Universidade de Évora

Caracterização dos Aerossóis Troposféricos Combinando Observações em Satélite e à Superfície

Maria de Lourdes Augusta Bugalho

Orientadora: Professora Doutora Ana Maria Almeida e Silva

Dissertação submetida à Universidade de Évora
para obtenção do grau de Doutor em Física

Esta tese não inclui os comentários do jùri.

U.E
Serviços
Académicos
N.º GD/8386
23.3.09
Sector:
DEPG

Universidade de Évora

Caracterização dos Aerossóis Troposféricos Combinando Observações em Satélite e à Superfície

Maria de Lourdes Augusta Bugalho

Orientadora: Professora Doutora Ana Maria Almeida e Silva

170 153

Dissertação submetida à Universidade de Évora
para obtenção do grau de Doutor em Física

Esta tese não inclui os comentários do jùri.

Agradecimentos

Foi com grande satisfação que respondi afirmativamente à proposta de trabalho, feita pela prof. Dourora Ana Maria Silva, de participação na campanha ACE2 Clearcolumn e, que levou à realização de grande parte desta tese. Para a sua elaboração contei com o apoio e colaboração de várias pessoas que, de forma directa ou indirecta, muito contribuíram para a sua realização.

Agradeço de uma forma particular à minha orientadora, prof.Doutora Ana Maria Silva, pelo encorajamento, pela orientação atenciosa, apoio científico, e disponibilidade para resolver as mais variadas questões que surgiram ao longo deste trabalho.

Agradeço também ao Doutor von-Hoyningen-Huene pela cedência dos programas que constituiem o CIRATRA.

Agradeço aos membros da rede AERONET e membros dos grupos SeaWIFS e MISR a disponibilização dos dados.

Aos meus amigos pela amizade e apoio.

Aos meus filhos, e, sem esquecer de forma especial a minha netinha, pelo apoio incondicional e por serem a minha maior motivação.

Resumo

Este trabalho teve início durante a campanha ACE2 Clearcolumn, primeira grande campanha internacional, para observação dos aerossóis atmosféricos, realizada em Portugal, na região sudoeste (Sagres e Fóia). Os aerossóis atmosféricos são de entre os componentes da atmosfera os mais díficeis de monitorizar devido à sua grande variabilidade espacial, temporal, e, à grande variedade de composições quimicas, dimensões e formas, sendo pois de grande importância as campanhas de observação, particularmente quando diferentes plataformas observacionais (à superfície, avião, satélite) estiverem simultaneamente em presença.

Este trabalho teve como objectivo principal a caracterização física dos aerossóis atmosféricos numa região, recorrendo à obtenção das suas propriedades ópticas e físicas a partir da detecção remota de satélite sobre terra. Esta é uma tarefa díficil já que a reflectividade dos aerossóis é usualmente menor que a reflectividade das superfícies em terra, sendo, pois, crítico o conhecimento da reflectividade espectral da superfície da terra na região em estudo.

A contribuição original desta tese consiste no método, em que não se impõe suposições "*à priori*" sobre o "tipo" ou as caracerísticas dos aerossóis. Para um dado local estas são obtidas a partir das observações da irradiância espectral feitas com espectrorradiómetros de superfície, (detecção remota de superfície), combinadas com o código de inversão CIRATRA (Coupled Inversion Radiation Transfer) conjugado com o programa de transferência radiativa IMS (Intensity corrected Multiple Scattering) e, complementarmente, por métodos de observação "in situ. Para uma dada região, combinando a observação remota de superfície com a de satélite sobre terra, tendo podido estimar a reflectância da superfície e podendo obter as propriedades dos aerossóis a partir das observações espectroradiométricas, foi ainda possível extrapolar as propriedades dos aerossóis atmosféricos para uma região em torno do local de observação.

