al., The Amazon Boundary Layer Experiment (ABLE-2A): Dry season 1985, *J. Geophys. Res.*, **93**, 1351–1360, 1988.
- Harriss, R. C., et al., The Amazon boundary layer experiment: Wet season 1987, *J. Geophys. Res.*, **95**, 16,721–16,736, 1990.
- Herman, M., J. L. Deuzé, C. Devaux, P. Goloub, F. M. Bréon, and D. Tanré, Remote sensing of aerosol over land surfaces including polarization measurements and application to POLDER measurements, *J. Geophys. Res.*, **102**, 17,039–17,050, 1997a.
- Herman, J. R., P. K. Bhartia, O. Torres, C. Hsu, C. Sefor, and E. Celarier, Global distribution of UV absorbing aerosol from Nimbus 7 TOMS data, *J. Geophys. Res.*, **102**, 16,911–16,922, 1987b.
- Hobbs, P. V., Summary of types of data collected on the University of Washington's Convair C131-A aircraft in the Smoke, Clouds, and Radiation-Brazil (SCAR-B) field study from 17 August–20 September 1995, in *Report from the Cloud and Aerosol Research Group*, Dep. of Atmos. Sci., Univ. of Wash., Seattle, 1996. (Available on the web at <http://cargsun2.atmos.washington.edu>.)
- Hobbs, P. V., and L. F. Radke, Cloud condensation nuclei from a simulated forest fire, *Science*, **163**, 279–280, 1969.
- Hobbs, P. V., J. S. Reid, J. A. Herring, J. D. Nance, R. E. Weiss, J. L. Ross, D. A. Hegg, R. D. Ottmar, and C. Liousse, Particle and trace gas measurements in the smoke from prescribed burns of forest products in the Pacific Northwest, in *Biomass Burning and Global Change*, edited by J. S. Levine, pp. 697–715, MIT Press, Cambridge, Mass., 1996.
- Hobbs, P. V., J. S. Reid, R. A. Kotchenruther, R. J. Ferek, and R. Weiss, Direct radiative forcing by smoke from biomass burning, *Science*, **275**, 1776–1778, 1997.
- Holben, B. N., Y. J. Kaufman, D. Tanré, and D. E. Ward, Optical properties of aerosol from biomass burning in the tropics: BASE-A, in *Global Biomass Burning*, pp. 403–411, MIT Press, Cambridge, Mass., 1991.
- Holben, B. N., A. Setzer, T. F. Eck, A. Pereira, and I. Slutsker, Effect of dry season biomass burning on Amazon Basin aerosol concentrations and optical properties, 1992–1994, *J. Geophys. Res.*, **101**, 19,455–19,464, 1996.
- Holben, B. N., et al., Automatic sun and sky scanning radiometer systems for network and aerosol monitoring, *Remote Sens. Environ.*, in press, 1998.
- Hsu, N. C., J. R. Herman, P. K. Bhartia, C. J. Sefor, O. Torres, A. M. Thompson, J. F. Gleason, T. F. Eck, and B. N. Holben, Detection of biomass burning smoke from TOMS measurements, *Geophys. Res. Lett.*, **23**, 745–748, 1996.
- Husar, R. B., J. Prospero, and L. L. Stowe, and L. L. Stowe, Characterization of tropospheric aerosols over the oceans with the NOAA-AVHRR aerosol optical thickness operational product, *J. Geophys. Res.*, **102**, 16,889–16,909, 1997.
- Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC), *Radiative Forcing of Climate Change*, Cambridge Univ. Press, New York, 1995.
- Jones, A., D. L. Roberts, and A. Slingo, A climate model study of indirect radiative forcing by anthropogenic sulphate aerosols, *Nature*, **370**, 450–453, 1994.
- Kahn, R., R. West, D. McDonald, B. Rheingans, and M. I. Mishchenko, Sensitivity of multiangle remote sensing observations to aerosol sphericity, *J. Geophys. Res.*, **102**, 16,861–16,870, 1997.
- Kaufman, Y. J., and R. S. Fraser, Confirmation of the smoke particles effect on clouds and climate, *Science*, **277**, 1636–1639, 1997.
- Kaufman, Y. J., and B. N. Holben, Hemispheric backscattering by biomass burning and sulfate particles derived from sky measurements, *J. Geophys. Res.*, **101**, 19,433–19,445, 1996.
- Kaufman, Y. J., and T. Nakajima, Effect of Amazon smoke on cloud microphysics and albedo, *J. Appl. Meteorol.*, **32**, 729–744, 1993.
- Kaufman, Y. J., and D. Tanré, Variations in cloud supersaturation and the aerosol indirect effect on climate, *Nature*, **369**, 45–48, 1994.
- Kaufman, Y. J., C. J. Tucker, and I. Fung, Remote sensing of biomass burning in the tropics, *J. Geophys. Res.*, **95**, 9927–9939, 1990.
- Kaufman, Y. J., A. Setzer, D. Ward, D. Tanré, B. N. Holben, P. Menzel, M. C. Pereira, and R. Rasmussen, Biomass burning air-

- borne and spaceborne experiment in the Amazonas (BASE-A), *J. Geophys. Res.*, **97**, 14,581–14,599, 1992.
- Kaufman, Y. J., B. N. Holben, D. Tanré, and D. Ward, Remote sensing of biomass burning in the Amazon, *Rem. Sens. Rev.*, **10**, 51–90, 1994.
- Kaufman, Y. J., D. Tanré, L. Remer, E. Vermote, A. Chu, and B. N. Holben, Remote sensing of tropospheric aerosol from EOS-MODIS over the land using dark targets and dynamic aerosol models, *J. Geophys. Res.*, **102**, 17,051–17,067, 1997.
- Kaufman, Y. J., C. Justice, L. Flynn, J. D. Kendall, E. M. Prins, L. Giglio, D. E. Ward, W. P. Menzel, and A. W. Setzer, Potential global fires monitoring from EOS-MODIS, *J. Geophys. Res.*, in press, 1998.
- Kaufman, Y. J., R. Kleidman, M. D. King, and D. E. Ward, SCAR-B fires in the tropics: Properties and remote sensing from EOS-MODIS, *J. Geophys. Res.*, this issue.
- Kiehl, J. T., and B. P. Briegleb, The relative roles of sulfate aerosols and greenhouse gases in climate forcing, *Science*, **260**, 311–314, 1993.
- King, M. D., M. G. Strange, P. Leone, and L. R. Blaine, Multiwavelength scanning radiometer for airborne measurements of scattered radiation within clouds, *J. Atmos. Oceanic Technol.*, **3**, 513–522, 1986.
- King, M. D., et al., Airborne scanning spectrometer for remote sensing of cloud, aerosol, water vapor and surface properties, *J. Atmos. Oceanic Technol.*, **13**, 777–794, 1996.
- King, M. D., S. C. Tsay, S. A. Ackerman, and N. F. Larsen, Discriminating heavy aerosol, clouds, and fires during SCAR-B: Application of airborne multispectral MAS data, *J. Geophys. Res.*, this issue.
- Kirchhoff, V. W. J. H., Are the northern hemispheric ozone densities larger?, *Eos Trans. AGU*, **65**, 440, 1984.
- Kirchhoff, V. W. J. H., Surface ozone measurements in Amazonia, *J. Geophys. Res.*, **93**, 1469–1476, 1988.
- Kirchhoff, V. W. J. H., Increasing concentrations of CO and O₃-rising deforestation rates and increasing tropospheric carbon monoxide and ozone in Amazonia, *Environ. Sci. Pollut. Res.*, **3**, 210–212, 1996.
- Kirchhoff, V. W. J. H., and P. C. Alvalá, Overview of an aircraft expedition into the Brazilian cerrado for the observation of atmospheric trace gases, *J. Geophys. Res.*, **101**, 23,973–23,981, 1996.
- Kotchenruther, R. A., and P. V. Hobbs, Humidification factors of aerosols from biomass burning in Brazil, *J. Geophys. Res.*, this issue.
- Kotchenruther, R. A., P. V. Hobbs, and D. A. Hegg, Humidification factors for atmospheric aerosols off the mid-Atlantic coast of the United States, *J. Geophys. Res.*, in press, 1998.
- Kuhlbusch, T. A. J., M. O. Andreae, H. Cachier, J. G. Goldammer, J. P. Lacaux, R. Shea, and P. J. Crutzen, Black carbon formation by savanna fires: Measurements and implications for the global carbon cycle, *J. Geophys. Res.*, **101**, 23,651–23,666, 1996.
- Lacaux, J. P., J. M. Brustet, R. Delmas, J. C. Menaut, L. Abbadie, B. Bonsang, H. Cachier, J. Baudet, M. O. Andreae, and G. Helas, Biomass burning in the tropical savannas of Ivory Coast: An overview of the field experiment Fire of Savannas (FOS/DECAFE 91), *J. Atmos. Chem.*, **22**, 195–216, 1995.
- Lacaux, J. P., R. Delmas, and C. Jambert, NO_x emissions from African savanna fires, *J. Geophys. Res.*, **101**, 23,585–23,595, 1996.
- Langner, J., H. Rodhe, P. J. Crutzen, and P. Zimmermann, Anthropogenic influence on the distribution of tropospheric sulphate aerosol, *Nature*, **359**, 712–715, 1992.
- Le Canut, P. M., M. O. Andreae, G. W. Harris, F. G. Wienhold, and T. Zeker, Aerosol optical properties over Southern Africa during SAFARI-92, in *Biomass Burning and Global Change*, edited by J. S. Levine, MIT Press, Cambridge, Mass., 1996.
- Lioussé, C., J. E. Penner, C. Chuang, J. J. Walton, H. Eddleman, and H. Cachier, A global 3-D model of carbonaceous aerosol, *J. Geophys. Res.*, **101**, 19,411–19,432, 1996.
- Lindesay, J. A., M. O. Andreae, J. G. Goldammer, G. Hariss, H. J. Annegarn, M. Garstang, R. J. Scholes, and B. W. van Wilgen, IGBP global atmospheric chemistry SAFARI-92 field experiment: Background and overview, *J. Geophys. Res.*, **101**, 23,521–23,530, 1996.
- Lobart, J. M., M. Scharffe, W. M. Hao, T. A. Kuhlbusch, R. Seuwen, P. Warneck, and P. J. Crutzen, Experimental evaluation of biomass burning emissions: Nitrogen and carbon containing compounds, in *Biomass Burning and Global Change*, edited by J. S. Levine, pp. 289–304, MIT Press, Cambridge, Mass., 1991.
- Logan, J. A., and V. W. J. H. Kirchhoff, Seasonal variation in tropospheric ozone at Natal Brazil, *J. Geophys. Res.*, **91**, 7875–7882, 1986.
- Longo, K. M., A. M. Thompson, V. Kirchhoff, and P. Artaxo, Correlation between smoke and tropospheric ozone concentrations in Cuiabá during SCAR-B, *J. Geophys. Res.*, in press, 1998.
- Maenhaut, W., I. Salam, J. Cafmeyer, H. J. Annegarn, and M. O. Andreae, Regional atmospheric aerosol composition and sources in the eastern Transvaal, South Africa, and the impact of biomass burning, *J. Geophys. Res.*, **101**, 23,651–23,666, 1996.
- Martins, J. V., P. Artaxo, C. Lioussé, J. S. Reid, P. V. Hobbs, and Y. J. Kaufman, Effects of black carbon content, particle size, and mixing on light absorption by aerosol particles from biomass burning in Brazil, *J. Geophys. Res.*, this issue (a).
- Martins, J. V., P. V. Hobbs, R. E. Weiss, and P. Artaxo, Shapes of smoke particles from biomass burning in Brazil, *J. Geophys. Res.*, this issue (b).
- Martonchik, J. V.I. and D. J. Diner, Retrieval of aerosol and land surface optical properties from multi-angle satellite imagery, *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, **30**, 223–230, 1992.
- Mello-Ivo, W., S. Ferreira, Y. Biot, and S. Ross, Nutrients in soil solution following selective logging of a humid tropical 'terra firme' forest north of Manaus, Brazil, *Environ. Geochem. Health*, **18**, 69–75, 1996.
- Miura, T., A. R. Huete, W. J. D. van Leeuwen, and K. Didan, Vegetation detection through smoke-filled AVIRIS images: An assessment using MODIS band passes, *J. Geophys. Res.*, this issue.
- Nakajima, T., G. Tonna, R. Rao, P. Boi, Y. Kaufman, and B. Holben, Use of sky brightness measurements from ground for remote sensing of particulate polydispersions, *Appl. Opt.*, **35**, 2672–2686, 1996.
- Nobre, C. A., L. F. Mattos, C. P. Derczynski, T. A. Tarasova, and I. V. Trosnikov, Overview of atmospheric conditions during the Smoke, Clouds, and Radiation-Brazil (SCAR-B) field experiment, *J. Geophys. Res.*, this issue.
- Novakov, T., and C. E. Corrigan, Thermal characterization of biomass smoke particles, *Mikrochim. Acta*, **119**, 157–166, 1995.
- Novakov, T., D. A. Hegg, and P. V. Hobbs, Airborne measurements of carbonaceous aerosols off the East Coast of the United States, *J. Geophys. Res.*, **102**, 30,023–30,030, 1997.
- Penner, J. E., R. E. Dickinson, and C. A. O'Neill, Effects of aerosol from biomass burning on the global radiation budget, *Science*, **256**, 1432–1433, 1992.
- Pereira, E. B., A. W. Setzer, F. Gerab, P. E. Artaxo, M. C. Pereira, and G. Monroe, Airborne measurements of aerosol from biomass burning in Brazil related to the TRACE-A experiment, *J. Geophys. Res.*, **101**, 23,983–23,992, 1996.
- Pickering, K. E., et al., Convective transport of biomass burning emissions over Brazil during TRACE A, *J. Geophys. Res.*, **101**, 23,993–24,012, 1996.
- Prins, E. M., and W. P. Menzel, Investigation of biomass burning and aerosol loading and transport utilizing geostationary satellite data, in *Biomass Burning and Global Change*, edited by J. S. Levine, pp. 65–72, MIT Press, Cambridge, Mass., 1996.
- Prins, E. M., J. M. Feltz, W. P. Menzel, and D. E. Ward, An overview of GOES 8 diurnal fire and smoke results for SCAR-B and the 1995 fire season in South America, *J. Geophys. Res.*, this issue.
- Radke, L. F., Airborne observations of cloud microphysics modified by anthropogenic forcing, in *Symposium on Atmospheric Chemistry and Global Climate*, Am. Meteorol. Soc., Boston, Mass., 1989.
- Radke, L. F., D. A. Hegg, P. V. Hobbs, J. D. Nance, J. H. Lyons, K. K. Laursen, R. E. Weiss, P. J. Riggan, and D. W. Ward, Particulate and trace gas emissions from large biomass fires in North America, in *Global Biomass Burning*, pp. 209, MIT Press, Cambridge, Mass., 1991.
- Reid, J. S., and P. V. Hobbs, Physical and optical properties of young smoke from individual biomass fires in Brazil, *J. Geophys. Res.*, this issue.
- Reid, J. S., P. V. Hobbs, R. F. Ferek, D. Blake, J. V. Martins, M. R. Dunlop, and C. Lioussé, Physical, chemical, and optical properties of regional hazes dominated by smoke in Brazil, *J. Geophys. Res.*, this issue (a).
- Reid, J. S., P. V. Hobbs, C. Lioussé, J. V. Martins, R. E. Weiss, and T. F. Eck, Comparisons of techniques for measuring shortwave absorption and black carbon content of aerosol from biomass burning in Brazil, *J. Geophys. Res.*, this issue (b).
- Remer, L. A., and Y. J. Kaufman, Dynamic aerosol model: Urban industrial aerosol, *J. Geophys. Res.*, **103**, 13,859–13,871, 1998.
- Remer, L. A., Y. J. Kaufman, and B. N. Holben, The size distribution of ambient aerosol particles: Smoke vs. urban/industrial aerosol, in

- Global Biomass Burning*, edited by J. Levin, 519 pp., MIT Press, Cambridge, Mass., 1996.
- Remer, L. A., S. Gassó, D. Hegg, Y. J. Kaufman, and B. N. Holben, Urban/industrial aerosol: Ground-based Sun/sky radiometer and airborne in situ measurements, *J. Geophys. Res.*, *102*, 16,849–16,859, 1997.
- Remer, L. A., Y. J. Kaufman, B. N. Holben, A. M. Thompson, and D. McNamara, Biomass burning aerosol size distribution and modeled optical properties, *J. Geophys. Res.*, this issue.
- Richey, J. E., J. I. Hedges, A. H. Devol, P. D. Quay, R. L. Victoria, L. A. Martinelli, and B. R. Forsberg, Biogeochemistry of carbon in the Amazon River, *Limnol. Oceanogr.*, *35*, 353–371, 1990.
- Robock, A., Enhancement of surface cooling due to forest fire smoke, *Science*, *242*, 911–913, 1988.
- Ross, J. L., and P. V. Hobbs, Radiative characteristics of regional hazes dominated by smoke from biomass burning in Brazil: Closure tests and direct radiative forcing, *J. Geophys. Res.*, this issue.
- Salomonson, V. V., W. L. Barnes, P. W. Maymon, H. E. Montgomery, and H. Ostrow, MODIS: Advanced facility instrument for studies of the earth as a system, *IEEE Trans. Geos. Remote Sens.*, *27*, 145–153, 1989.
- Seinfeld, J. H., et al., Aerosol radiative forcing and climate change, a plan for research, National Acad. Press, Washington, D. C., 1996.
- Setzer, A. W., and M. C. Pereira, Amazonian biomass burning in 1987 and an estimate of their tropospheric emissions, *Ambio*, *20*, 19–22, 1991.
- Skole, D., and C. J. Tucker, Tropical deforestation and habitat fragmentation in the Amazon: Satellite data from 1978 to 1988, *Science*, *260*, 1905–1910, 1993.
- Spinhrne, J. D., M. Z. Hansen, and L. O. Caudill, Cloud top remote sensing by airborne lidar, *Appl. Opt.*, *22*, 1564–1571, 1982.
- Swap, R., M. Garstang, S. A. Mackedo, P. D. Tyson, W. Maenhaut, P. Artaxo, P. Källberg, and R. Talbot, The long-range transport of southern African aerosols to the tropical South Atlantic, *J. Geophys. Res.*, *101*, 23,777–23,792, 1996.
- Tanré, D., M. Herman, and Y. J. Kaufman, Information on aerosol size distribution contained in solar reflected radiances, *J. Geophys. Res.*, *101*, 19,043–19,060, 1996.
- Tanré, D., Y. J. Kaufman, M. Herman, and S. Mattoo, Remote sensing of aerosol properties over oceans MODIS/EOS spectral radiances, *J. Geophys. Res.*, *102*, 16,971–16,988, 1997.
- Thompson, A. M., et al., Ozone over southern Africa during SAFARI-92/TRACE A, *J. Geophys. Res.*, *101*, 23,793–23,808, 1996.
- Torres, O., P. K. Bhartia, J. R. Herman, Z. Ahmad, and J. F. Gleason, Derivation of aerosol properties from satellite measurements of backscattered ultraviolet radiation: Theoretical basis, *J. Geophys. Res.*, *103*, 17,099–17,110, 1998.
- Tsay, S.-C., M. D. King, G. T. Arnold, and J. Y. Li, Airborne spectral measurements of surface anisotropy during SCAR-B, *J. Geophys. Res.*, this issue.
- Twomey, S., The influence of pollution on the short wave albedo of clouds, *J. Atmos. Sci.*, *34*, 1149–1152, 1977.
- Vane, G., R. O. Green, T. G. Chrien, H. T. Enmark, E. G. Hansen, and W. M. Porter, The airborne visible/infrared imaging spectrometer (AVIRIS), *Remote Sens. Environ.*, *44*, 127–143, 1993.
- Vermote, E. F., N. El Saleous, C. O. Justice, Y. J. Kaufman, J. L. Privette, L. Remer, J. C. Roger, and D. Tanré, Atmospheric correction of visible to mid-IR EOS-MODIS data over land surface, background, operational algorithm, and validation, *J. Geophys. Res.*, *102*, 17,131–17,141, 1997.
- von Hoyningen-Huene, W., T. Schmidt, and C. A. Kee, Climate relevant aerosol parameters of South East Asia forest fire haze, paper presented at the International Symposium on the Atmospheric Correction of Satellite Data and its Application to Global Environment, Chiba, Japan, 1998.
- Ward, D. E., and C. C. Hardy, Smoke emissions from wild land fires, *Environ. Int.*, *17*, 117–134, 1991.
- Ward, D. E., R. Susott, J. Kauffman, R. Babbitt, B. N. Holben, Y. J. Kaufman, A. Setzer, R. Rasmussen, D. Cumming, and B. Dias, Emissions and burning characteristics of biomass fires for cerrado and tropical forest regions of Brazil—BASE-B experiment, *J. Geophys. Res.*, *97*, 14,601–14,619, 1992.
- Ward, D. E., W. M. Hao, R. A. Susott, R. E. Babbitt, R. W. Shea, J. B. Kauffman, and C. O. Justice, Effects of fuel composition on combustion efficiency and emission factors for African savanna ecosystem, *J. Geophys. Res.*, *101*, 23,569–23,576, 1996.
- Warner, J., and S. Twomey, The production of cloud nuclei by cane fires and the effect on cloud droplet concentration, *J. Atmos. Sci.*, *24*, 704–706, 1967.
- Yamasoe, M. A., Y. J. Kaufman, O. Dubovik, L. A. Remer, B. Holben, and P. Artaxo, Retrieval of the real part of the refractive index of smoke particles from Sun/sky measurements during SCAR-B, *J. Geophys. Res.*, this issue.
- P. Artaxo, and K. M. Longo, Instituto de Física, Universidade de São Paulo, Caixa Postal 66318, CEP 05389-970, São Paulo, SP, Brazil.
- S. A. Christopher, Department of Atmospheric Sciences, University of Alabama in Huntsville, 977 Explorer Boulevard, Huntsville, AL 35899.
- J. F. Gleason, Y. J. Kaufman, L. A. Remer, J. D. Spinhrne, A. M. Thompson, and S.-C. Tsay, Laboratory for Atmospheres, NASA Goddard Space Flight Center, Mail Code 913, Greenbelt, MD 20771. (e-mail: kaufman@climate.gsfc.nasa.gov).
- P. V. Hobbs, Department of Atmospheric Sciences, University of Washington, Box 351640, Seattle, WA 98195-1640.
- B. N. Holben, Laboratory for Terrestrial Physics, NASA Goddard Space Flight Center, Greenbelt, MD 20771.
- Q. Ji, Science Systems and Applications Inc., 5900 Princess Garden Parkway, Lanham, MD 20706.
- M. D. King, Earth Sciences Directorate, NASA Goddard Space Flight Center, Greenbelt, MD 20771.
- V. W. J. H. Kirchhoff, L. F. Mattos, and C. A. Nobre, INPE, Caixa Postal 515, Ave. Dos Astronautas, 1758, São José dos Campos, SP 12201-970, Brazil.
- E. M. Prins, NOAA/NESDIS/ORA, 1225 West Dayton St., Madison, WI 53706.
- D. E. Ward, Intermountain Research Station, Forest Service, USDA, Missoula, MT 59807.

(Received September 11, 1997; revised April 16, 1998; accepted June 22, 1998.)

Apêndice C

Artigo: “Correlation between smoke and tropospheric ozone concentration in Cuiabá during SCAR-B”

Longo K. M., A. M. Thompson, V. W. J. H. Kirchhoff, L. A. Remer, S. R. Freitas, M. A. F. Silva Dias, P. Artaxo, W. Hart, J. D. Spinhirne, M. A. Yamasoe.

Journal of Geophysical Research, 104, D10, 12113-12129, 1999.

Correlation between smoke and tropospheric ozone concentration in Cuiabá during Smoke, Clouds, and Radiation-Brazil (SCAR-B)

Karla M. Longo,^{1,2} Anne M. Thompson,² Volker W. J. H. Kirchhoff,³ Lorraine A. Remer,² Saulo R. de Freitas,¹ Maria A. F. Silva Dias,⁴ Paulo Artaxo,¹ William Hart,² James D. Spinhirne,² and Márcia A. Yamasoe¹

Abstract. Ozone soundings launched from Cuiabá between August 16 and September 10, 1995, during the Smoke, Clouds, and Radiation–Brazil (SCAR-B) experiment show an enrichment of tropospheric ozone when compared with average wet season values and also present a great variability in concentrations depending on the dominant circulation pattern. Smoke tracers, such as aerosol optical thickness, measured from a Sun photometer installed at the Instituto Nacional de Pesquisas Espaciais-Cuiabá site, and black carbon ground measurements, also show an enhancement of smoke during the same period. Although there is a connection between the enrichment of the tropospheric ozone around Cuiabá during the dry season and smoke from biomass burning, the correlation between ozone and smoke indicates different behavior in different periods. Trajectory analyses suggest that the strong ozone peak measured in the period between August 26 and 29, 1995, may be associated not only with direct biomass-burning emissions but also with urban/industrial emissions from big cities on the coast of Brazil and recirculation of old smoke. This view is confirmed by measurements made from the Cloud Lidar System instrument aboard the ER-2 aircraft.

1. Introduction

In the Amazon and central Brazil regions during the austral winter dry season, between the months of July and October, intense anthropogenic biomass burning occurs in cerrado and tropical forest ecosystems [Andreae, 1991; Crutzen and Goldammer, 1993]. This biomass burning is a source of atmospheric pollution, emitting gases such as CO, CO₂, and NO_x; hydrocarbons; and aerosol particulates [Crutzen et al., 1979; Artaxo et al., 1994, 1997; Echalar et al., 1998]. Also, gases that are not emitted directly from biomass burning but that result from secondary reactions of biomass-burning products, such as tropospheric ozone, show an enhancement in concentration during the biomass-burning season [Kirchhoff et al., 1992, 1996a, b; Thompson et al., 1996].

The overall objective of the Smoke, Clouds, and Radiation–Brazil (SCAR-B) experiment was to study the physical and chemical properties of the smoke produced by biomass burning and the effects of the smoke on the Earth's radiation balance and climate. Understanding the circulation pattern and the vertical structure of the atmosphere during the burning season is essential to interpreting and analyzing the measurements conducted during SCAR-B. Trajectory analyses based on a numerical simulation of the experiment period will be

presented in this paper. Forward trajectories from the main fire areas and backward trajectories from the Cuiabá measurement site were calculated. The effects of meteorological conditions in spreading the pollutants emitted by biomass burning in Brazil are also discussed. The analyses presented in this paper are based on the daily variability of the ozone vertical profiles from ozonesondes launched at the Cuiabá site during the SCAR-B experiment. Origins of air parcels at Cuiabá at many vertical levels are examined. The daily variability of smoke tracers from ground-based measurements at the same site is also considered. Attention is given to the relationship between ozone, black carbon, and aerosol optical thickness. Different patterns of correlation, depending on the atmospheric circulation pattern, are investigated.

2. Methodology

2.1. Measurements at Cuiabá

During the SCAR-B experiment many measurements took place at the Cuiabá site, located in central Brazil (16°S, 56°W), where cerrado is the dominant vegetation, and many vegetation fires were observed. Ozonesondes were launched from Cuiabá in the manner described by Kirchhoff et al. [1992, 1996a, b]. The first measurement occurred on August 16, 1995, and the last one occurred on September 10, 1995; during this period a total of 20 ozonesondes were successfully launched.

A Sun photometer ground station installed at Instituto Nacional de Pesquisas Espaciais (INPE)-Cuiabá measured aerosol optical thickness during the same period. The aerosol optical thickness is the vertical optical thickness of the nonmolecular components of the entire atmospheric column derived from solar transmission measurements made by a Sun photometer [Kaufman and Fraser, 1983]. Precipitable water

¹Instituto de Física, Universidade de São Paulo, São Paulo, Brazil.

²NASA Goddard Space Flight Center, Greenbelt, Maryland.

³Instituto Nacional de Pesquisas Espaciais, São José dos Campos, São Paulo, Brazil.

⁴Departamento de Ciências Atmosféricas, Instituto Astronômico e Geofísico, Universidade de São Paulo, São Paulo, Brazil.

Copyright 1999 by the American Geophysical Union.

Paper number 1999JD900044.
0148-0227/99/1999JD900044\$09.00

vapor is retrieved from the same Sun photometer as the ratio of broad and narrow bands centered in the water vapor absorption region 0.935 to 0.950 μm [Kaufman *et al.*, 1992].

Real-time black carbon measurements were carried out using an aethalometer installed at INPE-Cuiabá with measuring intervals of 30 min. Black carbon includes all the particulate carbon species that efficiently absorb light [Reid *et al.*, 1998], which is abundantly emitted during biomass burning [Echalar *et al.*, 1998]. The data collected in this way represent a near-surface smoke measurement.

2.2. Trajectory Calculations

Kinematic three-dimensional trajectories were determined by the University of São Paulo (USP) Trajectory Model [Freitas *et al.*, 1996]. The wind fields used were generated from a simulation using the Regional Atmospheric Modeling System (RAMS), 3b version [Tripoli and Cotton, 1982]. The RAMS model was run with 80 km by 80 km grid resolution covering South America and neighboring Atlantic and Pacific Oceans. A stretched, terrain-following vertical coordinate was employed with a grid spacing of 200 m adjacent to the surface. Above 200 m the grid spacing gradually increases to 1200 m at a rate of 1.2, keeping this resolution up to the model top at 19 km. Physical parameterizations included in the RAMS model are anisotropic turbulence, which is dependent on the deformation tensor; atmospheric long- and short-wave radiation interacting with water vapor and liquid water; surface interaction including the effect of vegetation types; input from a soil model; and the effect of deep cumulus clouds. Details of these parameterizations are given by Pielke *et al.* [1992]. The RAMS simulations were carried out from an initial condition provided by an interpolation of six hourly National Center for Environmental Prediction (NCEP) global reanalyses, at 2.5 by 2.5 resolution, with 13 vertical levels from 1000 to 70 hPa. The model is nudged at every time step toward the NCEP analyses at the model boundary, at the model top, and significantly, but to a lesser extent, at the model center. In this way the simulation can be carried out for several days with the simulated wind fields reproducing large-scale features of the observed flow depicted in the NCEP analyses. The three-dimensional simulated winds are stored every 2 hours of simulation. These winds become input to the trajectory computation by the USP model, which uses a 0.5-hour time step.

The trajectories calculated using simulated wind fields as described before, rather than directly using NCEP winds, have the advantages of better time and spatial resolution. Also, the model takes into account surface effects, vegetation, and topography maps. These characteristics are particularly important while calculating trajectories inside the boundary layer.

3. Results

3.1. Meteorological Setting

The main large-scale systems affecting central Brazil and the Amazon Basin during the dry season in the Southern Hemisphere are the Intertropical Convergence Zone (ITCZ), the Midlatitude Frontal Systems, and the South Atlantic Subtropical High (SASH) [Nobre *et al.*, 1998]. The westward displacement of the SASH and the northward motion of the ITCZ during the austral winter typically produce a high-subsidence area over central Brazil and the Amazon Basin, displacing wetness and cloudiness to remote areas in the north and north-west Amazon.

Approaching cold frontal systems from the south are responsible for disturbances in atmospheric stability and in the wind fields. During these episodes, vertical advection is favored and so is long-range transport, although the cold frontal systems are usually blocked by the high-pressure system and are driven eastward to the Atlantic Ocean before they can reach the SCAR-B area [Freitas *et al.*, 1996]. These disturbances contribute to the daily variability of air mass origins and of ozone vertical profiles at Cuiabá during SCAR-B. From the north, propagating squall lines originating at the northern coast of Brazil can also be responsible for convective events [Silva Dias and Ferreira, 1992]. During the 1992 Transport and Atmospheric Chemistry Near the Equator—Atlantic (TRACE-A) experiment, convective events were observed, related to both the approach of a cold frontal system and northern convection [Pickering *et al.*, 1996].

During the SCAR-B experiment period, from August 16 to September 11, 1995, a high-pressure area with very little precipitation dominated the central Brazil climatology. Moderate to slow easterly winds were observed above 15°S latitude, where most of the biomass burning took place. Also, winds came from the north and northwest of the SCAR-B area. This anticyclonic circulation over the continent pushed the smoke southward toward the cold frontal system, where the smoke was strongly advected upward, with injection at high levels and transport to the South Atlantic Ocean by the westerly winds. Figure 1 shows the time-averaged wind fields for the SCAR-B period. Pickering *et al.* [1996] and Wang *et al.* [1996] have described this type of behavior and its chemical impact during TRACE A.

At the Cuiabá site, where the data collection took place, easterly winds are dominant, bringing clean air from the ocean and some recirculation from the continent. In some periods, depending on the anticyclonic position, north or northeast winds were also observed at Cuiabá.

3.2. Trajectory Analysis

Although ozone is not emitted directly from biomass burning, an enhancement of tropospheric ozone has been reported for periods of biomass burning in Brazil and Africa [Kirchhoff *et al.*, 1992, 1996a; Fishman *et al.*, 1996; Thompson *et al.*, 1996; Browell *et al.*, 1996; Jacob *et al.*, 1996]. The TRACE-A measurements conducted over the tropical South Atlantic Ocean indicated that widespread biomass burning over both South America and Africa was a dominant source of precursor gases necessary for formation of the large amount of ozone over the Atlantic Ocean [Thompson *et al.*, 1996]. Case studies from several experiments over South America and the tropical Atlantic have shown that the seasonal increase in free tropospheric ozone formation is frequently associated with the combination of deep convection and biomass-burning pollution or urban emissions [Thompson *et al.*, 1997; Jenkins *et al.*, 1997].

During the 1995 dry season, GOES 8 smoke observation data from University of Wisconsin—Madison (UW—Madison) showed an extensive smoke layer over Brazil, almost entirely covering the Amazon Basin and heading southward toward continental outflow to the Atlantic Ocean [Prins *et al.*, 1998]. Forward trajectories from the main fire areas in Brazil calculated for the period of SCAR-B present a good fit with these smoke observations.

Plate 1 shows hourly parcel positions distributed along 6-day forward trajectories for the SCAR-B period. These trajectories originated from the main biomass areas during SCAR-B, as

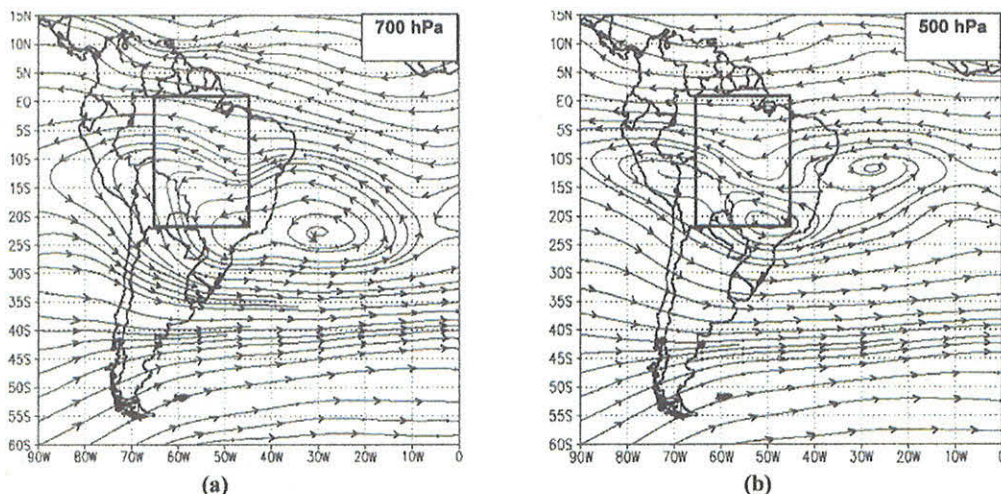


Figure 1. Time-averaged wind fields (streamlines) for the SCAR-B period, August 16 to September 11, 1995, derived from four daily (0000, 0600, 1200, and 1800 UTC) National Center for Environmental Prediction (NCEP) global reanalyses at (a) 700 hPa and (b) 500 hPa.

observed by the GOES 8 fire product data from UW–Madison [Prins *et al.*, 1998]. Three areas were considered relevant (white rectangles in Plate 1). The first area (Plate 1a) is in Rondônia, southeast of Porto Velho (from 7.5°S to 15°S and 65°W to 60°W). The second area (Plate 1b) surrounds the town of Alta Floresta in northern Mato Grosso (from 7.5°S to 12.5°S and 60°W to 52.5°W). Finally, the third area (Plate 1c) is northwest of Porto Nacional (from 5.0°S to 12.5°S and 52.5°W to 47.5°W). These trajectories were initialized at ~700 hPa (~3 km). According to meteorological observations from the National Institute of Meteorology in Brazil an inversion layer at ~700 hPa over central Brazil was observed at several meteorological sites during nearly all of the SCAR-B period. Also, many smoke tracer layers observed during vertical profiling aboard INPE aircraft suggest the same altitude for the inversion layer.

The Porto Velho area receives pollution from the other areas in addition to the local pollution effects (Plate 1a). The Sun photometers installed at Porto Velho, Ji-Paraná, and Potosí Mine indicated high values of aerosol optical thickness, rarely below 2.0 for the 0.669 μm channel. The dominant easterly winds push the smoke toward the Andes, and high subsidence maintains the smoke at low levels for several days. The trajectory altitudes remain below 700 hPa (3.0 km) while inside the Amazon Basin. Plotting air parcel distributions along the forward trajectories originating from the three main areas (Plate 1d) shows a plume over Brazil with continental outflow to the Atlantic Ocean ~30°S latitude. A stationary cold front at 30°S latitude is responsible for a strong vertical motion at this point. The trajectory altitudes jump to values >6.0 km upon reaching the cold front area, indicating the possibility of long-range transport of the biomass-burning products. Outflow to the Pacific Ocean across the Andes is also indicated between the latitudes 10°S and 10°N. The low levels of the trajectories, however, could indicate an important deposition effect, mainly considering that even during the dry season the northern portion of the Amazon Basin may still possess high relative humidity. During August 1995 the observed precipitation levels in the extreme north of the Amazon Basin (Roraima and northwestern Amazonas) exceeded 200 mm [Instituto Nacional de Pesquisas Espaciais (INPE), 1995].

Plate 2 shows two illustrative clusters of the 6-day forward trajectories for particular days in order to exemplify two basic patterns of the period as a whole. The first one ends on August 29, 1995, and the second one ends on September 4, 1995. The color bar in Plate 2 indicates the altitude of the air parcels along the integration. During high-subsidence periods (Plate 2a) the absence of the trajectory vertical motion indicates that the smoke is trapped below 700 hPa while in central Brazil. There is an upward movement ahead of the cold frontal system in southern Brazil and also associated with convective systems in the northern Amazon Basin. The second cluster (Plate 2b) shows an example where the trajectory upward motion is substantial owing to convective events that are smaller in scale than cold frontal systems but still sensitive to the model.

This transport pattern results in a large smoke layer as indicated in Plate 1d and confirmed by satellite smoke observation [Prins *et al.*, 1998; Gleason *et al.*, 1998]. Thus the effects of these emissions exceed the local scale and may affect the regional composition of the South American atmosphere. These biomass-burning emissions may change the atmospheric radiative balance and the hydrological cycle by direct effects of the aerosol particulate and gases as well as by indirect effects on dynamics of the cloud formation [Kaufman, 1995; Kaufman *et al.*, 1998].

Hourly parcel positions along 6-day backward trajectories originating from the Cuiabá site at 700 hPa during SCAR-B are summarized in Plate 3. Easterly winds bring clean air from the ocean and some recirculation from the continent.

3.3. Ozonesondes

Ozone concentration mean values ranging from 40 to 90 ppbv were observed from August 16 to September 10 (Figure 2). From August 16 to 25 the ozone levels observed in Cuiabá were relatively low, ~50 ppbv. These values are still high when compared with typical wet season values (~15 ppbv). An increase of tropospheric ozone was observed, starting on August 26 and reaching a maximum on August 29; ozone decreased again at the beginning of September. During the first 10 days of September, alternating periods of high- and low-ozone con-

Forward Trajectory Parcel Distribution SCAR-B Fire areas

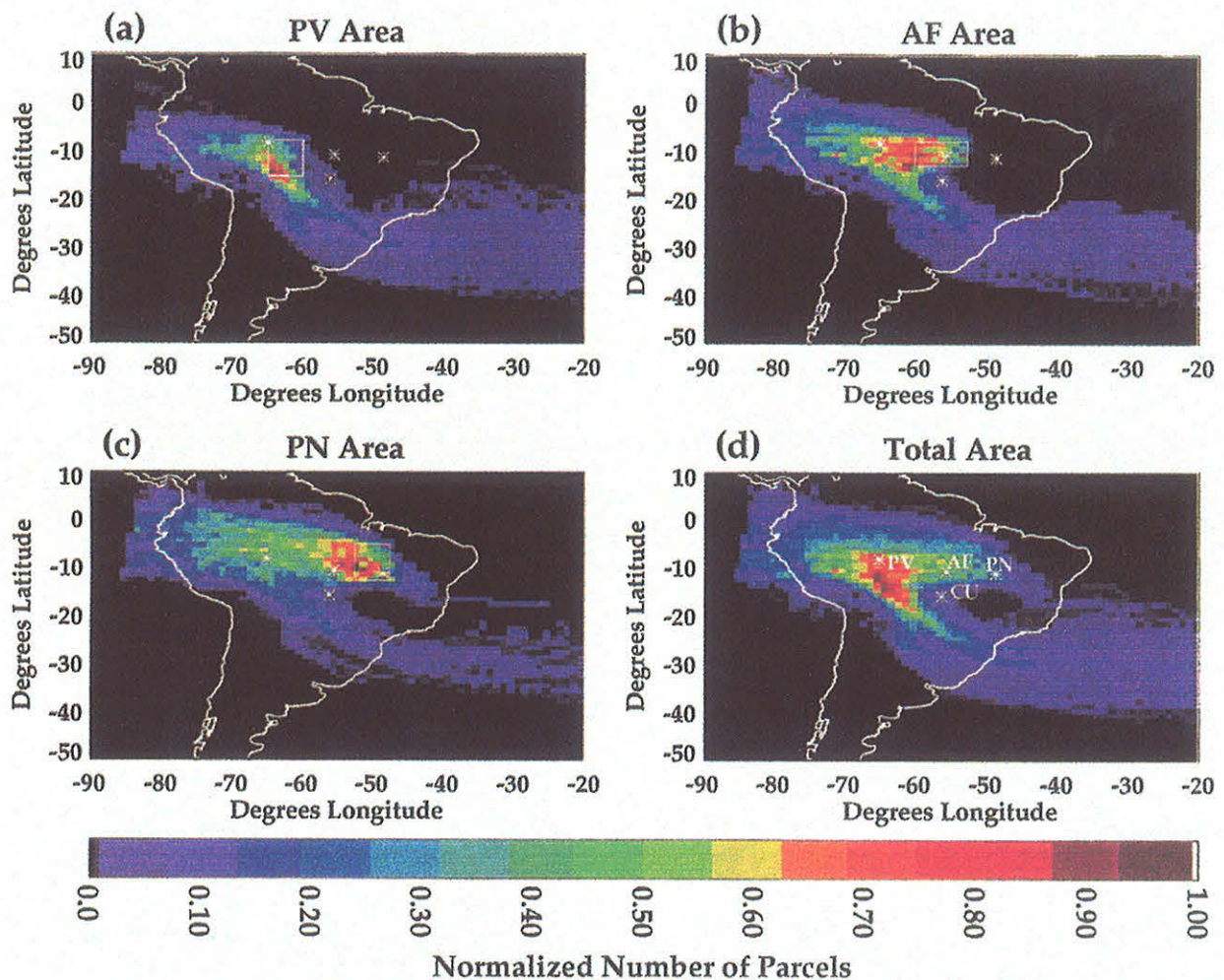


Plate 1. Hourly parcel locations from daily 6-day forward trajectories during SCAR-B, originating from the main biomass-burning areas at 700 hPa. Three source areas, (a) Rondônia, (b) northern Mato Grosso, around the town of Alta Floresta, and (c) an area including southeastern Pará, western Tocantins, and northeastern Mato Grosso, were considered as well as (d) all three source areas together. PV, Porto Velho; AF, Alta Floresta; PN, Porto Nacional.

centrations were recorded, with values higher than those observed before August 26.

Vertical ozone, relative humidity, and temperature profiles available for two particular periods are plotted in Figures 3 and 4. Period 1 is from August 26 to 31, and period 2 is from September 7 to 10.

On August 26 (Figure 3a), ozone levels start rising and begin forming a layer at 700 hPa; also, two smaller peaks are observed at 650 and 550 hPa. On August 27 (Figure 3b), there was a 100 ppbv ozone layer above 700 hPa and a clean gap between it and a weaker layer at lower levels. On August 29 a narrow plume of 140 ppbv was registered ~650 hPa (Figure 3c). Figure 3d shows the ozone decreasing on August 31.

Vertical profiles for period 2 present a different vertical structure (Figure 4). The period from September 7 to 10 is characterized by a transition phase from the dry to the wet season. The high-pressure area over central Brazil has dispersed, promoting a stratified vertical structure of the atmo-

sphere. The boundary layer is much more flexible, allowing greater upward motion and expanding the ozone layer up to 500 hPa with a maximum concentration at 700 hPa.

3.4. Aerosol Optical Thickness and Aethalometer Results

The smoke tracers show a pattern of daily variability in the SCAR-B period from August 16 to September 10 similar to the variation in ozone. Relatively low levels in the first week of measurement (August 16–23) and an enhancement around August 29 were observed. Figure 5 presents daily averages for the black carbon ground measurements, aerosol optical thickness, (0.669 μm channel), and precipitable water vapor.

The black carbon concentration in Cuiabá exhibits a diurnal cycle, with lower concentrations and variability between 1200 and 1800 UTC. Figure 6 shows an average day, including all the measurements collected at the indicated times between August 16 and September 10. The black carbon diurnal cycle is related to the fire diurnal cycle reported by the GOES 8 fire

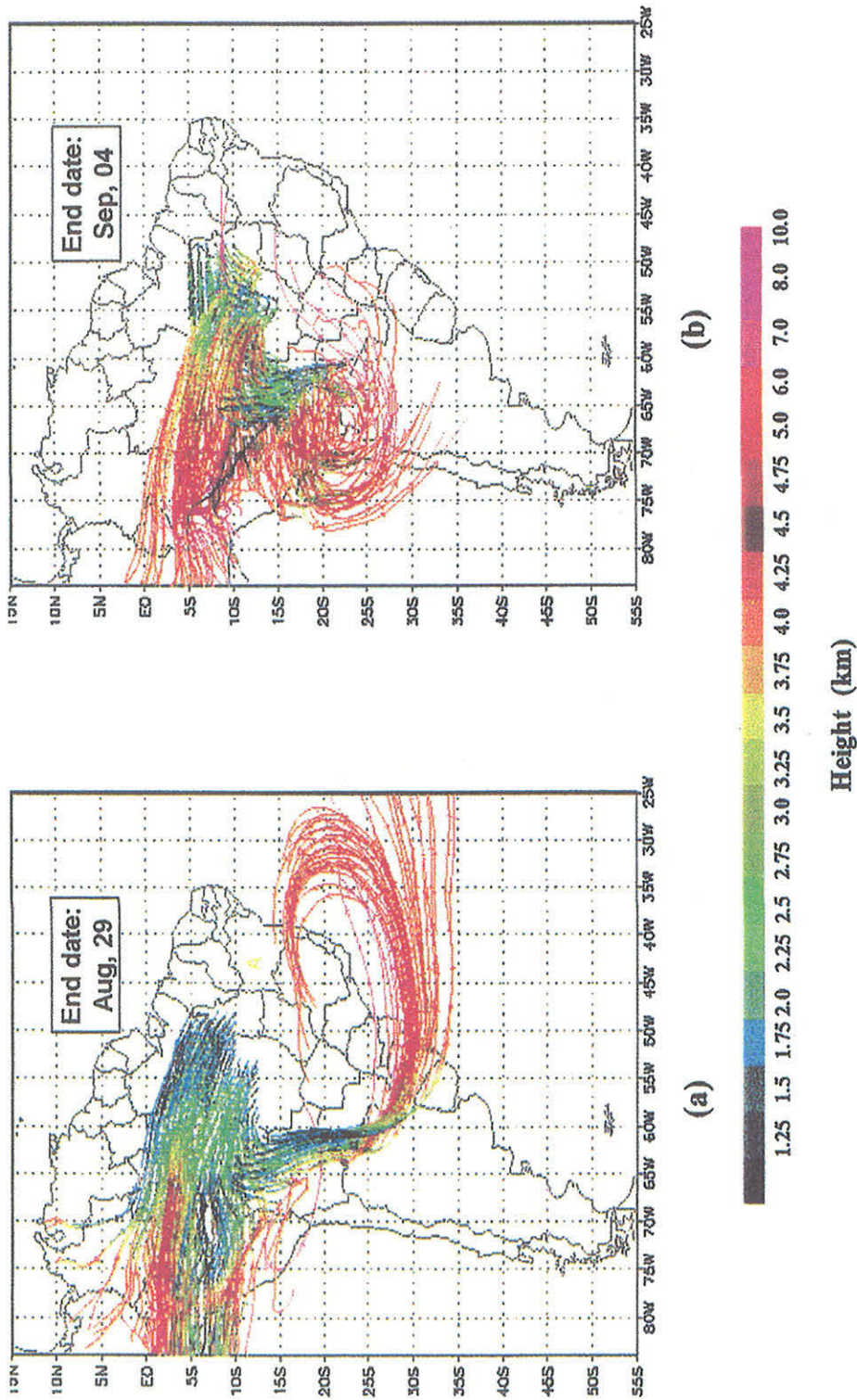


Plate 2. Clusters of 6-day forward trajectories originating from the main fire areas (described in Plate 1) at 700 hPa. Integration period is from (a) August 22 to 29 and (b) August 28 to September 4. The color bar gives the trajectory altitude.