Abstract

This work was initiated during the ACE2 Clearcolumn campaign, organized in the southwest region of Portugal (Sagres e Fóia). This was the first large scale international campaign for the observation of atmospheric aerosols. The atmospheric aerosols are amongst the most difficult components in the atmosphere to observe and monitor. Indeed, the atmospheric aerosols present a wide spatial and temporal variety, a great diversity of chemical composition, and a big diversity of shapes and dimensions. For this reason the observation campaigns are very important, namely when they combine different observational platforms (at the ground, airborne and satellite) and simultaneously as it was the case.

The main purpose of this work was to perform such monitorization, in a specific region, by means of the optical and physical properties of atmospheric aerosols, using remote satellite detection over land. This is an extremely difficult task, since the reflectivity of atmospheric aerosols is usually lower than the reflectivity of the Earth surfaces. It is thus critical in this procedure the knowledge of the spectral reflectivity of the Earth surfaces of the region at study.

The original contribution of this thesis consists in the method, in which no assumptions are imposed "a priori" on the "type" or characteristics of aerosols. For a specific place these properties are previously derived from measurements of spectral irradiances, done by ground-based remote sensing instruments (multi-channel sunphotometers), combined with the inversion code CIRATRA (Coupled Inversion Radiation Transfer) and the IMS (Intensity corrected Multiple Scattering) radiative transfer model together with observation methods "in situ.

For a specific region the combination of ground based and satellite remote sensing observations over land, with the determination of the surface reflectance and the derivation of actual atmospheric aerosol properties from sunphotometer observations, allow extrapolating the properties of the aerosols over an extended area containing the observation site.