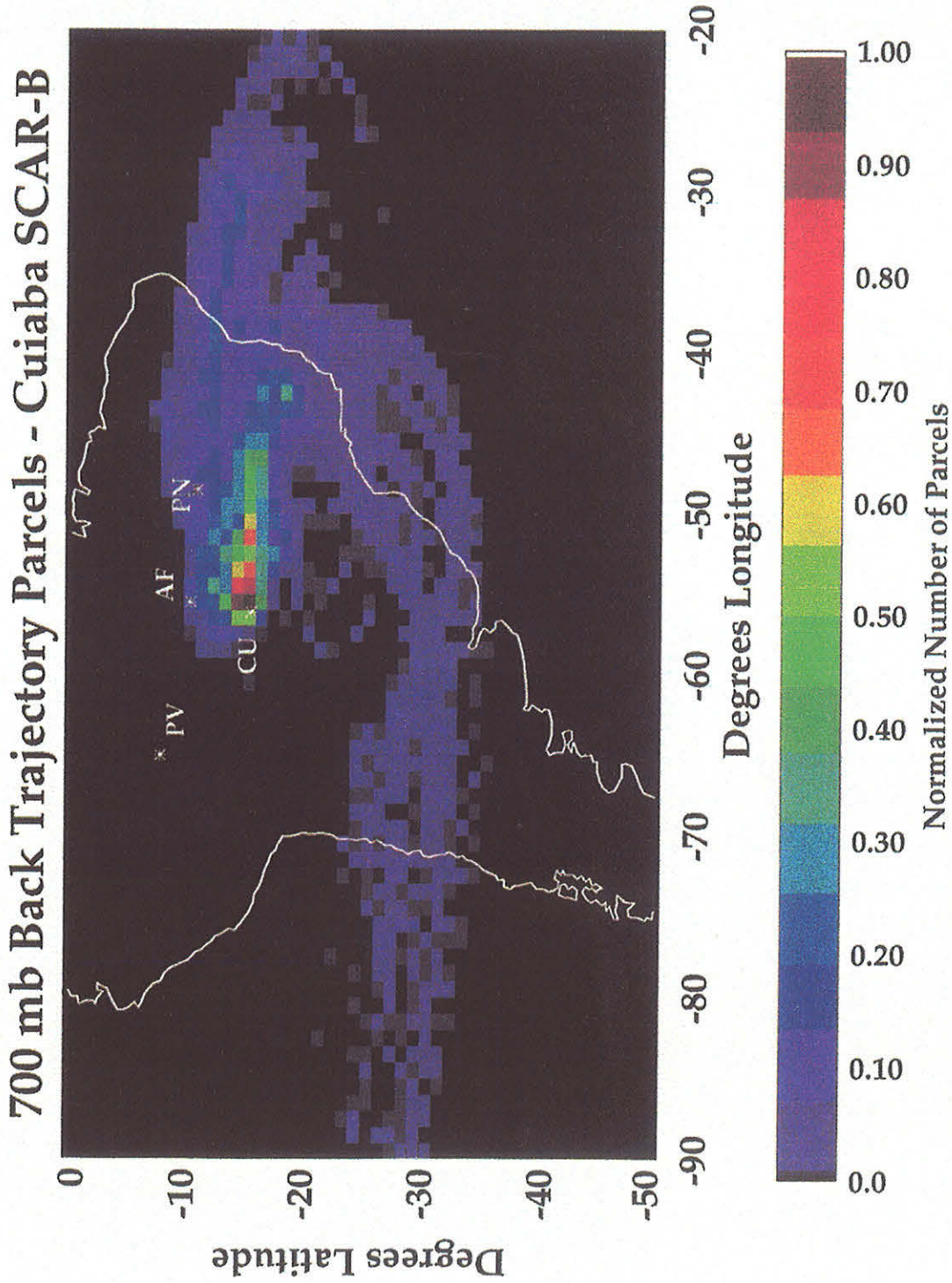


Plate 3. Hourly parcel locations along daily 6-day backward trajectories during the SCAR-B period. Trajectory starting points are distributed in a cluster around the Cuiabá site (16°S, 56°W), and starting levels are ~700 hPa.

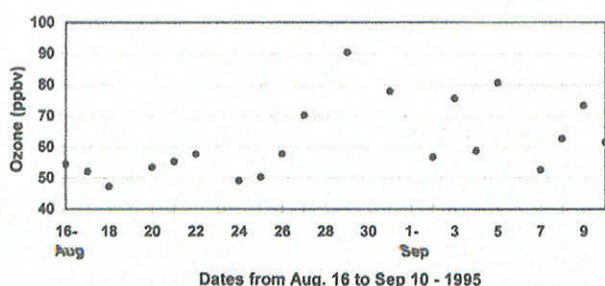


Figure 2. Average ozone concentrations from 1000 to 500 hPa, derived from the ozone profiles obtained from the ozone-sonde measurements made at Cuiabá between August 16 and September 10, 1995.

products by UW–Madison. The fire count around 1745 UTC is typically 2–4 times greater than that observed three hours earlier or later and nearly 20 times greater than that observed at 1145 UTC [Prins et al., 1998]. The black carbon diurnal cycle is also related to the boundary layer evolution during a diurnal cycle. The formation of the nocturnal boundary layer, as a result of contact of the first atmospheric layer with the ground, reduces the vertical upward motion of the pollutants [Stull, 1988], promoting smoke accumulation after sunset. Daily averages of black carbon that include only measurements taken between 1200 and 1800 UTC probably represent surface measurements in a well-mixed column. In the correlation graphs of

smoke tracers and ozone described in section 3.5, only tracer data collected between 1200 and 1800 UTC will be considered.

3.5. Correlation Between Observed Parameters

The relationship between tropospheric ozone concentration and smoke in Cuiabá, as circulation patterns vary, will be explored here. Our analysis focuses on the two periods of enhancement of both ozone and smoke: from August 26 to 31 (period 1) and from September 7 to 10 (period 2). Black carbon (Figure 7a) and precipitable water vapor (Figure 7b) as functions of aerosol optical thickness (measured in the 0.669 μm channel) show a relationship in both cases. For high values of aerosol optical thickness (>0.5) a split pattern is observed. Period 1 (solid diamonds) shows higher values of black carbon (BC) and lower values of precipitable water vapor than period 2 (crosses) for the same range of aerosol optical thickness (AOT). Figure 8 shows the average tropospheric ozone, weighted by altitude from 1000 to 500 hPa, as a function of the aerosol optical thickness, measured simultaneously with the ozone data point. The ozone versus aerosol optical thickness repeats the same split pattern observed for black carbon and water vapor. In period 1 the atmosphere presents an enhancement of ozone concentration relative to period 2. The r^2 for the correlation of ozone as a function of AOT and BC as a function of AOT, excluding the last days of September, which characterize the transition from the dry to the wet season, were 0.74 and 0.63, respectively.

Note that lower ozone mixing ratios correspond to a higher presence of water vapor. This fits in with other observations of

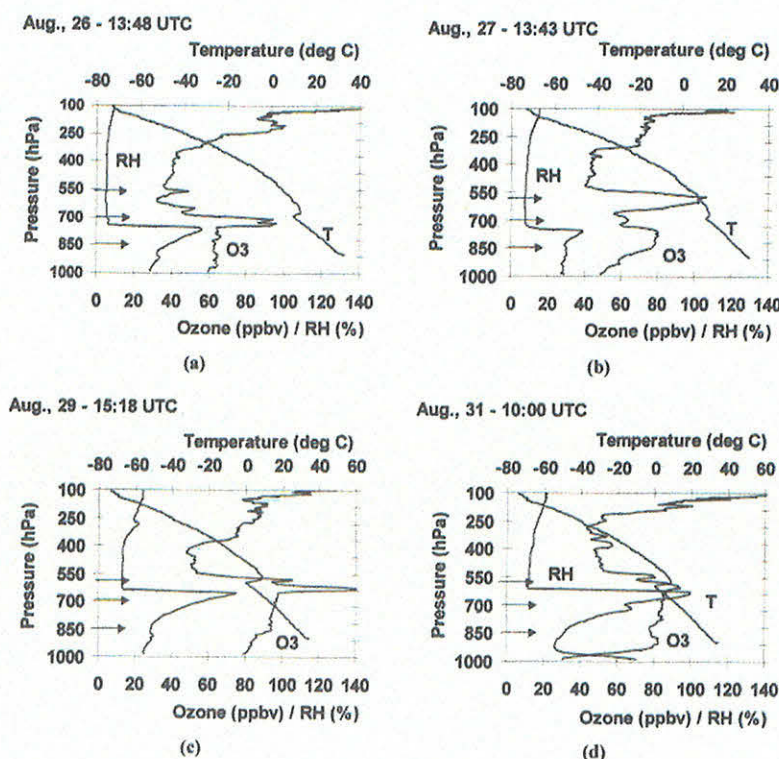


Figure 3. Radiosonde measurements of ozone (ppbv), relative humidity (%), and temperature (°C) at Cuiabá for period 1: (a) August 26, (b) August 27, (c) August 29, and (d) August 31. Shaded arrows indicate the levels from which the backward trajectories were calculated. Launch dates and times are shown above each plot.

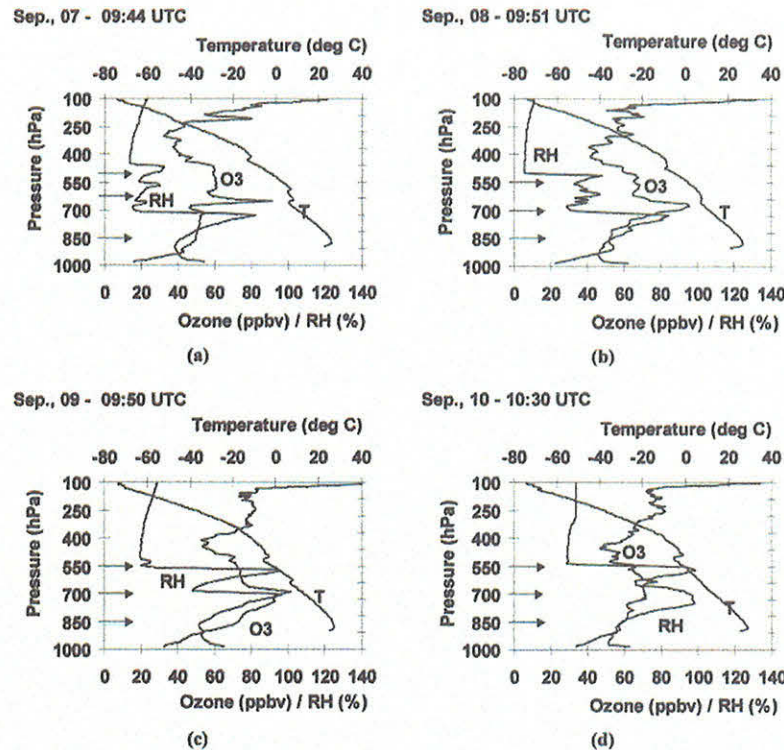
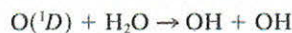


Figure 4. Radiosonde measurements of ozone (ppbv), relative humidity (%), and temperature ($^{\circ}\text{C}$) at Cuiabá for period 2: (a) September 7, (b) September 8, (c) September 9, and (d) September 10. Shaded arrows indicate the levels where the backward trajectories were calculated. The launch dates and times are shown above each plot.

middle and lower-tropospheric anticorrelation of tropical water vapor and ozone [Kley *et al.*, 1996]. A main reason is that the photochemical destruction of ozone leads to the formation of the $\text{O}(^1\text{D})$ free radical which reacts with water vapor to form the hydroxyl radical OH:



This is the major loss process for tropospheric ozone in the lower atmosphere. The greater the amount of water vapor, the

greater the ozone loss, and the lower the ozone concentration [Thompson, 1994].

Backward trajectories from Cuiabá measurement site are run at many levels in order to see if the origin of the air masses can explain the ozone changes and the different correlation patterns for different periods (Plate 4). Shaded arrows along the vertical profiles indicate vertical starting levels for these trajectories. Starting date and time are indicated at the top of the graphs. Starting vertical levels and the ending levels after 6 days for the trajectories in the center of each cluster are also shown in Plate 4. The color bar indicates the trajectory altitudes in kilometers. On August 26 and 27 the backward tra-

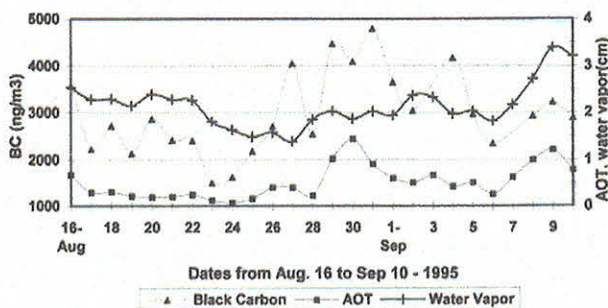


Figure 5. Daily average series of black carbon (BC) ground measurements (triangles), aerosol optical thickness (AOT) (rectangles) for $0.669 \mu\text{m}$ channel, and precipitable water vapor (pluses). The averages consider measurements taken between 1200 and 1800 UTC.

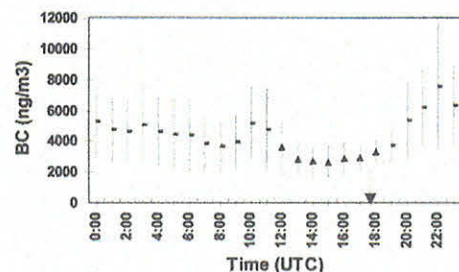


Figure 6. Average black carbon concentration (bars, standard deviation) for an "average day" between August 16 and September 10. The triangles indicate the times with lower concentrations and variability. The solid arrow indicates the peak burning reported by Prins *et al.* [1998].

jectories are eastward on the first 2 days of integration; after this the trajectories show an anticyclonic circulation from the continent. On August 29 the pattern is similar but with a component from the northeast on the first 3 days at 700 hPa. The aerosol optical thickness measured in Brasília (48.5°W, 15.5°S) in the August 26–29 period was always <0.1 (0.669 μm channel). In some levels, circulation is over the coast, overpassing an urban/industrial area; otherwise, the circulation is over the ocean. In both cases, air parcels reached the biomass-burning outflow region, at $\sim 30^\circ\text{S}$ latitude in this period. This circulation suggests that the ozone enhancement observed in Cuiabá during this period could be a superposition of ozone production from the local biomass-burning emissions trapped in an inversion brought on by very high subsidence and a postconvective production of ozone from vertically transported NO or NO produced by lightning [Thompson *et al.*, 1996; Lelieveld and Crutzen, 1990, 1994]. In addition, recirculation of the regional plume that covers part of Brazil during the burning season is probably introducing additional contributions of ozone from urban/industrial areas.

Vertical profiles from the radiosondes for period 2 present a different vertical structure (Figure 4). The period from September 7 to 10 is characterized by a transition phase from the dry to the wet season. The high-pressure area over central Brazil has dispersed, promoting a stratified vertical structure of the atmosphere. The boundary layer is much more flexible, allowing greater upward motion and expanding the ozone layer up to 500 hPa with a maximum concentration at 700 hPa. Backward trajectories for this period are shown in Plate 5,

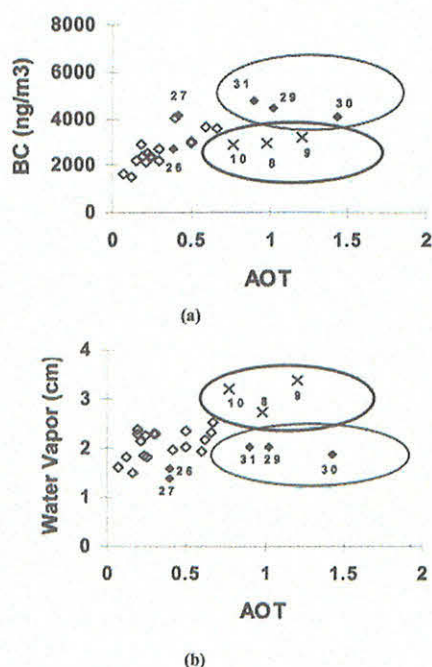


Figure 7. (a) Black carbon ground measurement and (b) precipitable water vapor as functions of aerosol optical thickness (0.669 μm). The open diamonds are for general days. The solid diamonds, inside the thin ellipses, indicate the days when the AOT increased owing to smoke accumulation during a very high subsidence period. The days where the increase of AOT corresponds to an increase of water vapor are represented by crosses inside the thick ellipses.

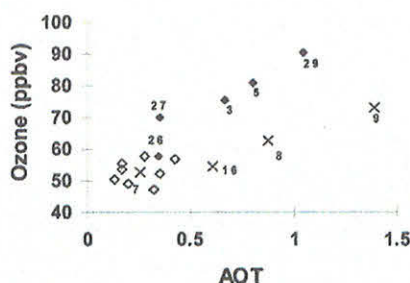


Figure 8. Average ozone (from 1000 to 500 hPa) as function of the aerosol optical thickness (0.669 μm). The same split pattern for black carbon and water vapor (Figure 7) repeats for the ozone.

characterizing a more localized pattern of circulation, indicating slow air parcels predominantly from the northeast.

3.6. Supporting Evidence: ER-2 Cloud Lidar System

A Nd:(yttrium/aluminium/garnet (laser crystal)) YAG monostatic lidar system aboard the ER-2 aircraft (the Cloud Lidar System (CLS)) measured the backscattered signals at 1.064 and 0.532 μm [Spinhirne *et al.*, 1982] during SCAR-B. Flights 95165 and 95169 refer to flights from Cuiabá to Vilhena on August 27 and September 7, respectively (Plate 6). On August 27, ozone concentrations from 50 to 80 ppbv were observed below the inversion layer ~ 700 hPa (~ 3.0 km). A second, stronger ozone layer, with ozone concentration of 100 ppbv, was observed ~ 600 hPa (~ 4.5 km) (Figure 3b). According to the lidar data this second ozone layer is not correlated with smoke. The aerosol backscatter coefficient derived from CLS on August 27 (Plate 6a) shows the smoke limited to the column below 3 km, trapped by the temperature inversion. Plate 4a shows the ozone profile with ozone concentrations from 40 to 60 ppbv from the surface to 500 hPa and a strong and thin ozone layer (~ 95 ppbv) at 600 hPa corresponding to a double temperature inversion. For the September 7 flight (Plate 6b) the CLS shows the smoke also in higher levels, coexisting with the ozone layer.

The CLS observations are consistent with the backward trajectory patterns for the two periods. Smoke recirculation with possible urban/industrial contributions pertains to period 1, whereas period 2 corresponds to a more localized circulation pattern, indicating local, fresh smoke.

4. Conclusions

A correlation between tropospheric ozone concentration and aerosol optical thickness was observed at Cuiabá during SCAR-B. Higher ozone concentrations were observed for days with lower values of water vapor. Aerosol optical thickness showed a relationship with black carbon and precipitable water vapor based on measurements taken during a period when fresh smoke plumes were not dominant. These correlations are dependent on the dominant circulation pattern. All correlation graphs present a split pattern for high values of aerosol optical thickness (>0.5 , 0.669 μm channel). Comparing two high ozone and smoke episodes, it was observed that in the last week of August the increase of aerosol optical thickness corresponds to black carbon concentrations higher than observed for September 7 to 10. Conversely, the precipitable water vapor values are lower for the last week of August than for the

6 Day Backward Trajectories from Cuiabá

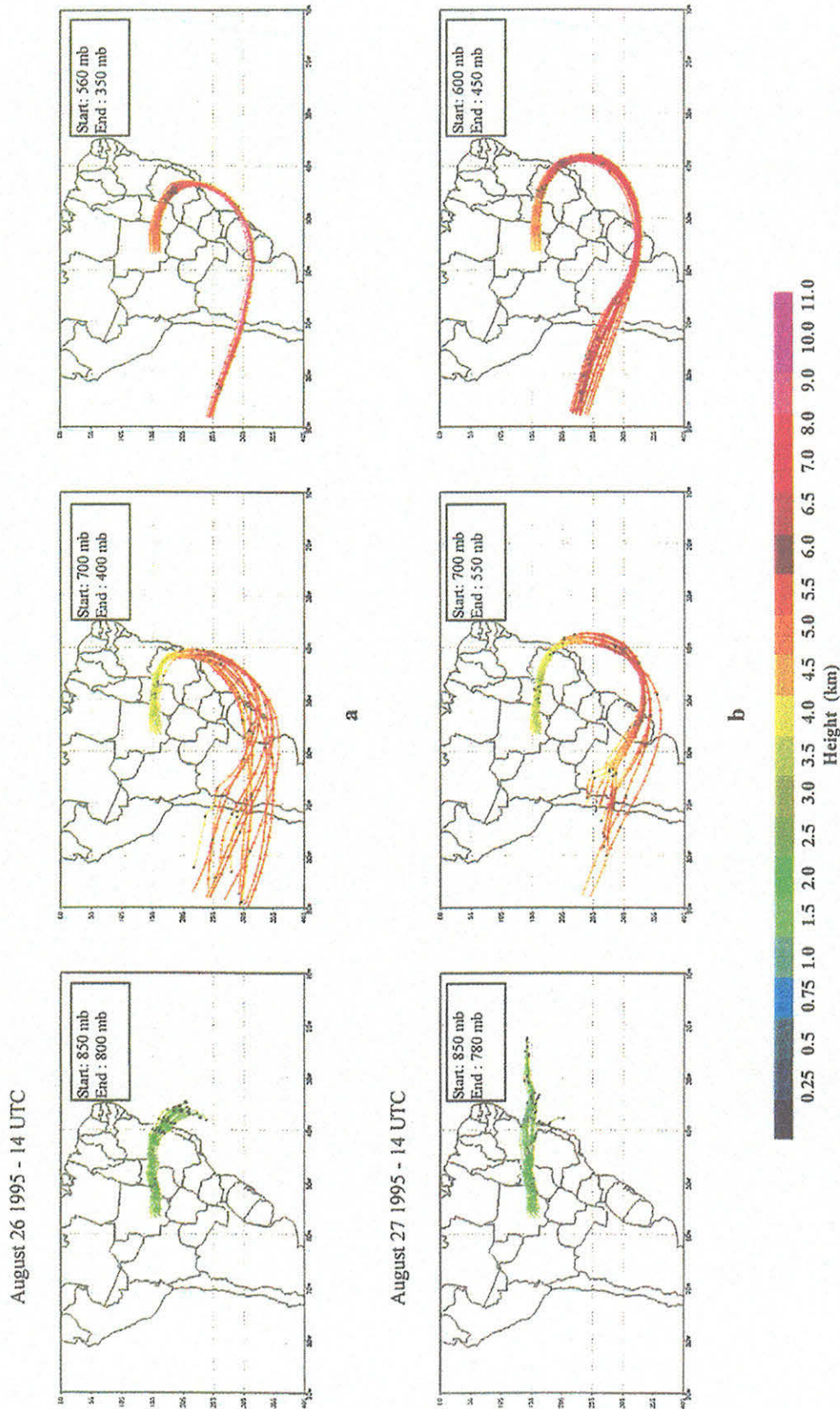
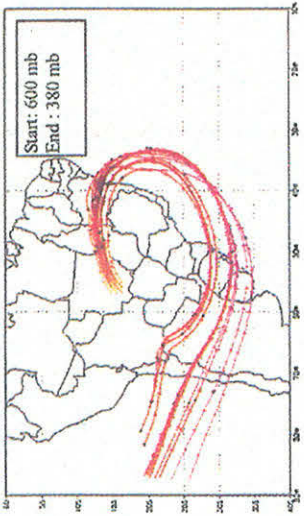
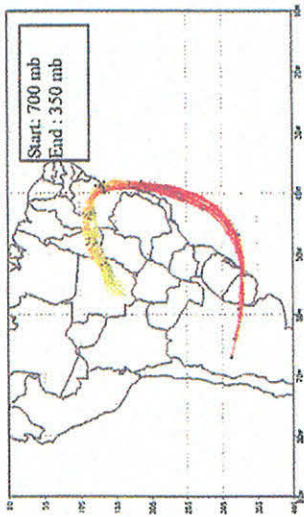


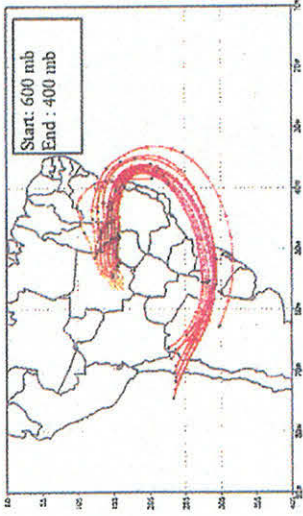
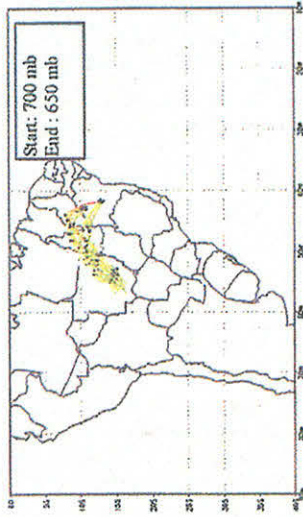
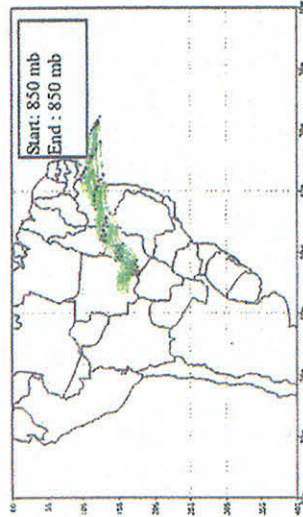
Plate 4. Six-day backward trajectories from Cuiabá starting on (a) August 26, (b) August 27, (c) August 29 and (d) August 31. Shaded arrows indicate the starting levels on the ozoneonde plots for these days (Figure 3). The trajectory starting dates and times are shown above the maps. The approximate trajectory start and end pressure levels are indicated.

6 Day Backward Trajectories from Cuiabá

August 29 1995 - 16 UTC



August 31 1995 - 14 UTC



c

d



Plate 4. (continued)

6 Day Backward Trajectories from Cuiabá

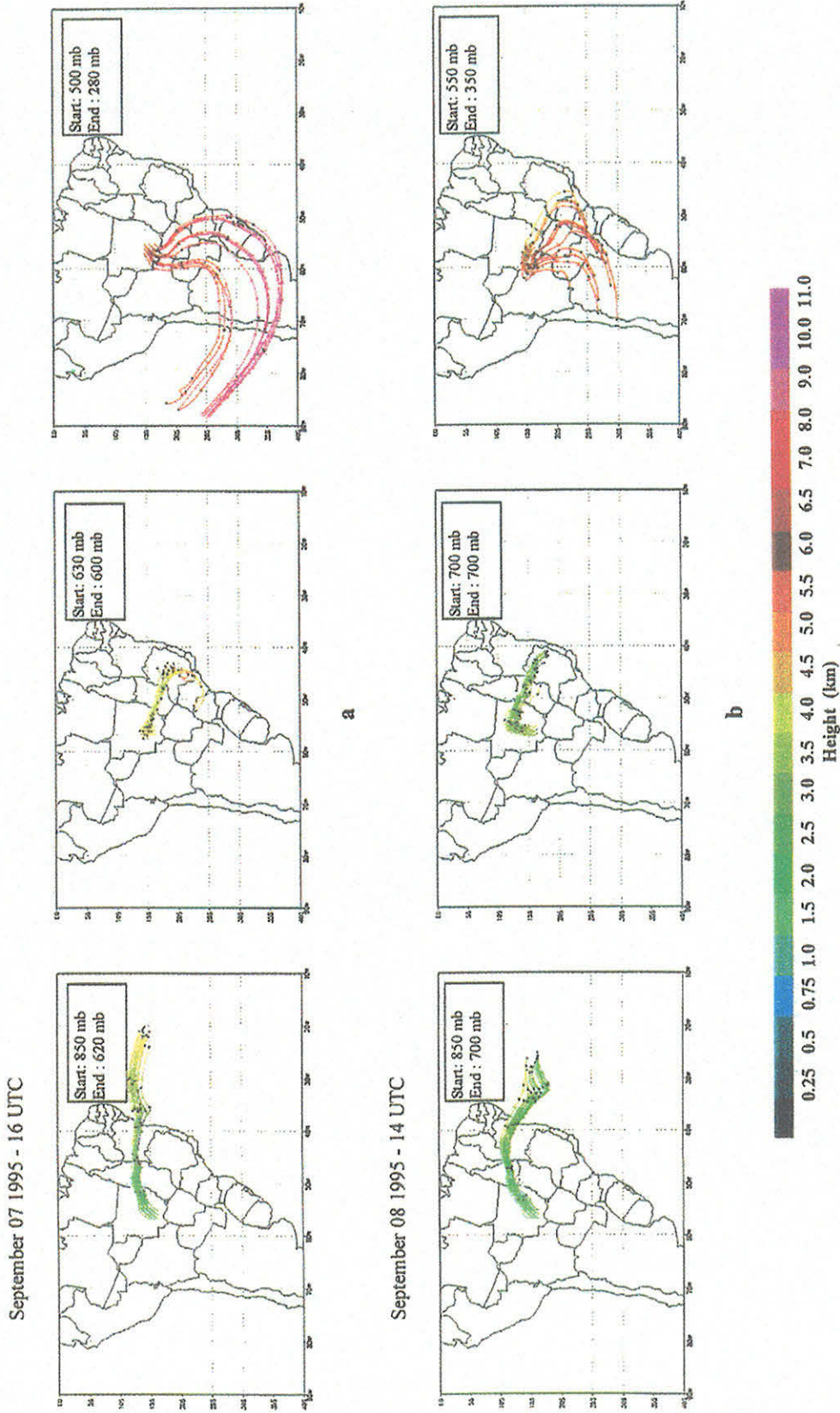
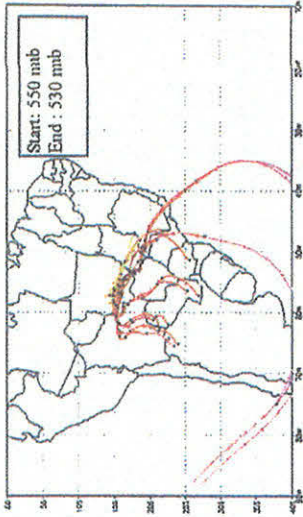
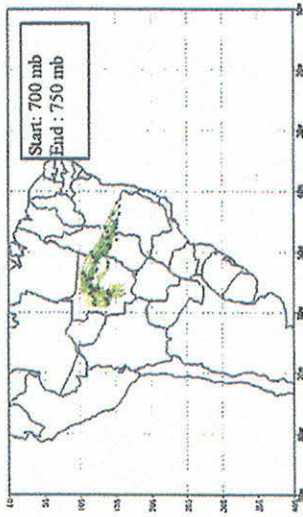
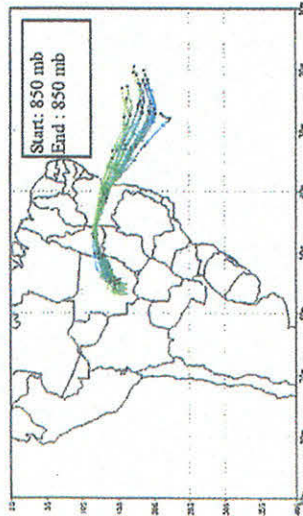


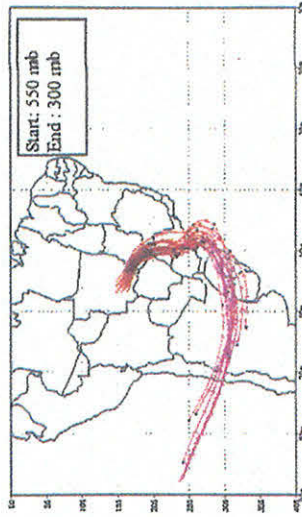
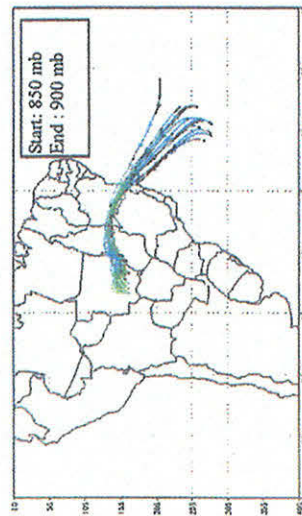
Plate 5. Six-day backward trajectories from Cuiabá starting on (a) September 7, (b) September 8, (c) September 9, and (d) September 10. Shaded arrows indicate the starting levels on the ozonesondes plots for these days (Figure 4). The trajectory starting dates and times are shown above the maps. The approximate trajectory start and end pressure levels are indicated.

6 Day Backward Trajectories from Cuiabá

September 09 1995 - 10 UTC



September 10 1995 - 10 UTC



c

d



Plate 5. (continued)

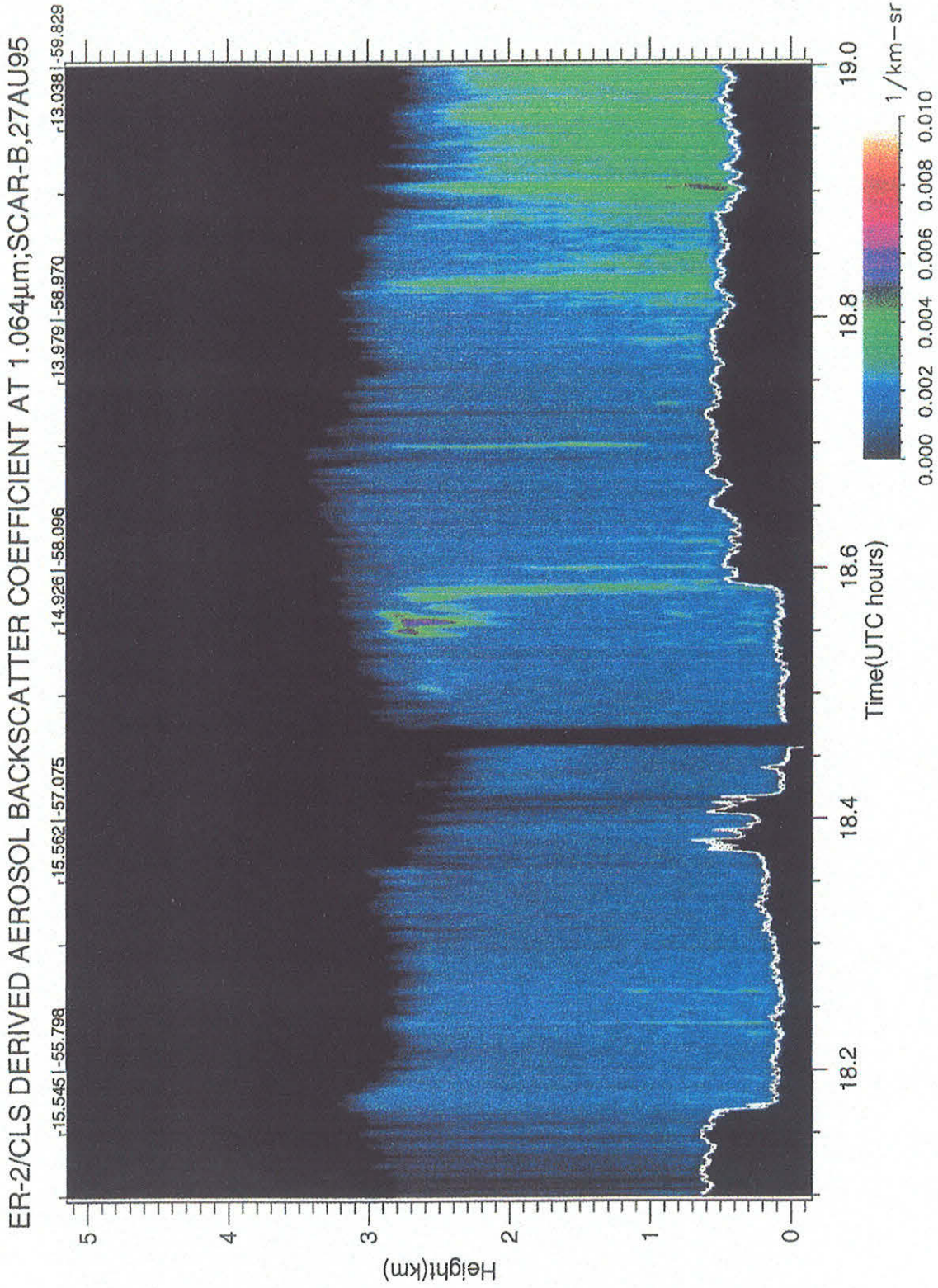


Plate 6a. Aerosol backscatter coefficient at 1.064 μm derived from Cloud Lidar System measurements made aboard ER-2 on flight 95165 on August 27 between Cuiabá and Vilhena. Latitude and longitude are given along the top, and measurement time is given along the bottom.

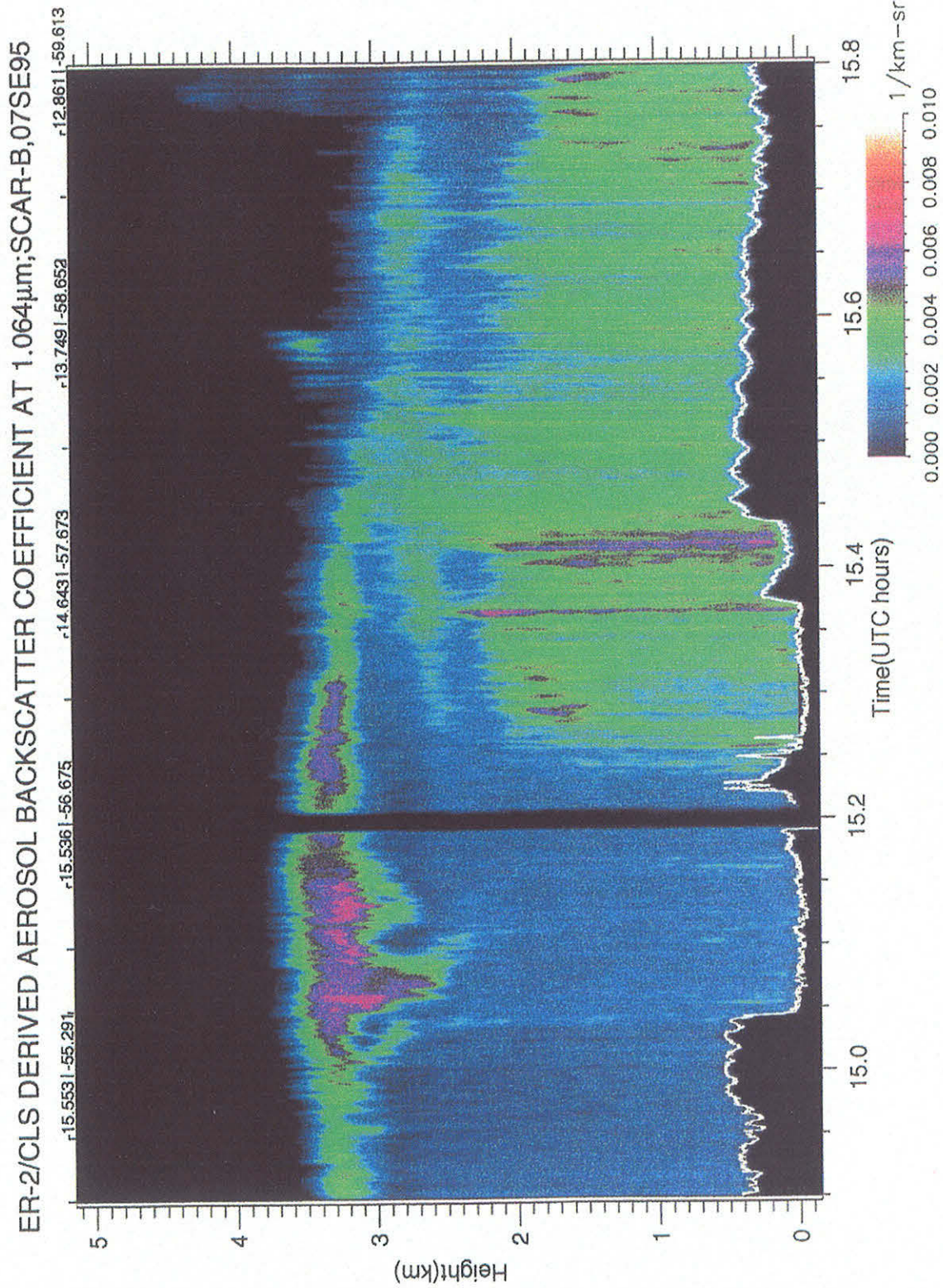


Plate 6b. Same as Plate 6a, except for flight 95169 on September 7.

September period. This is in agreement with the higher levels of ozone observed for the August period. Backward trajectory analyses from Cuiabá suggest that the ozone enhancement observed in the last week of August could be a superposition of two factors: (1) local emissions from biomass burning trapped in an inversion during a very high subsidence period and (2) recirculation of the regional plume that covers part of Brazil during the burning season plus a probable contribution of urban/industrial emissions. Comparison of the ER-2 CLS data and the ozone profile confirms the existence of an ozone layer not correlated with smoke, indicating the ozone long-distance transport during the August period.

The smoke outflow to the Atlantic Ocean and the occasional recirculation back to the continent is a cloud-related process, probably involving high precipitation rates and consequent smoke scavenging, including NO_x deposition (via the soluble nitric acid). Along the coast of Brazil at latitude 25°S, precipitation amounts >100 mm were observed during August 1995 [INPE, 1995]. The ozone layer formed by recirculation of old smoke and urban/industrial pollution, which is not correlated directly with aerosols, could be due to two different factors: (1) considerable ozone production while the smoke is still trapped in central Brazil and (2) a postconvective production of ozone from vertically transported NO produced by lightning [Thompson et al., 1996; Lelieveld and Crutzen, 1990, 1994].

Acknowledgments. We would like to acknowledge E. Prins, University of Wisconsin-Madison, for processing and analyzing the GOES 8 fire products and NCEP for the large-scale data. Aster, Inc. licenses the RAMS code. This research is part of the first author's Ph.D. dissertation, which has been supported by CNPq and CAPES-PICD program. Thanks to USRA for additional support during the first author's NASA Goddard visit.

References

- Andreae, M. O., Biomass burning: Its history, use and distribution and its impact on environmental quality and global climate, in *Global Biomass Burning: Atmospheric, Climatic and Biospheric Implications*, edited by J. S. Levine, pp. 3–21, MIT Press, Cambridge, Mass., 1991.
- Artaxo, P., F. Gerab, M. A. Yamasoe, and J. V. Martins, Fine mode aerosol composition in three long-term atmospheric monitoring sampling stations in the Amazon Basin, *J. Geophys. Res.*, **99**, 22,857–22,868, 1994.
- Artaxo, P., F. Gerab, and M. A. Yamasoe, Long term atmospheric aerosol characterization in the Amazon Basin, in *Environmental Geochemistry in the Tropics*, edited by J. Wasserman, E. V. Silva Filho, and R. Villas Boas, pp. 227–250, Springer-Verlag, New York, 1997.
- Browell, E. V., et al., Ozone and aerosol distribution and air mass characteristics over the South Atlantic Basin during the burning season, *J. Geophys. Res.*, **101**, 24,043–24,068, 1996.
- Crutzen, P. J., and J. G. Goldammer (Eds.), *Fire in the Environment: The Ecological, Atmospheric and Climate Importance of Vegetation Fires*, John Wiley, New York, 1993.
- Crutzen, P. J., L. E. Heidt, J. P. Krasnec, W. H. Pollock, and W. Seiler, Biomass burning as a source of the atmospheric gases CO , H_2 , N_2O , NO , CH_3Cl and COS , *Nature*, **282**, 253–256, 1979.
- Echalar, F., P. Artaxo, J. V. Martins, M. A. Yamasoe, F. Gerab, W. Maenhaut, and B. Holben, Long-term monitoring of atmospheric aerosols in the Amazon Basin: Source identification and apportionment, *J. Geophys. Res.*, **103**, 31,849–31,864, 1998.
- Fishman, J., J. M. Hoell Jr., R. D. Bendura, R. J. McNeal, and V. W. J. H. Kirchhoff, NASA GTE TRACE-A experiment (September–October 1992): Overview, *J. Geophys. Res.*, **101**, 23,865–23,879, 1996.
- Freitas, S. R., K. M. Longo, M. A. F. Silva Dias, and P. Artaxo, Numerical modeling of air mass trajectories from the burning areas of the Amazon Basin, *An. Acad. Bras. Cienc.*, **68**, suppl. 1, 193–206, 1996.
- Gleason, J., N. C. Hsu, and O. Torres, Biomass-burning smoke measured using backscattered ultraviolet radiation: SCAR-B and Brazilian smoke interannual variability, *J. Geophys. Res.*, **103**, 31,969–31,978, 1998.
- Instituto Nacional de Pesquisas Espaciais (INPE), *Climanálise: Boletim de Monitoramento e Análise Climática*, Vol. 10, no. 8, São Jose dos Campos, Sao Paulo, Brazil, Aug. 1995.
- Jacob, D. J., et al., Origin of ozone and NO_x in the tropical troposphere: A photochemical analysis of aircraft observations over the South Atlantic Basin, *J. Geophys. Res.*, **101**, 24,235–24,250, 1996.
- Jenkins, G. S., K. Mohr, V. R. Morris, and O. Arino, The role of convective processes over the Zaire-Congo Basin to the Southern Hemispheric ozone maximum, *J. Geophys. Res.*, **102**, 18,963–18,980, 1997.
- Kaufman, Y. J., Remote sensing of direct and indirect aerosol forcing, in *Aerosol Forcing of Climate*, edited by R. J. Charlson and J. Heintzenberg, pp. 297–332, John Wiley, New York, 1995.
- Kaufman, Y. J., and R. S. Fraser, Light extinction by aerosols during summer air pollution, *J. Clim. Appl. Meteorol.*, **22**, 1694–1706, 1983.
- Kaufman, Y. J., A. Setzer, D. Ward, D. Tanre, B. N. Holben, P. Menzel, M. C. Pereira, and R. Rasmussen, Biomass-Burning Airborne and Spaceborne Experiment in the Amazonas (BASE-A), *J. Geophys. Res.*, **97**, 14,581–14,599, 1992.
- Kaufman, Y. J., et al., Smoke, Clouds, and Radiation–Brazil (SCAR-B) experiment, *J. Geophys. Res.*, **103**, 31,783–31,808, 1998.
- Kirchhoff, V. W. J. H., Y. Nakamura, E. V. A. Marinho, and M. M. Mariano, Excess ozone production in Amazon from large scale burning, *J. Atmos. Terr. Phys.*, **54**, 583–588, 1992.
- Kirchhoff, V. W. J. H., J. R. Alves, F. R. da Silva, and J. Fishman, Observations of ozone concentrations in the Brazilian cerrado during the TRACE-A field expedition, *J. Geophys. Res.*, **101**, 24,029–24,042, 1996a.
- Kirchhoff, V. W. J. H., P. C. Alvalá, D. L. Mauzerall, A. M. Thompson, and D. P. McNamara, Ozoneonde observations in the cerrado troposphere during SCAR-B, in *SCAR-B Proceedings*, edited by V. W. J. H. Kirchhoff, pp. 113–116, Trans Tech, Klausthal-Zellerfeld, Germany, 1996b.
- Kley, D., P. J. Crutzen, H. G. J. Smit, H. Vomel, S. J. Oltmans, H. Grassl, and V. Ramanathan, Observations of near-zero ozone concentrations over the convective Pacific: Effects on air chemistry, *Science*, **277**, 230–233, 1996.
- Lelieveld, J., and P. J. Crutzen, Influences of cloud, photochemical process on tropospheric ozone, *Nature*, **343**, 227–233, 1990.
- Lelieveld, J., and P. J. Crutzen, Role of deep cloud convection in the ozone budget of the troposphere, *Science*, **264**, 1759–1761, 1994.
- Nobre, C. A., L. F. Mattos, C. P. Dereczynski, T. A. Tarazova, and I. V. Troshnikov, Overview of atmospheric conditions during the Smoke, Clouds, and Radiation–Brazil (SCAR-B) field experiment, *J. Geophys. Res.*, **103**, 31,809–31,820, 1998.
- Pickering, K. E., et al., Convective transport of biomass-burning emissions over Brazil during TRACE-A, *J. Geophys. Res.*, **101**, 23,993–24,012, 1996.
- Pielke, R. A., et al., A comprehensive meteorological modeling system—RAMS, *Meteorol. Atmos. Phys.*, **49**, 69–91, 1992.
- Prins, E., J. M. Feltz, W. P. Menzel, and D. E. Ward, An overview of GOES 8 diurnal fire and smoke results for SCAR-B and 1995 fire season in South America, *J. Geophys. Res.*, **103**, 31,821–31,835, 1998.
- Reid, J. S., P. Hobbs, R. E. Weiss, J. V. Martins, and C. Liousse, Comparisons of techniques for measuring shortwave absorption and black carbon content of aerosols from biomass burning in Brazil, *J. Geophys. Res.*, **103**, 32,031–32,040, 1998.
- Silva Dias, M. A. F., and R. N. Ferreira, Application of a linear spectral model to the study of Amazonian squall lines, *J. Geophys. Res.*, **97**, 20,405–20,419, 1992.
- Spinhirne, J. D., M. Z. Hanzen, and L. O. Caudill, Cloud top remote sensing by airborne lidar, *Appl. Opt.*, **22**, 1564–1571, 1982.
- Stull, R. B., *An Introduction to Boundary Layer Meteorology*, *Atmos. Sci. Lib.*, Kluwer Acad., Norwell, Mass., 1988.
- Thompson, A. M., Oxidants in the unpolluted marine atmosphere, in *Environmental Oxidants*, edited by J. O. Nriagu and M. S. Simmons, pp. 31–61, John Wiley, New York, 1994.
- Thompson, A. M., K. E. Pickering, D. P. McNamara, M. R. Schoeberl, R. D. Hudson, J. H. Kim, E. V. Browell, V. W. J. H. Kirchhoff, and D. Nganga, Where did tropospheric ozone over southern Africa and the tropical Atlantic come from in October 1992? Insights from

- TOMS, GTE/TRACE-A, and SAFARI-92, *J. Geophys. Res.*, *101*, 24,251–24,278, 1996.
- Thompson A. M., W. K. Tao, K. E. Pickering, J. R. Scala, and J. Simpson, Tropical deep convection and ozone formation, *Bull. Am. Meteorol. Soc.*, *78*, 1043–1054, 1997.
- Tripoli, G. J., and W. R. Cotton, The Colorado State University three-dimensional cloud/mesoscale model, I, General theoretical framework and sensitive experiments, *J. Rech. Atmos.*, *16*, 185–219, 1982.
- Wang, Y., W.-K. Tao, K. E. Pickering, A. M. Thompson, J. S. Kain, R. F. Adler, J. Simpson, P. R. Kechn, and G. S. Lai, Mesoscale model simulations of TRACE-A and Preliminary Regional Experiment for Storm-Scale Operational Research Meteorology convective systems and associated tracer transport, *J. Geophys. Res.*, *101*, 24,013–24,027, 1996.
- Matao, travessa R, S/N, Edificio Basilio Jafet, CEP 05508-900, São Paulo-SP, Brazil. (artaxo@if.usp.br; klongo@if.usp.br)
- W. Hart, L. A. Remer, J. D. Spinhirne, and A. M. Thompson, NASA Goddard Space Flight Center, Greenbelt, MD 20771. (billhart@vir1.gsfc.nasa.gov; remer@climate.gsfc.nasa.gov; james.spinhirne@gsfc.nasa.gov; thompson@gsfc.nasa.gov)
- V. W. J. H. Kirchhoff, Instituto Nacional de Pesquisas Espaciais, Caixa Postal 515, CEP 12201-970, São Jose dos Campos-SP, Brazil. (kir@spd.inpe.br)
- M. A. F. Silva Dias, Departamento de Ciências Atmosféricas, Instituto Astronômico e Geofísico, Universidade de São Paulo, Caixa Postal 9638, CEP 10165, São Paulo-SP, Brazil.
- P. Artaxo, S. R. de Freitas, K. M. Longo, and M. A. Yamasoe, Instituto de Física, Universidade de São Paulo, São Paulo, Rua do

(Received September 17, 1997; revised October 27, 1998; accepted December 11, 1998.)