Índice

Agradecimento I

Resumo II

Abstract III

Índice 1

Simbolos e Acrónimos 6

Índice de Figuras 10

Índice de Tabelas 15

CAPÍTULO I - Motivação e Introdução 17

1.1. Introdução 17

1.2. Motivação 20

1.3. Objectivos da Tese 20

1.4. Descrição da Tese 22

CAPÍTULO II - Aerossóis Atmosféricos 24

2.1. Introdução 24

2.2. Aerossóis Atmosféricos 26

2.2.1. Classificação dos Aerossóis Atmosféricos 26

2.2.1.1. Aerossóis Estratosféricos 27

2.2.1.2. Aerossóis Troposféricos 28

2.2.2. Massas de Ar e Tipos de Aerossóis em Portugal Continental 30

2.2.3. Importância dos Aerossóis nos Estudos de Clima. 32

2.3. Propriedades dos Aerossóis Troposféricos 34

2.3.1. Propriedades Microfísicas e Químicas dos Aerossóis. 34

2.3.1.1. Distribuição de Dimensões dos Aerossóis 35

2.3.1.2. Forma das Partículas de Aerossóis 39

2.3.1.3. Índice de Refracção 40

2.3.2. Propriedades Ópticas dos Aerossóis 42

2.3.2.1. Propriedades Ópticas de uma Partícula 42

2.3.2.1.1 Dispersão e Absorção por uma Partícula. Teoria de Mie 43

2.3.2.1.2 Distribuição Angular da Radiação Dispersa por uma Partícula. Função de Fase 45

2.3.2.2. Propriedades Ópticas de uma População de Partículas 47

2.3.2.3. Propriedades Ópticas dos Aerossóis Integradas na Coluna Atmosférica 48

2.3.2.4. Dependência Espectral da Espessura Óptica e do Albedo de Dispersão Simples dos Aerossóis Atmosféricos. 50

2.3.2.5. Dispersão de Rayleigh 51

2.4 Transferência Radiativa. 52

2.4.1. Radiação Electromagnética 52

2.4.2. Equação de Transferência Radiativa 53

2.4.3. Extinção Atmosférica da Radiação Solar 56

CAPÍTULO III - Observação e Instrumentação 59

3.1 Introdução 59

3.2 Instrumentos Utilizados neste Trabalho 61

3.2.1. Observações "*in situ*" 63

3.2.1.1. Instrumento de Medição dos Coeficientes de Dispersão e de Retro-dispersão: Nefelómetro 64

3.2.1.2. Outros Instrumentos 67

3.2.2. Observação por Detecção Remota 68

3.2.2.1. Observação Remota à Superfície 68

3.2.2.1.1. Características dos Instrumentos 71

3.2.2.2. Observação Remota em Satélites 73

3.2.2.2.1. Instrumentos a Bordo de Satélites Utilizados neste Trabalho 74

3.2.2.2.1.1. SeaWIFS (Sea Viewing Wide Field of View Sensor) 77

3.2.2.2.1.2. MISR (Multi-angle Imaging SpectroRadiometer) 78

3.3 Campanhas de Observação dos Aerossóis Atmosféricos no Âmbito deste Trabalho 80

3.3.1 Campanha ACE 2 (Aerosol Characterization Experiments 2) 80

3.3.1.1. Condições Meteorológicas durante a Campanha 83

3.3.2 Campanha SAFARI 2000 85

3.3.3 Campanha Veleta 2002 87

CAPÍTULO IV - Metodologia de Estudo dos Aerossóis Atmosféricos 90

4.1. Introdução 90

4.2. Modelo de Inversão CIRATRA (Coupled Inversion Radiation Transfer). 93

4.2.1. Descrição do CIRATRA 94

4.2.2. Alterações Introduzidas no CIRATRA 99

4.2.3. Validação do CIRATRA 101

4.2.3.1. Comparação com o Algorítmo de Inversão Aplicado na AERONET 101

4.2.3.2. Sensibilidade do CIRATRA à Reflectância da Superfície 104

4.3 Influência da Reflectância da Superfície no Fluxo Radiativo Descendente e Ascendente de Pequeno Comprimento de Onda 108