Apêndice D

Artigo: “Large-scale source apportionment in Amazonia”

Artaxo P., E. T. Fernandes, J. V. Martins, M. A. Yamasoe, P. V. Hobbs, W.

Maenhaut, *K. M. Longo*, A. Castanho.

Journal of Geophysical Research, 103, D24, 31837-31847, 1998.

Large-scale aerosol source apportionment in Amazonia

Paulo Artaxo,¹ Eduardo T. Fernandes,¹ José V. Martins,¹ Márcia A. Yamasoe,¹
Peter V. Hobbs,² Willy Maenhaut,³ Karla M. Longo,¹ and Andrea Castanho¹

Abstract. Aerosol particles were collected aboard two Brazilian Bandeirante EMB 110 planes, and the University of Washington Convair C-131A aircraft during the Smoke, Clouds, and Radiation–Brazil (SCAR-B) field project in the Amazon Basin in August and September 1995. Aerosols were collected on Nuclepore and Teflon filters. Aerosol size distribution was measured with a MOUDI cascade impactor. Sampling was performed mostly over areas heavily influenced by biomass burning smoke. Particle-induced X ray emission (PIXE) was used to measure concentrations of up to 20 elements (Al, Si, P, S, Cl, K, Ca, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Ni, Cu, Zn, Br, Rb, Sr, Zr, and Pb). Black carbon (BC) and gravimetric mass analysis were also performed. Instrumental neutron activation analysis (INAA) determined the concentrations of about 15 elements on the Teflon filters. Electron probe X ray microanalysis (EPMA) was used to analyze individual aerosol particles. The average aerosol mass concentration was $105 \mu\text{g m}^{-3}$, with a maximum of $297 \mu\text{g m}^{-3}$. Black carbon (BC) averaged $5.49 \mu\text{g m}^{-3}$, or 1–7% of the aerosol mass load. Five aerosol components were revealed by absolute principal factor analysis: (1) a biomass burning component (responsible for 54% of the aerosol mass and associated with BC, K, Cl, Zn, I, S, Br, Rb, aerosol mass concentration, and other elements); (2) a soil dust aerosol component (15.6% of the aerosol mass); (3) a natural biogenic component (18.7% of the aerosol mass and associated with P, K, S, Ca, Sr, Mg, Mn, Cu and Zn); (4) a second soil dust (5.7% of the aerosol mass and enriched in Si, Ti, and Fe); and (5) a NaCl aerosol component (5.9% of the aerosol mass with Na, Cl, Br, and iodine). Electron microscopy analysis of individual aerosol particles confirmed these five aerosol types. Organic material dominated the aerosol mass and the number concentration of airborne particles. Aerosol size distributions show that the fine mode accounts for 78% of the aerosol mass, centered at $0.33 \mu\text{m}$ aerodynamic diameter. The coarse mode accounts for 22% of the mass, centered at about $3.2 \mu\text{m}$. Black carbon size distributions show a consistent picture, with a mass median diameter centered at about $0.175\text{--}0.33 \mu\text{m}$ aerodynamic diameter. This study suggests that for modeling the optical properties of aerosol in the Amazon Basin, it is essential to use a model that includes the optical and physical properties of at least two aerosol components other than the biomass burning aerosol, namely, natural biogenic aerosol and soil dust.

1. Introduction

Rapid deforestation in tropical regions has the potential to change atmospheric composition, as well as climate, over a large portion of the equatorial region [Crutzen and Andreae, 1990; Crutzen and Goldammer, 1993; Gash et al., 1996]. More than 80% of the worldwide emissions from biomass burning originate in the tropics. The high rate of tropical biomass burning in the last decade is mainly a result of burning of savanna in Africa and deforestation in the Amazon Basin [Setzer and Pereira, 1991]. Estimates of total biomass consumed on a global basis range from 2 to 10 Pg (1 petagram = 10^{15} g) per year [Crutzen and Andreae, 1990]. In terms of total particulate matter (TPM), emissions are around 104 Tg (1 tera-

gram = 10^{12} g) per year [Levine, 1990]. For particulate matter in the fine mode (FPM, $d_p < 2.0 \mu\text{m}$), emissions are estimated as 49 Tg yr^{-1} , which accounts for about 7% of the global emissions of fine-mode aerosol. For elemental carbon, the emission of 19 Tg yr^{-1} could account for a high fraction (86%) of the total anthropogenic emissions [Levine, 1990]. These emissions could have regionally significant direct radiative forcing [Hobbs et al., 1997; Holben et al., 1996].

The emissions of gases during biomass burning affect the global concentrations of many gases, including CO, CO₂, CH₄, CH₃Cl, N₂O, COS [Crutzen et al., 1979]. Much less studied are the effects of aerosol emissions. The composition and size distribution of aerosol particles were measured in smoke from forest fires in Rondonia, Brazil where large emissions of potassium, sulfur, silicon, zinc, and organic matter were reported [Artaxo et al., 1993a]. Elemental carbon associated with potassium was identified as a tracer for biomass burning plumes in remote oceanic areas [Andreae, 1983]. The fluxes of trace elements emitted by biomass burning can be significant on a global scale [Echalar et al., 1995]. Many aerosol particles emitted in tropical biomass burning are cloud condensation nuclei (CCN) and can therefore affect the concentrations and sizes of cloud droplets [Hobbs and Radke, 1969; Rogers et al., 1992;

¹Instituto de Física, Universidade de São Paulo, São Paulo, Brazil.

²Department of Atmospheric Sciences, University of Washington, Seattle.

³Institute for Nuclear Sciences, University of Ghent, Ghent, Belgium.

Copyright 1998 by the American Geophysical Union.

Paper number 98JD02346.

0148-0227/98/98JD-02346\$09.00

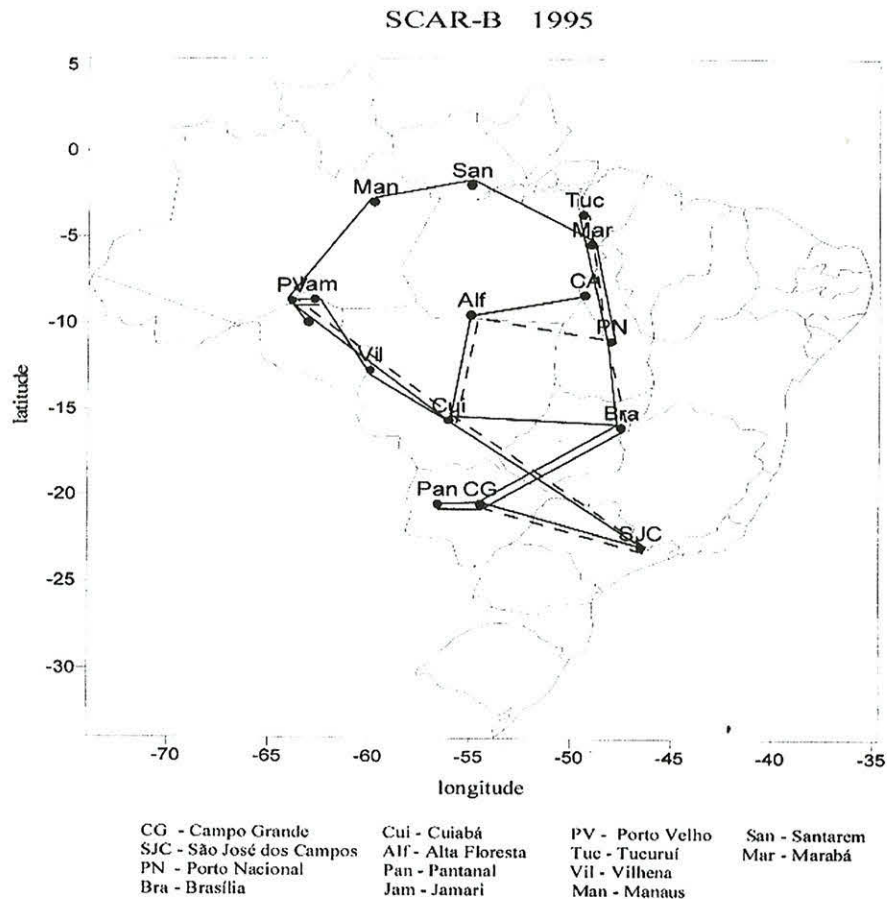


Figure 1. Map of the sampled areas with aircraft flight tracks. Also shown are reference locations codes.

Kaufman and Fraser, 1997]. Therefore the potential exists for changes in precipitation patterns and indirect radiative forcing due to emissions from biomass burning [Kaufman and Tanré, 1994; Kaufman *et al.*, this issue].

Forest vegetation is the principal global source of atmospheric organic particles [Cachier *et al.*, 1985], and in a tropical forest, natural vegetation plays a major role in airborne particle concentrations [Andreae and Crutzen, 1997]. Only a few studies of biogenic aerosols from vegetation in tropical rain forests have been undertaken [Artaxo and Orsini, 1986; Artaxo and Maenhaut, 1990; Artaxo *et al.*, 1988, 1990, 1993b, 1994; Maenhaut *et al.*, 1996a, b]. The natural biogenic aerosols consist of many different types of particles, including pollen, spores, bacteria, algae, protozoa, fungi, fragments of leaves, excrement, and fragments of insects. In addition, a significant fraction of the aerosol is comprised of secondary aerosol, formed by gas-to-particle conversion of organic and sulfur-related biogenic gases. These biogenic particles can be submicrometer in size. Bacteria in forested areas were found in the size range of 0.5 to 2.5 μm [Jaenicke and Mathias-Maser, 1992]. Biological activity of microorganisms on leaf surfaces and forest litter results in airborne particles. Windblown pollens certainly contribute to coarse particles in forested areas. Particulate material containing Zn, Pb, and Cu are produced by higher plants [Beauford *et al.*, 1975, 1977]. The biogenically related elements (e.g., K, P, S, Zn, and Rb) are essential to superior plants. They are present in the fluids circulating in the plant and are released from the leaves to the atmosphere [Nemeruyk, 1970].

The objectives of the present study were to measure aerosol

composition and size distributions over a large area of the Amazon Basin during the biomass burning season and to carry out a quantitative source apportionment study. The use of aircraft for collecting air samples, and the employment of several analytical techniques such as PIXE, INAA, and electron probe X ray microanalysis, allowed a comprehensive study of aerosol characteristics on the large scale in the Amazon Basin.

2. Aerosol Collection and Chemical Analysis

Aerosol particles were collected from three aircraft in various locations in Brazil from August 17 to September 20, 1995, as part of SCAR-B. The flights covered most of the regions of Brazil affected by biomass burning. Two Brazilian Bandeirante EMB 110 aircraft, and the University of Washington Convair C-131A, were used. The Bandeirante is a twin-engine turbo-prop instrumented aircraft that can fly up to 4–5 km altitude and has a range of about 500 km. Most of the samples were collected aboard the INPE Bandeirante aircraft, but some samples were collected on the FUNCEME (Fundação Cearense de Meteorologia e Recursos Hídricos) Bandeirante aircraft. Isokinetic inlets were installed in ports on both aircraft and were used to collect aerosol particles on Nuclepore and Teflon filters. On the University of Washington's C131A aircraft, aerosol samples were collected continuously from an isokinetic inlet and also from a grab-bag system for aerosols from individual smoke plumes. Typical sampling flow was 10 L min^{-1} for the Nuclepore filter and 18 L min^{-1} for the Teflon samples. The flow rate was measured with precision mass flowmeters. A multi-orifice uniform deposit impactor (MOUDI)

on the C-131A was used to collect size-segregated aerosol samples. The eight-stages of the MOUDI cascade impactor have d_{50} size cuts at 18, 3.2, 1.8, 1.0, 0.56, 0.33, 0.175, and 0.093 μm equivalent aerodynamic diameter. A Teflon after-filter collected all particles smaller than 0.093 μm . The MOUDI has a flow rate of 28 L min^{-1} . The data on the first stage of the MOUDI cascade impactor should be viewed with caution because of possible aircraft nonisokinetic sampling for such large particles. Figure 1 shows the flight tracks that covered most of the areas where biomass burning is a significant source of aerosols during the dry season in the Amazon Basin.

Elemental concentrations on the Nuclepore filters were measured with the particle-induced X ray emission (PIXE) [Johansson and Campbell, 1988] method. It was possible to determine the concentrations of up to 20 elements (Al, Si, P, S, Cl, K, Ca, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Ni, Cu, Zn, Br, Rb, Sr, Zr, and Pb). A dedicated 5SDH tandem Pelletron accelerator facility, LAMFI (Laboratório de Análise de Materiais por Feixes Iônicos), from the University of São Paulo was used for the PIXE analysis [Artaxo and Orsini, 1987]. Detection limits are typically 5 ng m^{-3} for elements in the range $13 < Z < 22$ and 0.4 ng m^{-3} for elements with $Z > 23$. The precision of the elemental concentration measurements is typically less than 10%, with 20% for elements with concentration near the detection limit. The aerosol mass concentration was obtained through gravimetric analysis of the Nuclepore and Teflon filters. The filters were weighed before and after sampling in an electronic microbalance with 1 μg sensitivity. Before weighing, the filters were equilibrated for at least 24 hours at 50% relative humidity and 20°C temperature. Electrostatic charges are neutralized by means of ^{210}Po radioactive sources. Detection limit for the aerosol mass concentration is about 0.3 $\mu\text{g m}^{-3}$. Precision is estimated at close to 15%. Black carbon (BC) concentration was measured using a reflectance technique photometer [Andreae, 1983]. A complete description of the method and comparison with other techniques for black carbon determination can be found in the work of Martins *et al.* [this issue]. The INAA analysis procedure is described in detail by Maenhaut *et al.* [1979]. A total of 66 pairs of Nuclepore and Teflon aerosol samples were collected on the three aircraft; and 43 of these were analyzed by PIXE and INAA. Each aerosol sample was collected for a period of 3–4 hours, representing averages of atmospheric concentrations over large areas (100–800 km flight paths).

Individual particle analysis was performed using electron probe X ray microanalysis (EPMA) [Van Grieken *et al.*, 1988, 1991]. The Nuclepore filter loaded with aerosol particles was coated with a thin carbon film and analyzed in a JEOL JSM-T331A scanning electron microscope. The elemental composition was analyzed in a Tracor Noram system, using ZAF correction. A total of 120 particles were analyzed. Cluster analysis of the individual particle data was performed using the IDAS software package [Van Grieken *et al.*, 1988].

3. Absolute Principal Factor Analysis

To separate the different aerosol components, the absolute principal factor analysis (APFA) was used [Thurston and Spengler, 1985; Hopke, 1985]. APFA can provide a quantitative elemental source profile, instead of just a qualitative factor loading matrix as in traditional factor analysis. The absolute elemental source profiles help in the identification of the factors and can be used to quantitatively compare the factor

composition with assumed aerosol sources. The APFA provides the elemental mass contribution of each identified component by calculating the absolute principal factor scores (APFS) for each sample [Artaxo *et al.*, 1988, 1990]. The elemental concentrations are subsequently regressed on the APFS to obtain the contribution of each element for each component. The source profiles thus obtained can be compared with values from the literature to gain information on enrichment and atmospheric chemistry processes [Hopke, 1985]. The measured aerosol mass concentration can be regressed on the APFS to obtain the aerosol total mass source apportionment.

4. Results and Discussions

The aerosol samples represent collection times of 3–4 hours each, and they average atmospheric concentrations over large areas. They do not represent concentrations in individual smoke plumes. Table 1 shows the average, standard deviation, minimum and maximum concentrations of various elements measured in SCAR-B. The sum of the trace elements accounts for 11 to 21% of the aerosol mass. The remaining mass must be organic material, black carbon, water, and other components. The average ratio of black carbon to aerosol mass is 5%, increasing to 8% in areas heavily affected by biomass burning.

For some elements, a wide range of concentrations was observed. Sulphur was observed in concentrations of 59 ng

Table 1. Average, Standard Deviation, Minimum, and Maximum Values of Aerosol Trace Element Concentrations in Airborne Samples During SCAR-B

Element	Mean, ng m^{-3}	Standard Deviation	N*	Minimum, ng m^{-3}	Maximum, ng m^{-3}
Na	95.4	59.9	43	30.0	270
Mg	659	385	43	196	2356
Al	2292	1808	43	350	7297
Si	3126	2104	43	713	8673
P	140	136	43	3.50	559
S	1198	900	43	59.0	4333
Cl	222	229	43	27.6	1291
K	1581	1076	43	137.3	5581
Ca	1251	1134	43	36.2	5722
Ti	121	123	43	9.29	533
V	3.67	3.43	43	0.54	14.2
Cr	5.14	1.86	18	2.29	8.16
Mn	67.7	64.4	43	10.8	322
Fe	1132	985	43	76.9	4327
Cu	2.90	1.71	43	0.64	8.77
Zn	10.7	6.3	43	1.92	27.7
Rb	8.82	5.32	43	1.55	25.9
Sr	16.4	14.2	43	1.44	59.5
Br	13.1	8.7	43	2.40	36.9
I	3.83	2.11	43	0.64	9.18
Ga	0.49	0.34	43	0.01	1.46
La	0.78	0.61	43	0.19	2.97
Sm	0.11	0.092	43	0.003	0.42
Th	0.36	0.23	43	0.045	1.17
Sc	0.36	0.35	43	0.041	1.47
As	0.21	0.16	31	0.041	0.85
Sb	0.12	0.06	27	0.025	0.27
Zr	6.10	3.69	24	2.08	15.7
Mass [†]	107	61	43	8.05	297
BC [†]	5.49	3.92	43	0.23	17.5

*N is the number of samples where the element was observed above its detection limit.

†Aerosol mass and black carbon (BC) are expressed in $\mu\text{g m}^{-3}$.

Aerosol Mass Concentration - SCAR-B

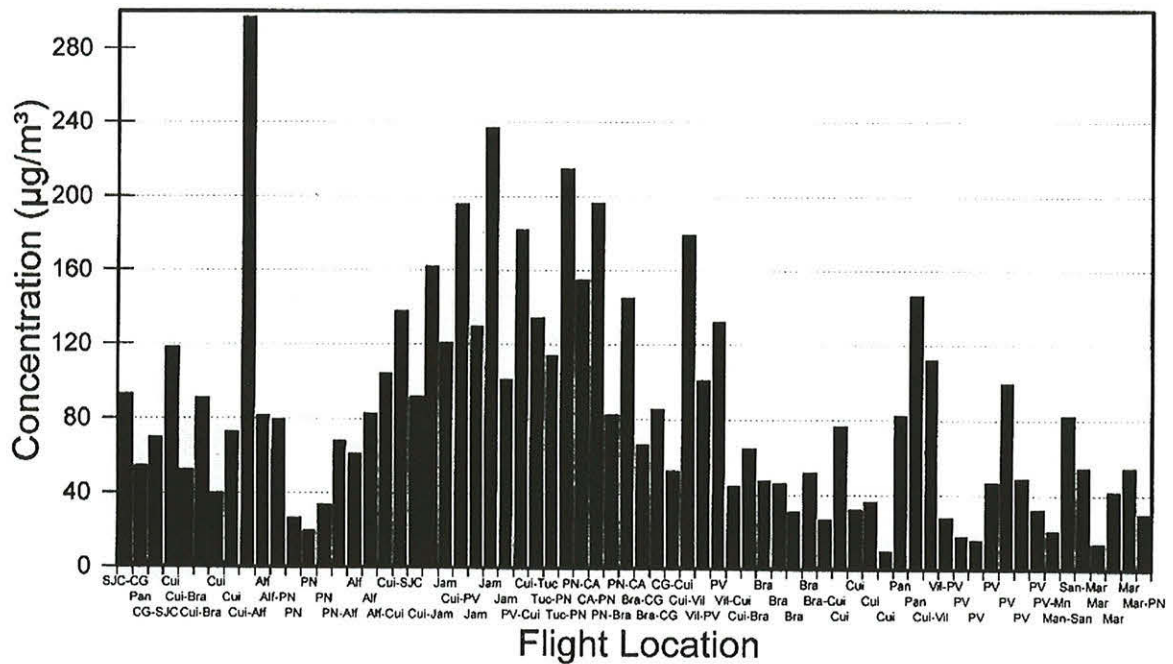


Figure 2. Aerosol mass concentrations observed in each location at the SCAR-B experiment. Maximum concentrations were observed in Rondonia and Alta Floresta regions.

m^{-3} in areas not severely affected by biomass burning and 4330 ng m^{-3} in areas with heavy smoke. Average aerosol mass concentrations up to $297 \mu\text{g m}^{-3}$ were observed; in areas not heavily affected by biomass burning, the average aerosol mass concentration was about $10\text{--}20 \mu\text{g m}^{-3}$. The latter range of values is compatible with aerosol mass concentrations measured in the wet season in Brazil, when no biomass burning occurs [Artaxo et al., 1994, 1997]. The elemental compositions

observed are compatible with ground-based measurements in Cuiabá during the dry season [Maenhaut et al., 1996a]. Very high black carbon concentrations up to $17.5 \mu\text{g m}^{-3}$ were observed; these values are consistent with the absorption measurements in SCAR-B [Martins et al., this issue; Reid et al., this issue].

Figure 2 shows the individual aerosol mass concentrations observed in SCAR-B. Higher concentrations were observed in

Black Carbon Concentration - SCAR-B

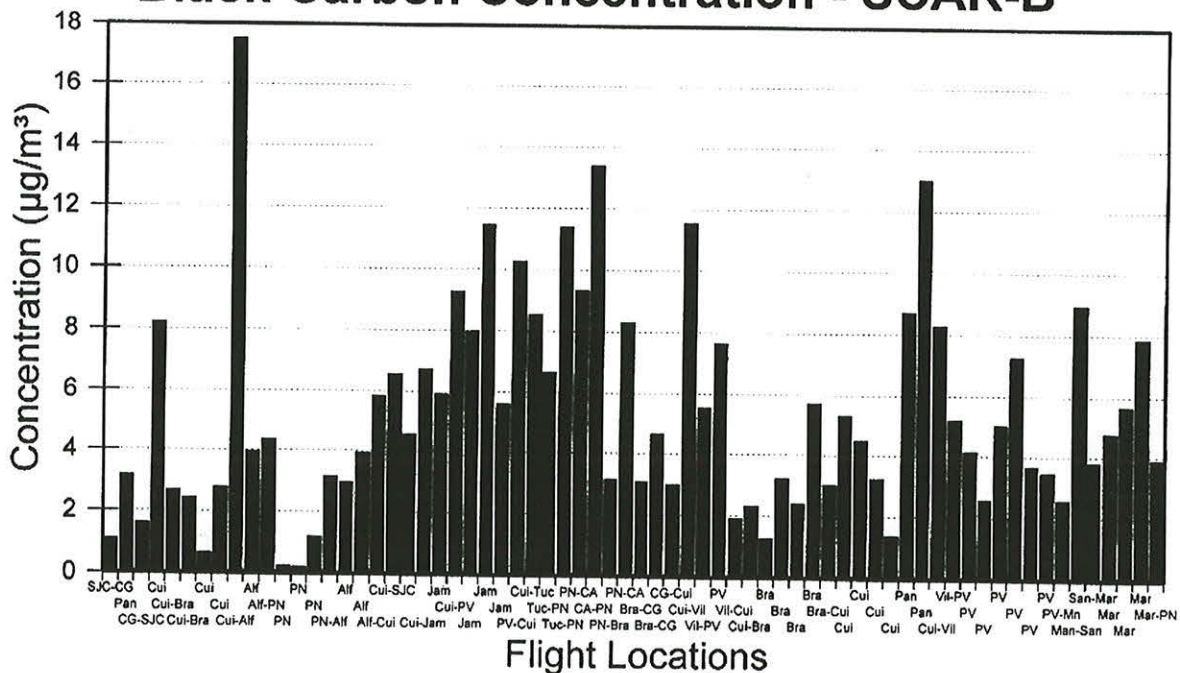


Figure 3. Black carbon concentration observed in each location at the SCAR-B experiment.

Table 2. VARIMAX-Rotated Factor Loading Matrix for Aircraft Aerosol Samples Collected in SCAR-B Experiment

	Factor 1 Soil Dust	Factor 2 Biomass Burning	Factor 3 Natural Biogenic	Factor 4 Soil 2	Factor 5 NaCl	Communalities
Sm	0.97	-0.01	0.06	-0.02	0.09	0.95
Sc	0.97	-0.04	-0.03	0.13	-0.02	0.96
Al	0.96	0.07	0.00	0.20	-0.02	0.97
La	0.95	0.03	0.15	-0.09	0.08	0.94
Th	0.94	0.10	0.01	0.08	-0.11	0.91
V	0.92	-0.05	-0.01	0.13	-0.02	0.87
Ga	0.87	0.22	0.17	0.08	0.25	0.90
Ti	0.74	0.12	0.08	0.63	0.00	0.97
Fe	0.72	0.14	0.01	0.64	-0.02	0.96
BC	0.08	0.91	0.30	0.09	0.10	0.94
S	-0.03	0.90	0.28	0.19	0.01	0.93
I	-0.02	0.87	0.29	0.06	0.32	0.95
Mass	0.28	0.86	0.23	0.05	0.16	0.90
Zn	0.13	0.78	0.51	0.19	0.04	0.92
Br	-0.15	0.75	0.46	-0.09	0.31	0.90
K	-0.03	0.72	0.62	-0.04	0.16	0.93
Rb	0.21	0.67	0.39	0.45	-0.24	0.91
Ca	-0.03	0.30	0.91	0.05	0.02	0.92
Sr	-0.05	0.27	0.87	0.10	-0.16	0.87
P	0.02	0.35	0.86	0.21	-0.00	0.91
Mg	0.25	0.27	0.83	-0.11	0.24	0.89
Mn	0.14	0.35	0.82	0.16	0.13	0.86
Cl	0.01	0.50	0.66	0.01	0.42	0.86
Cu	0.26	0.39	0.59	0.47	-0.07	0.79
Si	0.38	0.31	0.48	0.61	0.25	0.91
Na	0.09	0.37	0.08	0.03	0.86	0.89
Var.	7.7	6.5	6.1	1.9	1.5	

the Rondonia and Alta Floresta areas, where intense deforestation is going on. Low values in Figure 2 of about $10\text{--}20\ \mu\text{g m}^{-3}$ are representative of regions with little impact of smoke, affected mostly by natural biogenic aerosol particles emitted by the forest.

The black carbon concentration for each airborne sample is shown in Figure 3. BC values varied from a low $0.20\ \mu\text{g m}^{-3}$ in areas not heavily affected by biomass burning to values up to $17\ \mu\text{g m}^{-3}$ in areas heavily affected by smoke. Robock [1988] has documented noticeable surface cooling with the presence of even lower levels of forest fire smoke. In general, BC represents 5–10% of the aerosol mass concentration, depending

on the impact of the different aerosol sources, and the age of the smoke [Martins *et al.*, this issue; Reid *et al.*, this issue].

The variability in the concentrations of trace elements, together with the mass and the BC concentrations, were used in a factor analysis model to study the relationship between the observed variables. Table 2 shows the VARIMAX-rotated factor loading matrix. Column 7 in Table 2 shows the communalities of the factor analysis that expresses the percentage of each element variability that was explained by the factor model. The last line in Table 2 gives the variance explained by each retained factor. The first factor has high loadings for Al, Sm, Sc, La, Th, V, Ga, Ti, and Fe and represents soil and dust aerosol particles. The second component is associated with the biomass burning aerosol, with high loadings for BC, S, I, Br, Zn, K, Rb, Cl, and aerosol mass, mainly representing the high organic aerosol component. The third component is loaded with Ca, Sr, P, Mg, K, Mn, Cl, Zn, and Cu. The low black carbon loading, and the presence of phosphorus, indicates that this component represents natural biogenic aerosol particles. Factor 4 is associated with Si, Fe, and Ti, representing a second component of soil dust particles. The last factor has associations with Na and Cl and somewhat with bromine and iodine, indicating that it could be associated with marine aerosol particles. As the Amazon Basin region is composed of several different types of soils, and the area covered by the flights was very large, it is not surprising to find two different soil dust components. Also, the second soil dust component could be associated with a combination of soil resuspension, together with forest litter and ash, causing the separation of soil dust in two different components. As for the NaCl aerosol component, intrusions of Atlantic marine air masses are common in the Amazon Basin. A marine aerosol component was already observed in the Amazon Basin, as described previously by Artaxo *et al.* [1988] and Talbot *et al.* [1990]. The meteorological conditions associated with this transport were characterized by Garstang *et al.* [1990] and by Greco *et al.* [1990]. However, taking in account that this component was also sometimes observed in Rondonia, at 3000 km from the Atlantic Ocean, it is not possible to rule out a local source for the NaCl. Reid *et al.* [this issue] also observed a similar NaCl component in aerosol samples collected at the C-131A aircraft at the SCAR-B experiment. The factor analysis results reported here

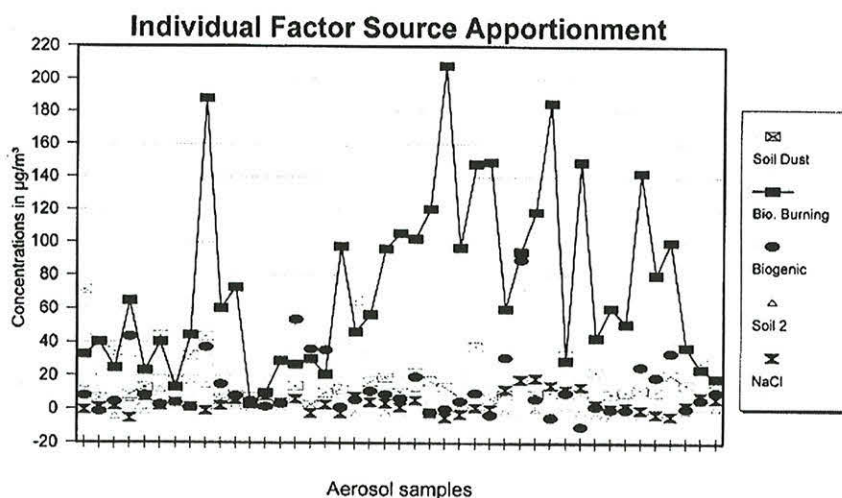


Figure 4. Absolute aerosol source apportionment for each component and each sample.

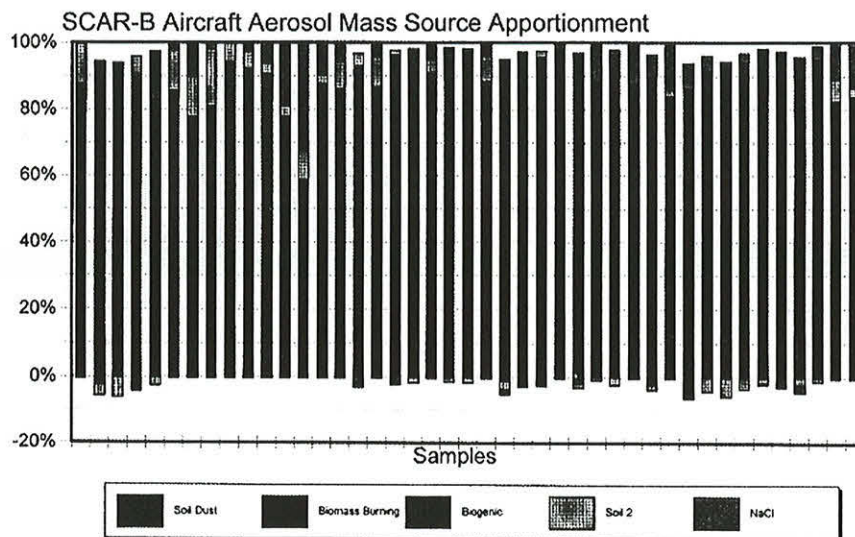


Figure 5. Aerosol source apportionment in terms of percentage of the observed aerosol mass for each sample and each component.

are similar to other ground-based aerosol source apportionment studies in the Amazon Basin [Artaxo *et al.*, 1995, 1997; Maenhaut *et al.*, 1996b, Echalar *et al.*, this issue]. Similar characteristic elements for biomass burning emissions have been associated with biomass burning aerosol in Africa [Lacaux *et al.*, 1993; Gaudichet *et al.*, 1995]. The five component model explains 91% of the data variance, and the first three components account for 78%. The communalities for all variables are, in general, larger than 90%, meaning that the five factors could explain satisfactorily the observed elemental concentrations.

It is surprising to observe a natural biogenic aerosol component in the dry season with such high aerosol loading from biomass burning. The aerosol mass concentration in the Amazon Basin during the wet season (with no biomass burning) range from 10 to 15 $\mu\text{g m}^{-3}$ for particles less than 10 μm [Echalar *et al.*, this issue]. This is a considerable aerosol mass concentration. In the fine mode ($d_p < 2 \mu\text{m}$) the aerosol mass concentration is a significant 2–5 $\mu\text{g m}^{-3}$. There are two main sources for these natural biogenic particles: primary biogenic aerosol particles, rich in organic matter plus P, K, S, Ca, Mn, Zn, Cl, and other elements, and the gas-to-particle conversion from biogenic VOCs. This aerosol component is part of the natural biosphere-atmosphere exchange and is a component of the vegetation metabolism (through the nutrient cycling). This natural component is present all the time in the Amazon, during the dry and wet season. However, in the dry season the aerosol mass concentration is dominated by biomass burning aerosol particles, although the natural biogenic component is always present. The nature and mechanism of emission for part of these particles is unknown.

The quantitative aerosol source apportionment for each observed component and each aerosol sample is shown in Figure 4. The results are indicated as mass concentrations (in $\mu\text{g m}^{-3}$) for each of the five components for each sample. The impacts of biomass burning, soil dust, and biogenic components are of the same order of magnitude for the first seven samples. From the middle of SCAR-B on, biomass burning dominated significantly the atmospheric aerosol loading. The masses associated with the NaCl aerosol and the soil 2 component were very

small during this period. The soil dust component was always present in significant amounts, of the order of 10–40 $\mu\text{g m}^{-3}$. August and September represents the peak of the dry season, with significant fraction of bare soil exposed in the cerrado areas of central Brazil.

The aerosol source apportionment in terms of percentage of the observed aerosol mass for each sample and each component can be observed in Figure 5. For some samples, the biomass burning aerosol accounted for 70–90% of the aerosol mass, but it is noteworthy that for most of the samples, there were significant amounts of soil dust and natural biogenic aerosol. The small negative values in the aerosol source apportionment are always below 7%. Given that the combined analytical uncertainty is around 10% for most of the elements, these small negative values are within the measurement standard deviation. Biogenic aerosol is the most important component for four of the samples, while soil dust is the most important component for five samples. This implies that in order to model the optical properties of aerosol in the Amazon Basin it is essential to include the optical and physical properties of natural biogenic aerosol and soil dust, in addition to

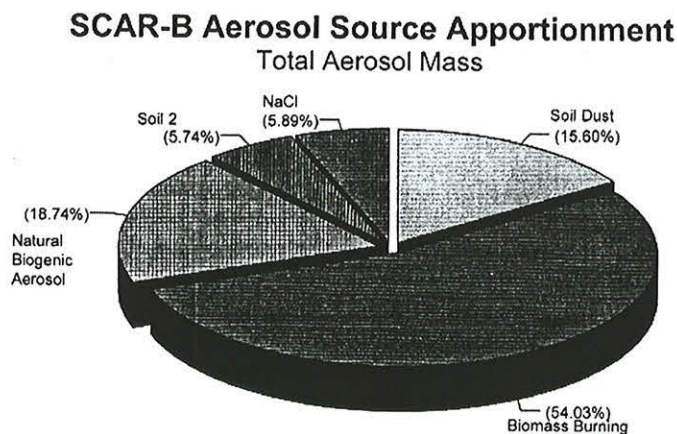


Figure 6. Total aerosol mass source apportionment for the SCAR-B aircraft aerosol samples in Brazil.

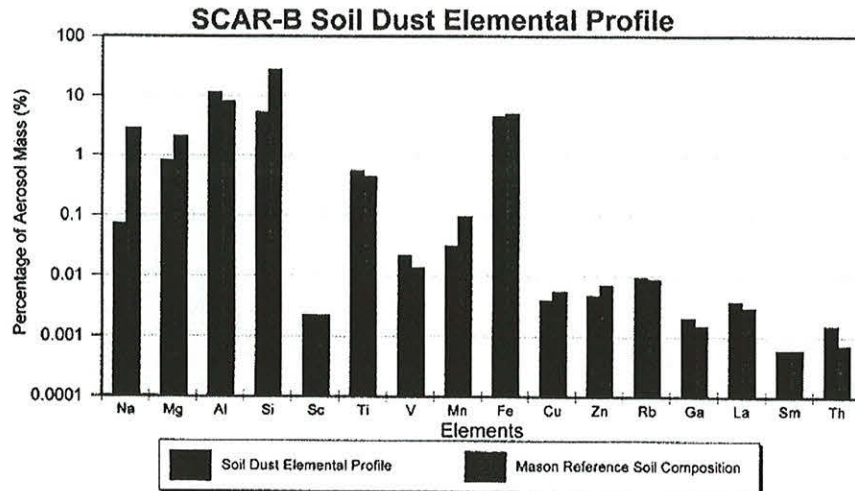


Figure 7. Elemental compositions of the soil dust component measured in SCAR-B. Also shown is the average crustal abundance given by *Mason* [1966].

biomass burning smoke. This is achieved by measuring the properties of regional hazes dominated by smoke from biomass burning.

Figure 6 shows the total aerosol mass source apportionment. For the SCAR-B aircraft samples, 54.0% of the aerosol mass was associated with biomass burning aerosol, 18.7% with natural biogenic aerosol, 15.6% with soil dust, 5.7% with a second soil dust component, and 5.9% with the NaCl aerosol. These values represent the average for all samples collected in SCAR-B.

Using the APFA technique, it is possible to derive absolute elemental profiles for each of the components. Figure 7 shows the elemental source profile for the soil dust component. A comparison with the average crustal abundance given by *Mason* [1966] is included. The elemental profile from the APFA procedure shows a very similar elemental pattern to that of average crustal material. The main discrepancies are for silicon and sodium. It is important to note, however, that there is a second soil dust component discriminated by the APFA model that has silicon as its main element. The elemental source

profile for the biomass burning component is shown in Figure 8. The observed elemental profile was compared with particles collected directly over fires in the cerrado and forest regions of Brazil [*Yamasoe*, 1995]. Potassium was measured in SCAR-B as 1.46% of the aerosol mass, while in direct emissions by *Yamasoe* [1995], it was observed at 1.38%. Black carbon was measured in SCAR-B at 6.3% of the aerosol mass, while in direct emissions, it was measured at 7.6%. Chlorine in SCAR-B was observed at much lower concentrations, due to the volatilization in the atmosphere after the emissions from the fires. Sulphur was observed at higher values than in the direct emissions, probably due to assimilation and incorporation of gaseous sulphur compounds in existing aerosol particles after the emissions. Zinc was observed in similar concentrations, and it was measured in SCAR-B a factor of 2 higher phosphorus concentrations than in the work of *Yamasoe* [1995]. The direct emission measurements by *Yamasoe* [1995] were performed at a few meters away from the fires, so freshly emitted aerosol particles were collected, while the aircraft measurements reported here represent a regional average of

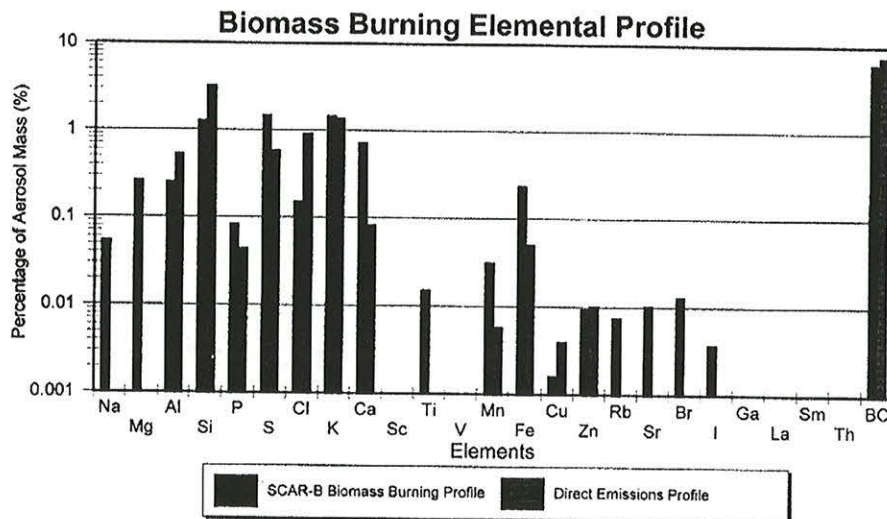


Figure 8. Elemental source profile for the biomass burning component measured in SCAR-B compared with measurements obtained directly over the fires in the forested and cerrado regions of Brazil [*Yamasoe*, 1995].

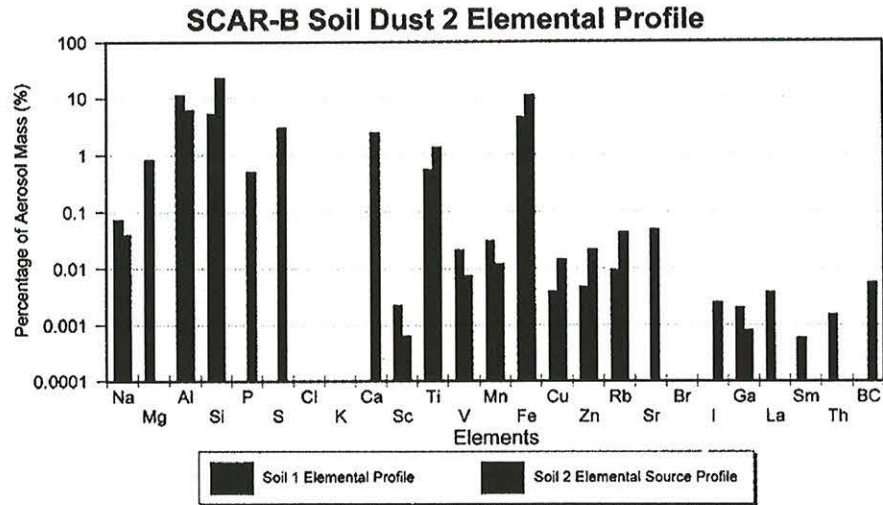


Figure 9. Comparison of the elemental profile for the two soil dust components in SCAR-B.

aged aerosol. Reid *et al.* [this issue] and Reid and Hobbs [this issue] discuss mechanisms for the very rapid evolution of young smoke particles, which can explain the differences in the elemental profiles shown in Figure 8.

Figure 9 compares the elemental profiles for the two soil dust components observed in this study. The second soil dust factor (soil 2) shows higher Si, Ti, and Fe concentrations, as well as the presence of calcium, which was absent in the first soil dust component. In addition, S and P are present in significant amounts, indicating the presence of some biological material in this component. In view of the presence of biogenically related elements, this aerosol component could represent resuspended forest litter. Enrichments of Zn, Rb, Sr, and iodine support this view. The high amount of BC in this component may be associated with resuspension of ash particles deposited on the soil, which may have a significant effect on light absorption. Also, strong atmospheric convection in burning areas could simultaneously loft both soil dust and biomass burning particles into the atmosphere.

The aerosol size distribution was measured with the MOUDI cascade impactor. A total of seven size distribution measurements were made on the C-131A aircraft. The aerosol mass distributions obtained are shown in Figure 10. The mass concentration indicated in the first MOUDI stage should be

viewed with caution because of possible nonisokinetic aircraft sampling for this size range. The peak of the size distribution is at $0.33 \mu\text{m}$ diameter for most of the samples. A small coarse mode component is centered at about $3.2 \mu\text{m}$ diameter. For these seven cascade impactor samples collected over different regions, the average fine mode mass ($d_p < 1 \mu\text{m}$) accounts for 78%, while the coarse mode mass ($d_p > 1 \mu\text{m}$) is 22% of the total mass. These fractions are characteristic of aerosols collected from aircraft in the regional hazes in the Amazon Basin [Pereira *et al.*, 1996]. Also, the average diameter observed is consistent with those of aged natural biogenic aerosol particles measured on the ground [Artaxo and Hanson, 1990].

With the aerosol samples collected with the rotating version of the MOUDI cascade impactor, it is possible to perform a reflectance measurement of the aerosol deposit and obtain black carbon concentrations [Andreae, 1983; Andreae *et al.*, 1984]. Figure 11 shows the black carbon aerosol size distribution for each of the collected MOUDI cascade impactors. The average aerodynamic diameter is between 0.175 and $0.33 \mu\text{m}$. Very little or no black carbon was observed above $1 \mu\text{m}$ diameter.

Some selected samples were subjected to individual particle analysis by EPMA. This analysis allows the study of particle morphology and composition. The EPMA was performed only on particles larger than $0.3 \mu\text{m}$ diameter, due to the resolution

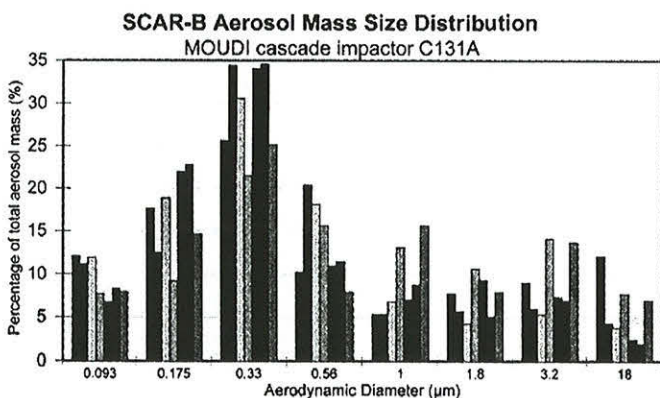


Figure 10. Aerosol mass size distribution for the seven MOUDI cascade impactor samples collected aboard the C-131A aircraft in SCAR-B.

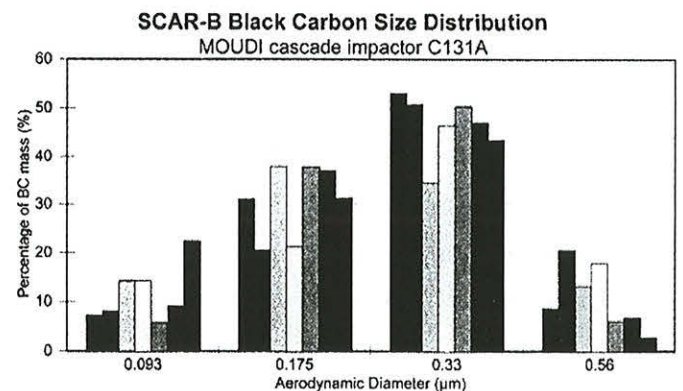


Figure 11. Black carbon size distribution for the seven MOUDI cascade impactor samples collected aboard the C-131A aircraft in SCAR-B.

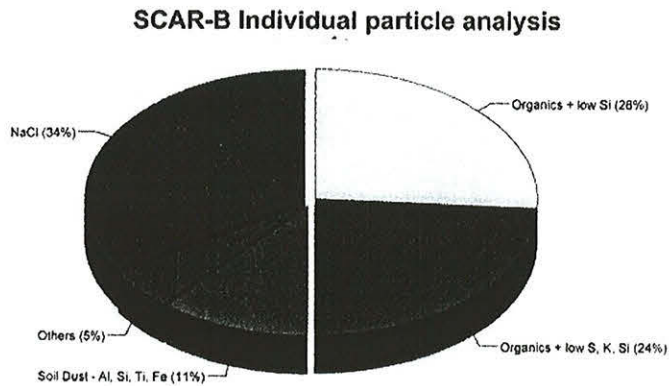


Figure 12. Individual particle analysis by electron probe X ray microanalysis of two aerosol samples collected aboard the C-131A in Jamari, Rondonia, at altitudes from 600 to 4000 m in SCAR-B.

of the instrument and the carbon coating of the particles, that is needed for X ray microanalysis. Figure 12 shows the cluster analysis of two aerosol samples collected near Jamari, Rondonia, at altitudes from 600 to 4000 m. Half of the measured particles were primarily organic, but with small amounts (of the order of 0.5 to 1% in mass) of silicon, sulphur, and potassium. This large organic group represents biomass burning and natural biogenic particles. The elements that could be used for

distinguishing between the two particle groups could not be observed within the detection limit of the EPMA analysis (about 0.5% in mass). These two subgroups of organic particles had average diameters of $1.3 \pm 1.0 \mu\text{m}$ and $0.9 \pm 0.6 \mu\text{m}$, respectively. The group of particles containing NaCl comprised 34% of the measured particles and corresponded to larger particles (average diameter $2.2 \pm 2.6 \mu\text{m}$). This is a surprisingly high abundance, taking into account that the measurements were made 3000 km from the Atlantic Ocean. Talbot *et al.* [1990] and Swap *et al.* [1996] observed strong effects of long-range transport in the Amazon Basin. Aerosol samples collected over the same region in this work show up to 7000 ng m^{-3} for chlorine and 135 ng m^{-3} for bromine. It is not possible unequivocally to conclude whether the NaCl particle class represents marine aerosol particles or instead consists of soil particles rich in NaCl. The soil dust particle accounts for 11% of the number concentration of particles, a value consistent with the APFA results, with a mean diameter of $1.9 \pm 0.8 \mu\text{m}$. A small amount (5%) of the particles, with a mean diameter of $0.7 \pm 0.3 \mu\text{m}$ are mixed groups. This could be the result of processing through clouds, or these particles could represent an internal mixture of different particle types. It is important to emphasize that the EPMA accounts only for particles larger than $0.3 \mu\text{m}$ in diameter, which account for most of the aerosol mass. However, in terms of the number of particles, the majority is below $0.3 \mu\text{m}$ diameter.