4.3.1 No Topo da Atmosfera 110

4.3.2 À Sperfície 114

4.4 Método de Obtenção das Propriedades Ópticas dos Aerossóis 116

4.4.1. Observação Remota à Superfície 116

4.4.2. Observação "in situ" 117

4.4.3. Observação Remota em Satélite 118

4.4.3.1. Introdução 118

4.4.3.2. Descrição do Método. 121

4.4.3.2.1. Introdução 121

4.4.3.2.2. Metodologia Aplicada neste Trabalho 123

4.4.3.2.3. Reflectância da Superfície 127

4.5 Identificação da Origem e Transporte dos Aerossóis Atmosféricos: Trajectórias 130

CAPÍTULO V – Resultados e Discussão de Casos de Estudo 132

5.1. Introdução 132

5.2. Propriedades dos Aerossóis Obtidas a partir de Observação à Superfície. 133

5.2.1. Classificação de Diferentes Tipos de Aerossóis. Relação com as Massas de ar em Portugal 133

5.2.2. Comparação das Propriedades dos Aerossóis Obtidas Localmente e para a Coluna Atmosférica. 137

5.3 Propriedades Ópticas dos Aerossóis Obtidas por Observação Remota por Satélite. 142

5.3.1. Estimativa da Reflectância da Superfície 142

5.3.2. Estimativa das Propriedades Ópticas dos Aerossóis sobre Terra. 147

5.3.2.1. Aerossóis de Longo Curso 147

5.3.2.1.1. Aerossóis Resultantes de Queimadas e Poluição Industrial/Urbana na Região do Sul de África 147

5.3.2.1.2. Aerossóis do Deserto na Região de Armilla, Sul de Espanha 156

5.3.2.2. Aerossóis de Curto Percurso: Aerossóis Continental Poluído (Poluição Urbana Local) na Região de Armilla 159

CAPÍTULO VI – Conclusões e Trabalho Futuro 163

6.1 Conclusões 163

6.2 Trabalho Futuro 167

Referências 168

Símbolos e Acrónimos

$\overline{\log r_p}$	Média da distribuição do logarítmo base 10 do raio das partículas
$\overline{m}$	Valor médio do índice de refracção
α	Expoente de Angstrom
β	Coeficiente de Angstrom
υ	Expoente de dimensão, da distribuição de Junge
λ	Comprimento de onda
θ	Ângulo de dispersão
φ	Ângulo azimutal
δ_λ	Espessura óptica total pata o comprimento de onda λ
ω_0	Albedo de dispersão simples
$\tau_{a,abs}(\lambda)$	Coeficiente de absorção das partículas (m^{-1})
$\tau_{a,scat}(\lambda)$	Coeficiente de dispersão das partículas(m^{-1})
σ_{abs}	Secção eficaz de absorção(m^2)
$\tau_{abs}(\lambda)$	Coeficiente de absorção (m^{-1})
$\delta^{abs}{}_{aer,\lambda}$	Espessura óptica de absorção dos aerossóis
δ_{aer}	Espessura óptica dos aerossóis
$\delta_{aer,\lambda}$	Espessura óptica dos aerossóis
Θ_d	Ângulo de dispersão no plano almucantar
$\delta^d{}_{Ray,\lambda}$	Espessura óptica de Rayleigh
σ_{ext}	Secção eficaz de extinção (m^2)
$\tau_{ext}(\lambda)$	Coeficiente de extinção (m^{-1})
ΔF	Forçamento Radiativo solar médio global no topo da atmosfera dos aerossóis
σ_g	Desvio padrão geométrico
$\delta_{g,\lambda}$	Espessura óptica devido à absorção de gases
$\tau_{g,abs}(\lambda)$	Coeficiente de absorção dos gases(m^{-1})
ρ_i	Massa específica da partícula i
α_M	Parâmetro óptico de dimensão ou parâmetro de Mie

ρ_o	Massa volúmica de referência
ρ_p	Massa volúmica da partícula
$\tau_{Ray}(\lambda)$	Coeficiente de dispersão de Rayleigh(m^{-1})
$\delta_{Ray,\lambda}$	Espessura óptica de Rayleigh
θ_s	Ângulo zenith solar
φ_s	Ângulo azimutal solar
β_{scat}	Fracção hemisférica ascendente de dispersão
σ_{scat}	Secção eficaz de dispersão (m2)
$\tau_{scat}(\lambda)$	Coeficiente de dispersão (m-1)
$\delta^{scat}_{aer,\lambda}$	Espessura óptica de dispersão dos aerossóis
φ_v	Ângulo azimutal de obsevação
6S	Second Simulation of Satellite Signal in the Solar Spectrum
A_c	Fracção da atmosfera coberta por nuvens
ACE 2	2nd Aerosol Characterisation Experiment
AERONET	Aerosol RObotic NETwork
APS	Aerodynamic Particle Sizer
ASP	Atmosphere Spectral Photometer
ASTER	Advanced Spaceborne Thermal Emission and Reflection Radiometer
$B_\lambda(T)$	Função de planck para a temperatura T e comprimento de onda λ
C,B,γ	Constantes
CERES	Clouds and the Earth's Radiant Energy System
CIRATRA	Coupled Inversion Radiation Transfer
Clearcolumn	Clear sky column closure experiment
CPC	Condensation particle counter
CZCS	Coastal Zone Color Scanner
D_a	Diamêtro aerodinâmico da partícula
D_g	Diamêtro geométrico da partícula
DMA	Differential Mobility Analyser
DMPS	Differential Mobility Particle Spectrometer
$dN(r_p)$	Número de partículas com raios compreendidos entre rp e rp+drp