One of the important aspects of analyzing aerosols in large

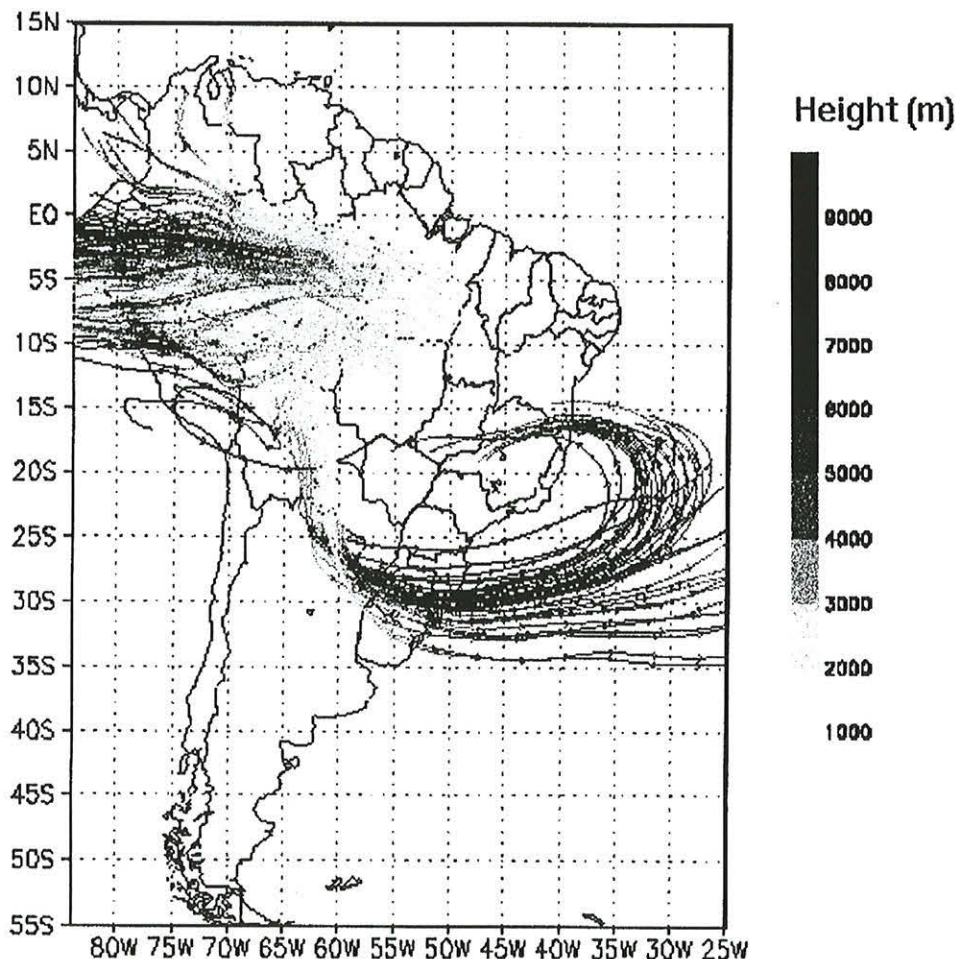


Figure 13. Three-dimensional forward air mass trajectories starting in biomass burning spots on August 22, 1985, during the SCAR-B experiment.

scale is the issue of long-range transport. Three-dimensional (3-D) air mass trajectories were calculated starting from biomass burning spots provided by A. Setzer (INPE) for the latest part of August 1995, during the SCAR-B experiment [Setzer *et al.*, 1994]. Complete details of results and model used can be obtained in the work by Freitas *et al.* [1997]. The 3-D trajectories were determined from the wind fields generated by the Regional Atmospheric Modeling System (RAMS) model described by Pielke *et al.* [1992]. The model is nudged at every time step toward a global analysis available every 12 hours. The model vertical resolution starts at 100 m in lower levels stretching at a rate of 1.2 up to 1200 m and then keeping a constant resolution up to model top located at 15.5 km. It was observed that one approaching cold front in the last week of September 1995 provides a conveyor belt where sloping ascent of the 3-D trajectories takes place. This movement transports gases and aerosol particles up to the upper troposphere. Figure 13 shows the 3-D forward air mass trajectories starting in biomass burning spots on August 22, 1985, during the SCAR-B experiment. It is possible to observe that after 7–8 days the air masses have two preferential flows: along the Andes and in the South Atlantic. The corresponding GOES visible image shows a similar aerosol pattern than the 3-D trajectory model. The TOMS aerosol product also shows higher aerosol concentrations along the southern part of the Atlantic Ocean and in the Pacific, with a similar transport pattern than the one presented in Figure 13. This long-range pattern was observed frequently during the SCAR-B experiment. This long-range transport of gases and aerosol particles may have a significant climate impact in the southern hemisphere as well as important regional impacts in the South American continent.

5. Conclusions

The large-scale picture of aerosols in the Amazon Basin during the biomass burning season described in this paper reveals a variety of particle types. A large variability in the amount of the aerosol particles was observed from site to site. Biomass burning aerosols dominated the aerosol mass in most cases. Surprisingly, natural biogenic aerosol particles show a consistent presence, and for sites with low loading of smoke, the natural biogenic component dominates. Soil dust particles also show a consistent presence, probably due to the dryness of the soil and strong convective movements. A small NaCl component was observed (about 5.9% of the aerosol mass). The origin of this component is unclear; local sources or long-range transport of marine aerosol are both possibilities. Organic material dominated the aerosol mass and the number of particles. Aerosol size distributions showed that the fine mode accounts for 78% of the aerosol mass, centered at 0.33 μm aerodynamic diameter. The coarse mode accounts for 22% of the mass, centered at about 3.2 μm . Black carbon size distribution exhibited a consistent picture, with mass median diameter centered at about 0.175–0.33 μm aerodynamic diameter. Three-dimensional air mass trajectories and satellite images show two main paths, along the Andes and to the South Atlantic Ocean. Significant fluxes of aerosol particles enter the southern atmosphere through these two pathways, at high altitudes.

The results from this work suggest that for modeling the optical properties of aerosol in the Amazon Basin, it is essential to work with an aerosol model that includes optical properties for at least three aerosol components, namely, natural

biogenic aerosol and soil dust, in addition to the biomass burning aerosol.

Acknowledgments. Thanks are due to Ronald Ferek and Jeffrey Reid for help during the C-131A sampling. We thank Alcides C. Ribeiro, Ana L. Loureiro, Manfredo Tabacniks, and Tarsis Germano for assistance during sampling and PIXE analysis. We also thank Volker Kirchhoff, Yoram Kaufman, Dave Mc Dougal, and the SCAR-B team for help in planning and data interpretation. This work was financed through grants 90/2950-2, 96/2672-9, 96/2671-2, 97/00844-0 from FAPESP-Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de São Paulo. The University of Washington's participation was supported by grants NASA NAGW-3750 and NAG 11709; NSF ATM-9400760, ATM-9412082, and ATM-9408941; NOAA NA37RJ 0198AM09; and EPA CR822077. One of us (W.M.) acknowledges the financial support from the Belgian State, Prime Minister's Service, Federal Office for Scientific, Technical, and Cultural Affairs (OSTC) and from the Fonds voor Wetenschappelijk Onderzoek, Vlaanderen.

References

- Andreae, M. O., Soot carbon and excess fine potassium: Long-range transport of combustion derived aerosols, *Science*, 220, 1148–1151, 1983.
- Andreae, M. O., and P. J. Crutzen, Atmospheric aerosols: Biogeochemical sources and role in atmospheric chemistry, *Science*, 276, 1052–1058, 1997.
- Andreae, M. O., et al., Biomass burning emissions and associated haze layers over Amazonia. *J. Geophys. Res.*, 93, 1509–1527, 1984.
- Artaxo, P., and H. C. Hansson, Size distribution and trace element concentration of atmospheric aerosols from the Amazon Basin, in *Aerosols: Science, Industry, Health and Environment*, edited by S. Masuda and K. Takahashi, pp. 1042–1045, Elsevier, New York, 1990.
- Artaxo, P., and H.-C. Hansson, Size distribution of biogenic aerosol particles from the Amazon Basin, *Atmos. Environ.*, 29(3), 393–402, 1995.
- Artaxo, P., and W. Maenhaut, Trace element concentrations and size distribution of biogenic aerosols from the Amazon Basin during the wet season, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sec. B*, 49, 366–371, 1990.
- Artaxo, P., and C. Orsini, The emission of aerosol by plants revealed by three receptor models, in *Aerosols: Formation and Reactivity*, edited by G. Israel, pp. 148–151, Pergamon, New York, 1986.
- Artaxo, P., and C. Orsini, PIXE and receptor models applied to remote aerosol source apportionment in Brazil, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sec. B*, 22, 259–263, 1987.
- Artaxo, P., H. Storms, F. Bruynseels, R. Van Grieken, and W. Maenhaut, Composition and sources of aerosols from the Amazon Basin, *J. Geophys. Res.*, 93, 1605–1615, 1988.
- Artaxo, P., W. Maenhaut, H. Storms, and R. Van Grieken, Aerosol characteristics and sources for the Amazon Basin during the wet season, *J. Geophys. Res.*, 95, 16,971–16,985, 1990.
- Artaxo, P., M. Yamasoe, J. V. Martins, S. Kocinas, S. Carvalho, and W. Maenhaut, Case study of atmospheric measurements in Brazil: Aerosol emissions from Amazon biomass burning, in *Fire in the Environment: The Ecological, Atmospheric, and Climatic Importance of Vegetation Fires*, edited by P. J. Crutzen and J.-G. Goldammer, pp. 139–158, John Wiley, New York, 1993a.
- Artaxo, P., F. Gerab, and M. L. C. Rabello, Elemental composition of aerosol particles from two background monitoring stations in the Amazon Basin, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sec. B*, 75, 277–281, 1993b.
- Artaxo, P., F. Gerab, M. A. Yamasoe, and J. V. Martins, Fine mode aerosol composition in three long-term atmospheric monitoring sampling stations in the Amazon Basin, *J. Geophys. Res.*, 99, 22,857–22,868, 1994.
- Artaxo, P., F. Gerab, M. A. Yamasoe, and J. V. Martins, The chemistry of atmospheric aerosol particles in the Amazon Basin, in *Chemistry of the Amazon: Biodiversity, Natural Products and Environmental Concerns*, *Am. Chem. Soc. Book Ser., ACS Symp. Ser.* 588, edited by P. R. Seidl, O. R. Gottlieb, and M. A. C. Kaplan, pp. 265–280, Washington, D. C., 1995.
- Artaxo, P., F. Gerab, and M. A. Yamasoe, Long term atmospheric aerosol characterization in the Amazon Basin, in *Environmental Geochemistry in the Tropics*, edited by J. Wasserman, E. V. Silva Filho, and R. Villas Boas, pp. 227–250, Springer-Verlag, New York, 1997.

- Beauford, W., J. Barber, and A. R. Barringer, Heavy metal release from plants into the atmosphere, *Nature*, 256, 35–37, 1975.
- Beauford, W., J. Barber, and A. R. Barringer, Release of particles containing metals from vegetation into the atmosphere, *Science*, 195, 571–573, 1977.
- Cachier, H., P. Buat-Ménard, M. Fontugne, and J. Rancher, Source terms and source strengths of the carbonaceous aerosol in the tropics, *J. Atmos. Chem.*, 3, 469–489, 1985.
- Crutzen, P., and M. O. Andreae, Biomass burning in the tropics: Impact on atmospheric chemistry and biogeochemical cycles, *Science*, 250, 1669–1678, 1990.
- Crutzen, P. J., and J. G. Goldammer, (Eds.), *Fire in the Environment: The Ecological, Atmospheric and Climatic Importance of Vegetation Fires*, John Wiley, New York, 1993.
- Crutzen, P. J., L. E. Heidt, J. P. Krasnec, W. H. Pollock, and W. Seiler, Biomass burning as a source of the atmospheric gases CO, H₂, N₂O, NO, CH₃Cl and COS, *Nature*, 282, 253–256, 1979.
- Echalar, F., A. Gaudichet, H. Cachier, and P. Artaxo, Aerosol emissions by tropical forest and savanna biomass burning: Characteristic trace elements and fluxes, *Geophys. Res. Lett.*, 22, 3039–3042, 1995.
- Freitas, S. R., K. M. Longo, M. A. F. Silva Dias, and P. Artaxo, Numerical modelling of air mass trajectories from the biomass burning areas of the Amazon Basin, *Ann. Acad. Bras. Cienc.*, 68, 193–206, 1997.
- Garstang, M., R. Swap, S. Greco, R. Harriss, R. Talbot, M. Shipham, V. Connors, and P. Artaxo, The Amazon Boundary Layer Experiment: A meteorological perspective, *Bull. Am. Meteorol. Soc.*, 71, 19–32, 1990.
- Gash, J. H. C., C. A. Nobre, J. M. Hoberts, and R. L. Victoria, Amazon deforestation and climate, John Wiley, New York, 1996.
- Gaudichet, A., F. Echalar, B. Chatenet, J. P. Quisefit, G. Malingre, H. Cachier, P. Buat-Ménard, P. Artaxo, and W. Maenhaut, Trace elements in tropical African savanna biomass burning aerosols, *J. Atmos. Chem.*, 22, 19–39, 1995.
- Greco, S., R. Swap, M. Garstang, S. Ulanski, M. Shipham, R. C. Harriss, R. Talbot, M. O. Andreae, and P. Artaxo, Rainfall and surface kinematic conditions over central Amazonia during ABLE 2B, *J. Geophys. Res.*, 95, 17,001–17,014, 1990.
- Hobbs, P. V., and L. F. Radke, Cloud condensation nuclei from a simulated forest fire, *Science*, 163, 279–280, 1969.
- Hobbs, P. V., J. S. Reid, R. A. Kotchenruther, R. J. Ferek, and R. Weiss, Direct radiative forcing by smoke from biomass burning, *Science*, 275, 1776–1778, 1997.
- Holben, B. N., T. F. Eck, A. Pereira, and I. Slutsker, Effect of dry season biomass burning on Amazon Basin aerosol concentrations and optical properties, 1992–1994, *J. Geophys. Res.*, 101, 19,455–19,464, 1996.
- Hopke, P. K., *Receptor Modeling in Environmental Chemistry*, John Wiley, New York, 1985.
- Jaenicke, R., and S. Mathias-Maser, Natural sources of atmospheric aerosol particles, in *Precipitation Scavenging and Atmosphere-Surface Exchange*, edited by S. E. Schwartz and W. G. N. Slinn, pp. 1617–1639, Hemisphere, Bristol, Pa., 1992.
- Johansson, S. A. E., and J. L. Campbell, *PIXE—A Novel Technique for Elemental Analysis*, John Wiley, New York, 1988.
- Kaufman, Y. J., and R. S. Fraser, The effect of smoke particles on clouds and climate forcing, *Science*, 277, 1636–1639, 1997.
- Kaufman, Y. J., and D. Tanré, Variations in cloud supersaturation and the aerosol indirect effect on climate, *Nature*, 369, 45–48, 1994.
- Kaufman, Y. J., et al., Smoke, Clouds, and Radiation—Brazil (SCAR-B) experiment, *J. Geophys. Res.*, this issue.
- Lacaux, J.-P., H. Cachier, and R. Delmas, Biomass burning in Africa: An overview of its impact on atmospheric chemistry, in *Fire in the Environment: The Ecological, Atmospheric, and Climatic Importance of Vegetation Fires*, edited by P. J. Crutzen and J.-G. Goldammer, pp. 159–191, John Wiley, New York, 1993.
- Levine, J., Global biomass burning: Atmospheric, climatic and biospheric implications, *Eos Trans. AGU*, 71(37), 1075–1077, 1990.
- Maenhaut, W., W. H. Zoller, R. A. Duce, and G. L. Hoffman, Concentrations and size distributions of particulate trace elements in the south polar atmosphere, *J. Geophys. Res.*, 84, 2421–2431, 1979.
- Maenhaut, W., G. Koppen, and P. Artaxo, Long term atmospheric aerosol study in Cuiabá, Brazil: Multielemental composition, sources, and impacts of biomass burning, in *Biomass Burning and Global Change*, edited by Joel Levine, pp. 637–652, MIT Press, Cambridge, Mass., 1996a.
- Maenhaut, W., I. Salma, J. Cafmeyer, H. J. Annegarn, and M. O. Andreae, Regional atmospheric aerosol composition and sources in the eastern Transvaal, South Africa, and impact of biomass burning, *J. Geophys. Res.*, 101, 23,631–23,650, 1996b.
- Martins, J. V., P. Artaxo, C. Lioussé, J. S. Reid, P. V. Hobbs, and Y. J. Kaufman, Effects of black carbon content, particle size, and mixing on light absorption by aerosol particles from biomass burning in Brazil, *J. Geophys. Res.*, this issue.
- Mason, B., *Principles of Geochemistry*, 3rd ed., John Wiley, New York, 1966.
- Nemeruyk, G. E., Migration of salts into the atmosphere during transpiration, *Sov. Plant Physiol.*, 17, 560–566, 1970.
- Penner, J. E., R. E. Dickinson, and C. A. O'Neil, Effects of aerosol from biomass burning on the global radiation budget, *Science*, 256, 1432–1434, 1992.
- Pereira, E. B., A. W. Setzer, F. Gerab, P. Artaxo, M. C. Pereira, and G. Monroe, Airborne measurements of biomass burning aerosols in Brazil related to the TRACE-A experiment, *J. Geophys. Res.*, 101, 23,983–23,992, 1996.
- Pielke, R. A., et al., A comprehensive meteorological modeling system—RAMS, *Meteorol. Atmos. Phys.*, 49, 69–91, 1992.
- Reid, J. S., and P. V. Hobbs, Physical and optical properties of young smoke from individual biomass fires in Brazil, *J. Geophys. Res.*, this issue.
- Reid, J. S., P. V. Hobbs, C. Lioussé, J. V. Martins, R. E. Weiss, and T. F. Eck, Comparisons of techniques for measuring shortwave absorption and the black carbon content of aerosols from biomass burning in Brazil, *J. Geophys. Res.*, this issue.
- Robock, A., Enhancement of surface cooling due to forest fire smoke, *Science*, 242, 911–913, 1988.
- Rogers, C. F., J. G. Hudson, B. Zielinska, R. J. Tanner, J. Hallett, and J. G. Watson, Cloud condensation nuclei from biomass burning, in *Global Biomass Burning: Atmospheric, Climatic, and Biospheric Implications*, edited by J. Levine, pp. 431–438, MIT Press, Cambridge, Mass., 1992.
- Setzer, A. W., and M. C. Pereira, Amazonia biomass burning in 1987 and an estimate of their tropospheric emissions, *Ambio*, 20, 19–22, 1991.
- Setzer, A. W., M. C. Pereira, and A. C. Pereira Jr., Satellite studies of biomass burning in Amazonia—Some practical aspects, *Remote Sens. Rev.*, 10, 91–103, 1994.
- Swap, R., M. Garstang, S. Macko, P. Tyson, W. Maenhaut, P. Artaxo, P. Kallberg, and R. Talbot, The long-range transport of southern African aerosols to the tropical South Atlantic, *J. Geophys. Res.*, 101, 23,777–23,792, 1996.
- Talbot, R. W., M. O. Andreae, H. Berresheim, P. Artaxo, M. Garstang, R. C. Harriss, K. M. Beccher, and S. M. Li, Aerosol chemistry during the wet season in central Amazonia: The influence of long-range transport, *J. Geophys. Res.*, 95, 16,955–16,970, 1990.
- Thurston, G. C., and J. D. Spengler, A quantitative assessment of source contributions to inhalable particulate matter pollution in metropolitan Boston, *Atmos. Environ.*, 19, 9–25, 1985.
- Van Grieken, R., P. Artaxo, P. Bernard, F. Bruynseels, P. Otten, H. Storms, and C. Xhoffer, Characterization of individual environmental particles in *Chemistry for Protection of the Environment, Studies in Environmental Sciences*, vol. 34, edited by L. Pawlowski, E. Mentasti, W. J. Laey, and C. Sarzanini, Elsevier, New York, 1988.
- Van Grieken, R., C. Xhoffer, L. Wouters, and P. Artaxo, Microanalysis techniques for the characterization of individual environmental particles, *Anal. Sci.*, 7, 1117–1122, 1991.
- Yamasoe, M. A., Estudo da composição elementar e iônica de aerossóis emitidos em queimadas na Amazônia (in Portuguese), M.S. thesis, Inst. of Phys., Univ. of São Paulo, Brazil, 1995.

P. Artaxo, A. Castanho, E. T. Fernandes, K. M. Longo, J. V. Martins, M. A. Yamasoe, Instituto de Física, Universidade de São Paulo, Caixa Postal 66318, CEP 05315-970, São Paulo, Brazil. (e-mail: artaxo@if.usp.br)

P. V. Hobbs, Department of Atmospheric Sciences, University of Washington, Seattle, WA 98195-1640. (e-mail: phobbs@atmos.washington.edu)

W. Maenhaut, Institute for Nuclear Sciences, University of Ghent, Proeftuinstraat 86, B9000, Belgium. (e-mail: maenhaut@inwchem.rug.be.)

(Received September 10, 1997; revised July 1, 1998; accepted July 9, 1998.)

Apêndice E

Artigo: “Transport of biomass burning smoke to the upper troposphere by deep convection in the equatorial region”

Andreae M. O., P. Artaxo, H. Fischer, J. P. F. Fortuin, J.-M. Grégoire, P. Hoor,
R. Kormann, R. Krejci, L. Lange, J. Lelieveld, *K. M. Longo*, W. Peters, M. de
Reus, B. Scheeren, M. A. de Silva Dias, J. Strøm, and J. Williams.

Artigo em preparação para ser submetido à revista **Science**

**Transport of biomass burning smoke to the upper troposphere by
deep convection in the equatorial region**

M. O. Andreae¹, P. Artaxo², H. Fischer¹, J. P. F. Fortuin³, J.-M. Grégoire⁴, P. Hoor¹, R. Kormann¹, R. Krejci⁶, L. Lange¹, J. Lelieveld⁵, K. Longo², W. Peters⁵, M. de Reus⁶, B. Scheeren⁵, M. A. de Silva Dias⁷, J. Strøm⁶, and J. Williams¹

1) Max Planck Institute for Chemistry, P.O. Box 3060, 55020 Mainz, Germany; e-mail: moa@mpch-mainz.mpg.de);

2) Instituto de Física, Universidade de São Paulo, Caixa Postal 66318, CEP 05315-970, São Paulo, SP, Brazil

3) KNMI (Royal Netherlands Meteorological Institute), P.O. Box 201, 3730 AE De Bilt, The Netherlands

4) Environment Institute, JRC/CEC, Ispra, Italy

5) Institute for Marine and Atmospheric Research Utrecht (IMAU), Princetonplein 5, 3584 CC Utrecht, The Netherlands

6) Institute of Applied Environmental Research, Stockholm University, 10691 Stockholm, Sweden

7) Dept. Ciências Atmosféricas - USP, Rua do Matão 1226, 05508-900 São Paulo, SP, Brasil

Draft, 19 November, 1999
to be submitted to SCIENCE

Abstract

Transport of biomass smoke to the upper troposphere by deep convection has been proposed as a mechanism to explain the unexpectedly high concentrations of CO and O₃ sometimes found at high altitudes in remote regions of the tropics and subtropics. During LBA-CLAIRE-98, we intercepted atmospheric layers at high altitudes (>10 km) over Surinam that had the chemical characteristics of aged smoke from biomass burning. CO and CO₂ were strongly enhanced in these layers, and the $\Delta\text{CO}/\Delta\text{CO}_2$ ratio was in the range typical of emissions from savanna fires. Acetonitrile, methyl chloride, non-methane hydrocarbons, NO, O₃, and aerosols were also elevated in these layers. The composition of these layers suggested that nitrogen oxides and aerosols had been very effectively removed during transport. Using forward and backward trajectory calculations we show that the origin of the smoke in these plumes are the large savanna fires that were raging in the region of the Brazil/Venezuela border during March 1998. This smoke was entrained into deep convection in the ITCZ over the Amazon Basin, transported out over the Pacific, and then returned to the South American continent by the circulation around a large upper-level anticyclone. These observations provide evidence for the importance of deep convection in the ITCZ as a mechanism to transport large amounts of pyrogenic pollutants into the upper troposphere in the tropics.

When vegetation fires were first recognized as a major source of atmospheric pollution (1), it was thought that their influence would be mostly limited to the lower troposphere. Most fires occur in the dry season, when large-scale subsidence prevents deep convection, and thus allows the vegetation to become dry enough to burn. Conversely, the deep convection in the Intertropical Convergence Zone (ITCZ) produces abundant rainfall, which precludes fire. However, subsequent observations showed large amounts of pollutants such as CO and O₃ in the upper troposphere over the tropics (2-6), which could only be explained as resulting from vegetation fires. Some of the lofting of biomass smoke to the upper troposphere may be taking place in episodic frontal convective events, such as the one encountered over central Brazil during the TRACE-A experiment (7). A more general mechanism was proposed to explain the transport of smoke to high altitudes, which entailed transport by the trade wind circulation towards

the ITCZ, followed by convective transport to the middle and upper troposphere (8). However, because of the heterogeneous distribution of vegetation fires, the long transport paths involved in this process, and the scarcity of airborne measurements in the tropical upper troposphere, it has hitherto not been possible to validate this transport mechanism by in-situ observations.

During the LBA-CLAIRE-98 (Large-Scale Biosphere/Atmosphere Experiment in Amazonia - Cooperative LBA Airborne Regional Experiment '98) we conducted flights with a research aircraft over Surinam, in the northern part of Amazonia. In March 1998, when the campaign was taking place, large fires were burning in the savanna/forest transition region in Roraima State, Brazil and adjacent portions of Venezuela and Guyana. AVHRR satellite measurements showed these fires to be concentrated in an area bounded by 1° - 5° N, 59° - 62° W (9). The smoke emitted from them was evident on maps of the distribution of UV-absorbing aerosol prepared from TOMS sensor data in real time during the campaign and covered areas several 100 km in diameter (10). Since the lower tropospheric circulation in the region is dominated by the northeasterly trade winds, we did not expect to encounter smoke from these fires in our study area over Surinam, some 500 km NE of the fires.

However, trajectory information available for planning of flight CLAIRE-08 (26 March 1998) indicated that at altitudes around 10 km (200 hPa) airmasses were arriving over Surinam which had originated in the ITCZ region downwind of these fires. The plume travel time estimated from the trajectory calculations was 9-10 days. We decided to investigate the hypothesis that smoke from these fires was entrained into the ITCZ, carried aloft by deep convection (evident on GOES satellite images), and transported to our study region by transport around a high-level anticyclone. For this purpose, vertical soundings and a long transect at ca. 200 hPa were flown over southern Surinam. Instrumentation on the aircraft allowed the determination of CO_2 , CO, O_3 , NO, several hydrocarbons, acetone, acetonitrile (CH_3CN), methyl chloride (CH_3Cl), and aerosol particles.

Results of the measurements made during this flight segment are summarized in Figure 1 and Table 1. The vertical profiles show a layer of enhanced CO and O_3 at the altitudes predicted, above very clean air that originated in the central Pacific. In this layer, trace gases emitted by fires were elevated and showed strong

mutual correlations, typical of biomass plumes (11-14). These enhancements are shown in Table 1 as ratios $\Delta X/\Delta\text{CO}_2$ or $\Delta X/\Delta\text{CO}$, where Δ denotes the enhancement of a species over its background concentration. Background concentrations were obtained from the same flight for all species except the hydrocarbons, for which insufficient samples were available from Flight 08 and upper tropospheric values from the preceding and subsequent flights were used.

The observed enrichment of acetonitrile and methyl chloride, both marker species for biomass burning, and the absence of elevated anthropogenic halocarbons, e.g., tetrachloroethene, are clear evidence that the plumes came from biomass fires and not from urban or industrial pollution sources. The ratios shown in Table 1 are characteristic of highly aged smoke: $\Delta\text{CH}_3\text{Cl}/\Delta\text{CO}$ is elevated relative to fresh plumes, which may indicate that some CO has already been oxidized. A similar trend was observed during TRACE-A by Mauzerall et al. (15). In that campaign, a $\Delta\text{CH}_3\text{Cl}/\Delta\text{CO}$ ratio of ca. (2.0 ± 0.3) was seen in the high-altitude outflow from South America (16). The $\Delta\text{CO}/\Delta\text{CO}_2$ ratios in our plume are in the range typical of savanna fires and below those of forest fires (17). Because of the 10-day age of the plume, however, it has probably already decreased by some 20-30% from its initial value (15), which would make it consistent with the origin of the smoke plume in the savanna/forest transition zone. The nonmethane hydrocarbon enhancement ratios are for most species substantially lower than in fresh plumes, reflecting the photochemical aging of the airmass. This applies in particular to the alkenes, which in fresh emissions are more abundant than the alkanes, but which in our plume are almost completely removed by oxidation. On the other hand, the relatively long-lived alkanes are present at similar or even higher ratios to CO than in fresh plumes). Acetone is also enriched in comparison to fresh smoke, consistent with photochemical production of acetone and loss of CO.

The $\Delta\text{NO}/\Delta\text{CO}_2$ ratio in the layer was much lower than in fresh smoke, and similar to values in aged plumes from TRACE-A (15, 18, 19). Unfortunately, due to instrument limitations we were not able to measure other nitrogen species, such as NO_2 or HNO_3 . The $\Delta\text{O}_3/\Delta\text{CO}$ ratio, indicative of the amount of photochemical O_3 formation that has taken place in the plume, is near the lower end of the range of values observed in mature plumes in the lower troposphere. This ratio is

dependent on the initial NO_x content of the plume and on the chemical evolution during photochemical processing in the atmosphere (15, 18, 19). The relatively low value observed on CLAIRE-08 suggests that either NO species were removed relatively early in the evolution of the plume, or that O_3 formation was already declining and net O_3 consumption was taking place. Also, our measurements provide no indication that substantial amounts of NO_x were added by lightning during the convective events.

The aerosol concentration in the plume provided evidence for the importance of wet removal of particles during the convective transport events. In fresh smoke the ratio $\Delta N > 0.1 / \Delta \text{CO}$, i.e., the enhancement in particles with diameters > 0.1 μm normalized to the enhancement of CO, varies around $20 \text{ cm}^{-3} \text{ ppt}^{-1}$ (20). After an initial phase, when aerosol particle concentrations are still very high (104 to 106 cm^{-3}) and particle number concentrations decrease rapidly by coagulation, the CO-normalized particle enhancement decreases very slowly with plume age, and lower tropospheric plumes with ages of up to a week still have $\Delta N > 0.1 / \Delta \text{CO}$ around $5 \text{ cm}^{-3} \text{ ppt}^{-1}$ (15, 18). In contrast, the CLAIRE-08 plumes had for the most part rather low particle enrichments ($\Delta N > 0.1 / \Delta \text{CO}$ around $1 \text{ cm}^{-3} \text{ ppt}^{-1}$) with the exception of a layer encountered at 10.1 km during the descent (2126UT), that had a $\Delta N > 0.1 / \Delta \text{CO}$ of $4.5 \text{ cm}^{-3} \text{ ppt}^{-1}$. This implies that, in most of the plume, number concentrations of accumulation mode particles had decreased to about 5% of the initial number, and suggests that deep convection and the associated rain production mechanisms are efficient at removing atmospheric aerosol in this size fraction. Since we do not know how much the aerosol concentration had already declined from its initial value before the onset of deep convection, it is difficult to provide a quantitative estimate of how much aerosol was removed during convection. If we accept the range of 5 - $20 \text{ cm}^{-3} \text{ ppt}^{-1}$ as an estimate of initial enhancement ratios, our results suggest that some 80-95% of the accumulation mode particles is removed by deep convective transport.

This finding can explain the marked difference in aerosol abundance between biomass-smoke layers sampled at different altitudes in previous investigations (5, 18, 21). While the concentrations of O_3 and CO in these layers are similar below and above the trade wind inversion, aerosols are much less abundant in relation to CO and O_3 above the trade wind inversion (21, 22). Vertical transport in the dry

tropics, which typically reaches only to the trade wind inversion, is usually not accompanied by rain production and thus does not lead to a significant reduction of aerosol particles. Deep convection, on the other hand, which supplies biomass smoke to the upper troposphere, will deplete aerosol populations without affecting the concentrations of weakly soluble gases such as CO and O₃.

In contrast to the strong depletion in accumulation mode particles in the high-altitude plumes, smaller particles in the Aitken and ultrafine modes were still quite abundant. Aitken mode particles (here defined as the size class between 18 and 120 nm diameter) were at concentrations of around 1000, and ultrafine particles (7 to 18 nm diameter) were present at 500-1000 cm⁻³ (STP). The few available datasets from moderately aged plumes show $\Delta N_{Aitken}/\Delta CO$ values in the range of 8-18 cm⁻³ ppt⁻¹, about double the value found here (18, 23). This is consistent with a less efficient removal of particles smaller than 100 nm during the convective process. There are no published data on the emission ratio of ultrafine particles in biomass smoke, but the presence of a substantial number of particles in the ultrafine mode shows that new particle formation must be occurring in the plumes. These particles are short-lived because of their small size and correspondingly high diffusion velocities. This suggests that smoke plumes are active regions of new particle formation in the upper troposphere.

Real-time meteorological information had predicted the presence of smoke plumes in the upper troposphere during our campaign, and in-situ measurements had confirmed this predication. To further elucidate the atmospheric transport mechanisms responsible for the transfer of pyrogenic pollution to the upper troposphere, we conducted forward and backward trajectory analyses using the RAMS model with NCEP data in the forward mode and the KNMI model with ECMWF data in the backward mode (Figure 2).

The RAMS model uses a detailed convective scheme (24) and applies a relatively high resolution over South America, which makes it highly suitable for forward trajectory calculations. The KNMI model, on the other hand uses kinematic vertical velocities from the ECMWF data set, and a coarser resolution, making it less suitable for resolving convective activity in the ITCZ. Although the ECMWF model reproduces the ITCZ, it is conceivable that convection is not simulated in agreement with the time and location in the real atmosphere. Comparison be-

tween the two sets of trajectories shows excellent agreements between both models, each predicting transport from the fires in the Roraima/Venezuela region to convective areas in the ITCZ, lofting of the smoke-laden air to the 10-12 km level, and transport around a high-altitude anticyclone to the Guyana/Surinam region. The agreement between two entirely different models, using different data sets, and different directions of computation, lends strong support to the validity of the transport mechanisms proposed here.

In conclusion, our experiment showed that deep convection in the ITCZ over the humid tropics can explain the high concentrations of CO, O₃, and other pyrogenic pollutants seen during CLAIRE-98 and previous experiments in the tropical upper troposphere, up to tropopause levels. The transport mechanism is characterized by the following sequence of events: 1) Smoke emission from fires in the dry regions under the subsiding branch of the Hadley cell, 2) Transport by the trade wind circulation into the Intertropical Convergence Zone, 3) Lofting to the upper troposphere by deep convection, 4) Eastward transport by the high-altitude circulation.

This process has the potential of strongly influencing atmospheric chemistry, in particular the photochemical oxidant cycle, in the upper troposphere. Since net upward motion across the tropopause takes place in the tropics, some of the biomass burning effluents may even reach into the stratosphere. The effect of long-range transport of biomass smoke reaches even the most remote regions of the troposphere, as shown by measurements in the free troposphere over the Tropical and South Pacific (25). The deep convective transport shown here has differential effects on the different constituents of the smoke plume. Soluble constituents, including aerosols, are effectively removed from the air mass by rainout in the cumulonimbus clouds of the ITCZ. This leads to a low abundance of remaining accumulation mode aerosol, including the particles responsible for light scattering and cloud nucleation. On the other hand, Aitken mode aerosols are abundant in the resulting layers, and the presence of ultrafine particles suggests that they are regions of new particle production. As a result, deep convective transport of biomass smoke may make a substantial contribution to the aerosol particle burden of the upper troposphere.

Insoluble trace gases, such as CO, NMHC, NO and O₃ are not much affected

by the convective transport, and are therefore still enhanced in the upper tropospheric layers. In principle, lightning activity during cumulonimbus convection could resupply reactive NO_x to the plumes and enhance photochemical ozone production, but no evidence for this process was seen in the NO and O_3 data from our flight. While, seen by themselves, the results from CLAIRE-08 have the character of a case study limited to a particular instance, the mechanisms seen here are of general validity for pyrogenic emissions in the tropics and tropical atmospheric circulation. Similar, albeit less broadly documented enhancement of pyrogenic pollutants in the middle and upper troposphere were seen on other CLAIRE flights, and will be presented in future publications. Together with data from other campaigns, which did not allow the close connection between sources, transport mechanisms, and observed smoke plumes, our data show that biomass smoke is an important contributor to the chemical dynamics in the upper troposphere, with potential effects even reaching into the lower stratosphere.

Acknowledgements. *We acknowledge the permission of the government of Suriname to conduct this research over their country. We are grateful for the generous cooperation of our Surinamese colleagues, especially C. Becker and the staff of the Surinamese Weather Service. We thank the crew of the Delft University Citation aircraft for their enthusiastic support, and all the other participants of the LBA-CLAIRE-98 campaign for their essential contributions to this project. This research is part of the project Large-Scale Biosphere/Atmosphere Experiment in Amazonia (LBA). It was funded by the German Max Planck Society.*

Table 1: Chemical characteristics of fresh savanna fire smoke (SAFARI, etc.), aged plumes (ABLE - 2A, CITE - 3, TRACE-A), highly aged plume (>6 days) sampled during TRACE-A, and the high-altitude plumes observed during CLAIRE-98 (mol ratio * 10³).

Parameter	Fresh smoke ¹	Aged Plumes (2-6 days) ²	Highly Aged Plumes TRACE-A (>6 days) ³	CLAIRE-98 High-Altitude Plumes ⁵
$\Delta\text{CO}/\Delta\text{CO}_2$	40-80	20-90	16±2	(55) 48-71
$\Delta\text{CH}_3\text{Cl}/\Delta\text{CO}$	0.8-1.1	1.2±0.12	1.43±0.13	1.8±0.2
$\Delta\text{CH}_3\text{CN}/\Delta\text{CO}$	0.4-2.5	—	—	1.2±0.3
$\Delta\text{C}_2\text{H}_2/\Delta\text{CO}$	3-5	2.6±0.2	2.8±0.2	0.9±0.3
$\Delta\text{C}_2\text{H}_6/\Delta\text{CO}$	4-9	7.1±1.1	8.0±0.7	13±2
$\Delta\text{C}_2\text{H}_4/\Delta\text{CO}$	5-12	—	—	0.3±0.1
$\Delta\text{C}_3\text{H}_8/\Delta\text{CO}$	0.9-2.0	1.2±0.4	—	2.0±0.5
$\Delta\text{C}_6\text{H}_6/\Delta\text{CO}$	1.1-1.5	0.48±0.05	—	0.42±0.1
$\Delta(\text{CH}_3)_2\text{CO}/\Delta\text{CO}$	1.5-12	—	—	19.5±1.6
$\Delta\text{NO}/\Delta\text{CO}_2$	1-3	<0.1	0.05±0.01 ⁴	0.06±0.01
$\Delta\text{O}_3/\Delta\text{CO}$	—	0.3-0.7	0.74±0.90	0.25 (0.20-0.29)
$\Delta N_{\text{Aitken}}/\Delta\text{CO}$	—	8-18	—	4.9 (2.7-6.4)
$\Delta N_{\text{ultrafine}}/\Delta\text{CO}$	—	—	—	8.1 (1.4-10.1)
$\Delta N_{>0.1}/\Delta\text{CO}$	10-03	5±3	4.6±2.4	1.2 (0.6-4.5)

¹Data from (14, 15, 17, 21, 26-28)

²Data from (15, 18)

³Data from (15)

⁴NO_x

⁵Means and ranges for continuously measured data, mean and analytical uncertainty for canister data

References

1. P. J. Crutzen, L. E. Heidt, J. P. Krasnec, W. H. Pollock, W. Seiler, *Nature* **282**, 253-256 (1979).
2. C. E. Watson, J. Fishman, H. G. Reichle, *J. Geophys. Res.* **95**, 16,443-14,450 (1990).
3. H. G. Reichle, et al., *J. Geophys. Res.* **95**, 9845-9856 (1990).
4. V. W. J. H. Kirchhoff, C. A. Nobre, *Revista Geofisica* **24**, 95-108 (1986).
5. J. E. Collins, et al., *J. Geophys. Res.* **101**, 24,307-24,316 (1996).
6. D. J. Jacob, et al., *J. Geophys. Res.* **101**, 24,235-24,250 (1996).
7. K. E. Pickering, et al., *J. Geophys. Res.* **101**, 23,993-24,012 (1996).
8. P. J. Crutzen, M. O. Andreae, *Science* **250**, 1669-1678 (1990).
9. J.-M. Grégoire, et al., "Fire Activity in the Guiana Shield, the Orinoco and Amazon Basins During March 1998" *EUR 18091* (EC Joint Research Centre, Space Applications Institute, 1998).
10. J. R. Herman, et al., *J. Geophys. Res.* **102**, 16,911-16,922 (1997).
11. M. O. Andreae, in *Biogeochemistry of Global Change: Radiatively Active Trace Gases* R. S. Oremland, Ed. (Chapman & Hall, New York, NY, 1993) pp. 113-150.
12. M. O. Andreae, et al., *J. Geophys. Res.* **93**, 1509-1527 (1988).
13. R. J. Ferek, J. S. Reid, P. V. Hobbs, D. R. Blake, C. Lioussé, *J. Geophys. Res.* **103**, 32,107-32,118 (1998).
14. N. J. Blake, et al., *J. Geophys. Res.* **101**, 24151-24164 (1996).
15. D. L. Mauzerall, et al., *J. Geophys. Res.* **103**, 8401-8423 (1998).
16. R. W. Talbot, et al., *J. Geophys. Res.* **101**, 24,187-24,202 (1996).

17. M. O. Andreae, et al., in *Biomass Burning and Global Change* J. S. Levine, Ed. (MIT Press, Cambridge, Mass., 1996) pp. 278-295.
18. M. O. Andreae, et al., *J. Geophys. Res.* **99**, 12,793-12,808 (1994).
19. R. B. Chatfield, J. A. Vastano, H. B. Singh, G. Sachse, *J. Geophys. Res.* **101**, 24,279-24,306 (1996).
20. P. Le Canut, M. O. Andreae, G. W. Harris, F. G. Wienhold, T. Zenker, *J. Geophys. Res.* **101**, 23,615-23,630 (1996).
21. B. E. Anderson, et al., *J. Geophys. Res.* **101**, 24,117-24,138 (1996).
22. E. V. Browell, et al., *J. Geophys. Res.* **101**, 24,043-24,068 (1996).
23. M. O. Andreae, et al., *J. Geophys. Res.* **97**, 6137-6148 (1992).
24. S. R. Freitas, et al., *J. Geophys. Res.* (1999).
25. G. L. Gregory, et al., *J. Geophys. Res.* **104**, 5677-5696 (1999).
26. M. O. Andreae, et al., *J. Geophys. Res.* **101**, 23,603-23,613 (1996).
27. W.-M. Hao, D. E. Ward, G. Olbu, S. P. Baker, *J. Geophys. Res.* **101**, 23,577-23,584 (1996).
28. R. Holzinger, et al., *Geophys. Res. Lett.* **26**, 1161-1164 (1999).

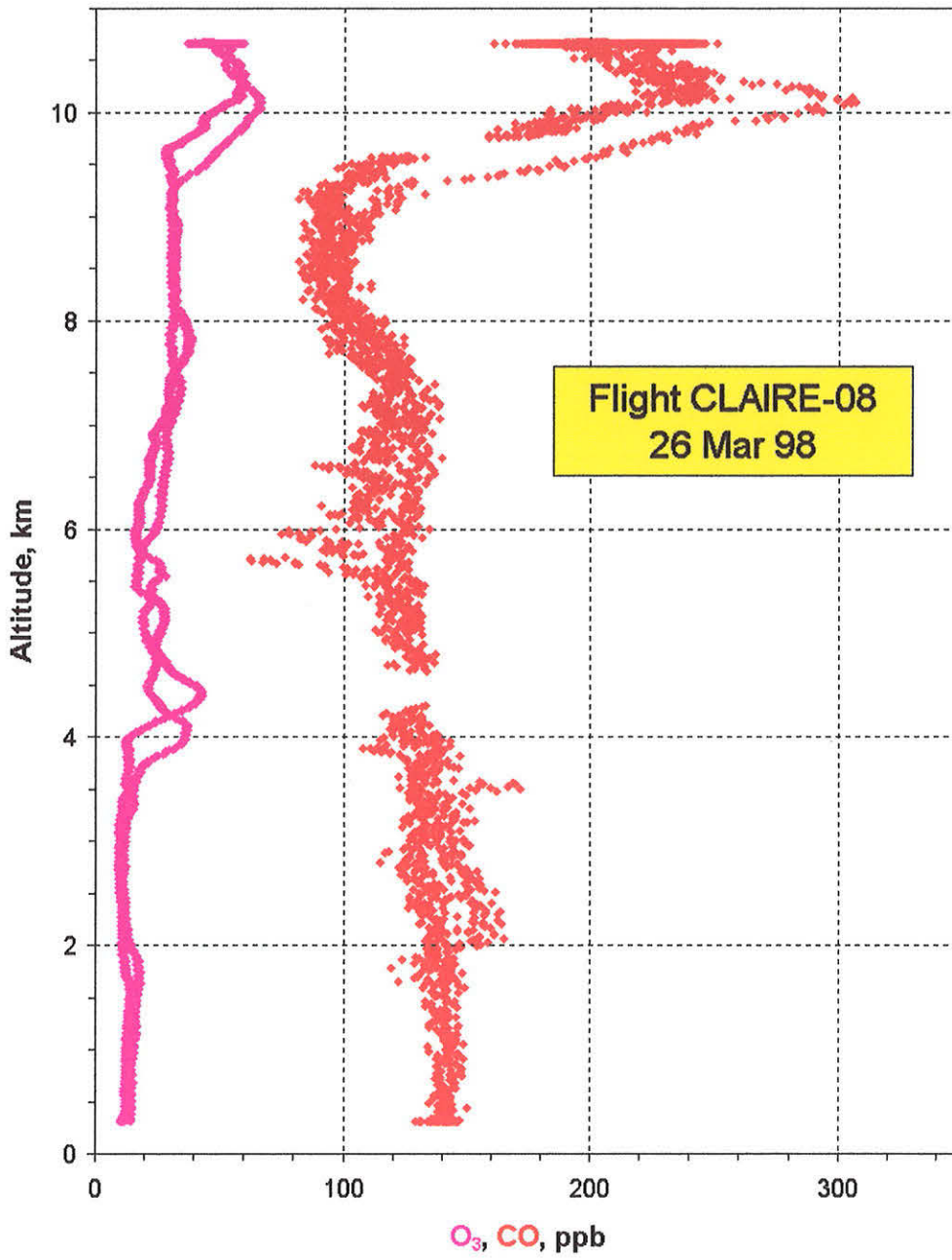


Figure 1: Vertical profiles of CO and O₃ sampled during Flight 08 of LBA-CLAIRE-98 over southern Suriname.

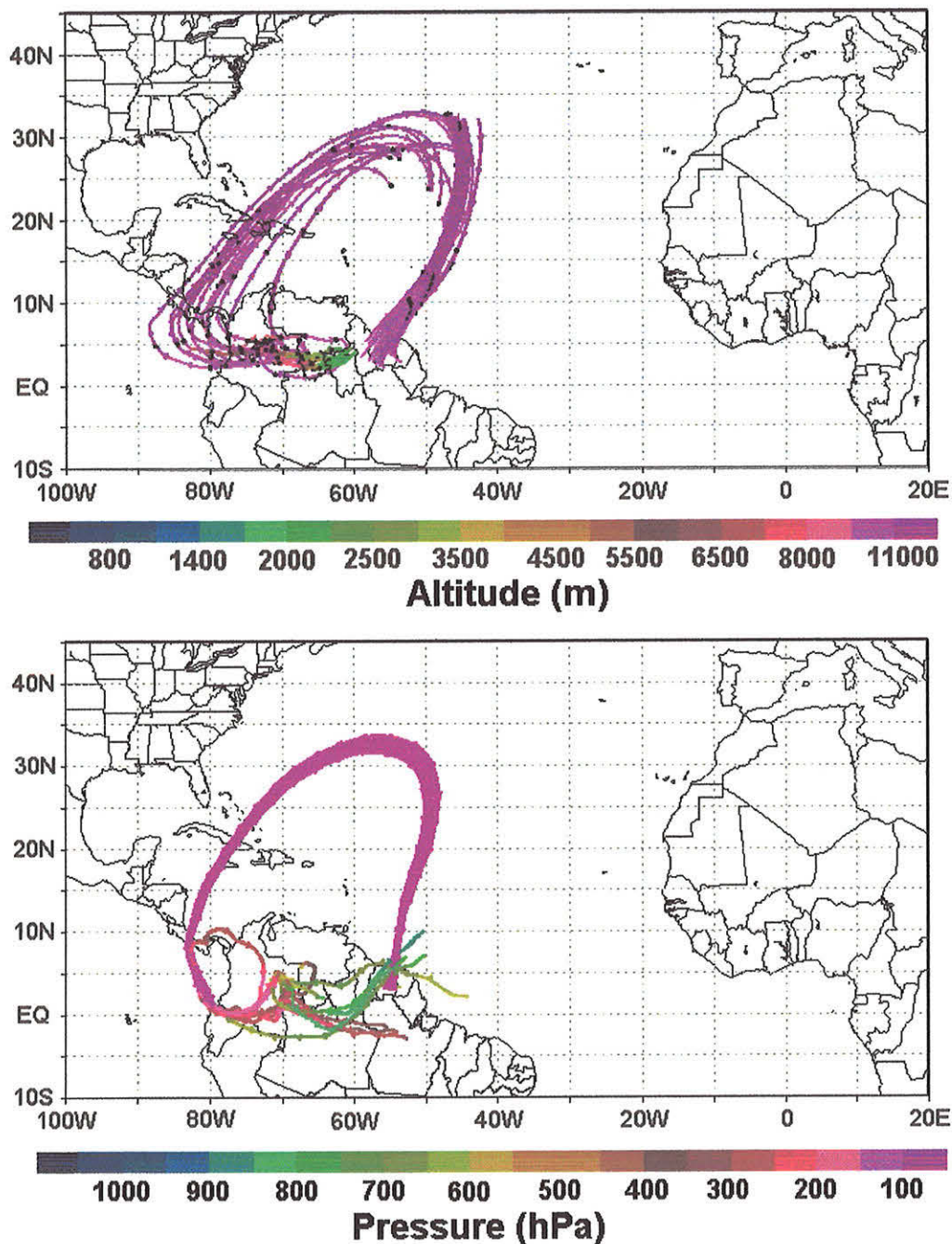


Figure 2: a) Combined forward trajectories from the biomass fire region in Brazil and Venezuela and backward trajectories from the flight track of CLAIRE-08 computed with the RAMS model. b) Backward trajectories from the flight track of CLAIRE-08 computed with the KNMI model.