D_p	Diamêtro da partícula
EOS	Earth Observing System
F_λ	Irradiância espectral
$F(r,\lambda,m,\varphi)$	Intensidade de dispersão angular, obtida pela teoria de Mie
f_i	Fracção de volume do componente i
fR_λ	Função de resposta para uma dada banda espectral
h	Constante de Planck
IFT	Institute for Tropospheric Research
IGAC	International Global Atmospheric Chemistry
INDOEX	Indian Ocean Experiment
k	Parte imaginária do índice de refracção compexo
k	Constante de Boltzmann
$L(\lambda)$	Radiância na atmosfera
$L_{\lambda,d}$	Intensidade monocromática dispersa, ou radiância espectral dispersa
$L_0(\lambda)$	Radiância no Topo da Atmosfera
LIM	Leipzig Institute for Meteorology
$L_{scat}(\lambda,\varphi)$	Radiância no almucantar
m	Índice de refracção normalizado ou índice de refracção
m_{air}	Massa óptica de ar
MFRSR	Multi Filter Rotating Shadow
m_i	Massa da partícula i
MISR	Multi-angle Imaging SpectroRadiometer
MODIS	Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer
MOPITT	Measurements of Pollution In The Trpospfere
N	Número total de partículas
n	Parte real do índice de refracção compexo
$n(r_p)$	Distribuição do número de partículas
$n_i(r_p,x,y,z,t)$	Número de partículas da espécie i com raio rp, posição x,y,z, e tempo, t
N_m	Índice de refracção complexo da partícula
N_o	Índice de refracção complexo do meio

OPAC	Optical Properties of Aerosols and Clouds
OSC	Orbital Science Corporation
p	Pressão atmosférica no local
P_λ	Função de fase
p_0	Pressão atmosférica de referência
$P_a(\theta,\lambda,m)$	Função de fase dos aerossóis
PM10	particulate matter (partículas) com diâmetro inferior a 10 μm
$P_{Ray,\lambda}$	Função de fase de Rayleigh
Q_{abs}	Coeficiente de eficiência de absorção
Q_{ext}	Coeficiente de eficiência de extinção
Q_{scat}	Coeficiente de eficiência de dispersão
r_p	Raio da partícula
R_s	Albedo da superfície
S_0	Constante solar
SAFARI	Southern African Regional Science Initiative
SeaWIFS	Sea Viewing Wide Field of View Sensor
SEM	Scanning Electron Microscopy
T_{Ray}	Transmissividade de Rayleigh
T_d	Transmissividade descendente
T_s	Transmissividade ascendente
T	Transmissividade da atmosfera acima da camada dos aerossóis
TDMPS	Twin Differential Mobility Particle Sizing
TEM	Transmission Electron Microscopy
TOA	Topo da Atmosfera
U.E.	Universidade de Évora
U.I.	University of Illinoy

Índice de Figuras

Fig 2.1 Função de eficiência de extinção em relação ao raio de partículas, parâmetro óptico de tamanho, para o comprimento de onda 0.55 μm e para 3 diferentes índices de refracção 44

Fig 3.1 Distribuição global das estações da rede AERONET 61

Fig. 3.2 Corte esquemático do nefelómetro TSI 3563 64

Fig.3.3 Valores de coeficiente de dispersão para os comprimentos de onda 450 nm, 550nm e 700 nm, medidos com um nefelómetro TSI 3563, instalado em Foia, Portugal , durante a campanha do ACE 2 Clearcolumn 65

Fig.3.4 Geometria de observação no plano do almucantar 70

Fig.3.5 Função de resposta das bandas do SeaWIFS (MUMM OceanColour_Sensors.pdf) 77

Fig.3.6. Gráfico mostrando as curvas de calibração para as 8 bandas espectrais do SeaWIFS 78

Fig. 3.7 Esquema das diferentes plataformas de observação dos aerossóis na campanha ACE-2 CLEARCOLUMN (Raes, F. et al, 2000) 81

Fig.3.8 -Retro-Trajectória num período de 48 horas para o dia 16 de Junho, com trajectória sobre o Atlântico norte para todos os níveis (Produzido por HYSPLIT-NOAA ARL). 84

Fig 3.9 Rectro-trajectória para o dia 18 de Julho de 1997, referente a um período de 48 horas (Produzido por HYSPLIT- NOAA ARL). 84

Fig.3.10 Localização das diferentes bases de apoio instrumental à campanha SAFARI 2000, no período de Agosto e Setembro de 2000 86

Fig 3.11 Representação do "giro" anticiclónico e a saída períodica de poluentes para o Atlântico Sul e Índico 86

Fig.3.12 Campanha Veleta 2002; A) Localização Geográfica; B) Topografia da região mostrando diferentes locais de observação 88

Fig.4.1 Esquema do programa CIRATRA inicial com as letras a preto e as modificações introduzidas nesta tese com as letras a vermelho 99

Fig.4.2 Distribuição colunar de volume dos aerossóis resultante da inversão com os programas CIRATRA e da AERONET (esférica 1.5) para o dia 1 de Fevereiro de 2005 101

Fig.4.3 Distribuição colunar de volume dos aerossóis resultante da inversão com os programas CIRATRA e da AERONET (esférica 1.5) para o dia 25 de Maio de 2005 102

Fig.4.4 Função de fase dos aerossóis resultante da inversão com os programas CIRATRA e da AERONET (esférica 1.5) para o dia 1 de Fevereiro de 2005 103

Fig.4.5 Função de fase dos aerossóis resultante da inversão com os programas CIRATRA e da AERONET (esférica 1.5) para o dia 25 de Maio de 2005 103

Fig 4.6 Distribuição de dimensões das partículas obtida por inversão considerando várias reflectâncias da superfície 106

Fig 4.7- Função de fase dos aerossóis normalizada calculada usando o modelo CIRATRA para os 870 nm e para diferentes reflectâncias da superfície 107

Fig.4.8 Reflectância da superfície dum solo claro, tipo arenoso, e da variações positivas e negativas de 0.01, 0.02, 0.03, 0.04 e 0.05 110

Fig.4.9 – Fluxo ascendente simulado para o Topo da Atmosfera (TOA) para diferentes reflectâncias da superfície e para uma atmosfera sem aerossóis e para atmosferas com aerossóis com diferentes valores de absorção 111

Fig.4.10 Diferença normalizada do fluxo ascendente simulado para o Topo da Atmosfera (TOA) para diferentes reflectâncias da superfície e para uma atmosfera sem aerossóis e para atmosferas com aerossóis com diferentes valores de absorção 112

Fig.4.11 Forçamento radiativo no TOA, devido aos aerossóis, simulado para diferentes reflectâncias da superfície e para um aerossol do tipo desértico com a parte real do índice de refracção de 1.475 e para diferentes absorções. 113

Fig.4.12 Fluxo descendente simulado para o nível da superfície para diferentes reflectâncias da superfície e para uma atmosfera sem aerossóis e para atmosferas com aerossóis com diferentes valores de absorção 114

Fig.4.13 Fluxo ascendente simulado para o nível da superfície para diferentes reflectâncias da superfície e para uma atmosfera sem aerossóis e para atmosferas com aerossóis com diferentes valores de absorção 115

Fig.4.14 Forçamento radiativo devido aos aerossóis à superfície simulado para diferentes reflectâncias da superfície e para um aerossol do tipo desértico com a parte real do índice de refracção de 1.475 e para diferentes absorções. 115

Fig.4.15 Representação dos processos de reflexão na superfície e dos processos atmosféricos da luz solar no trajecto até ao satélite (retirada do manual do modelo 6S) 119

Fig.4.16.- Espectros de reflectância de superfície (a) do oceano e (b) de vegetação e solo nu 120

Fig 4.17- Relação entre a reflectância no topo da atmosfera devida aos aerossós, ao nível do satélite, e espessura óptica (AOT) para um aerossol marítimo com o albedo de dispersão simples, ω0(870)=1,e para reflectância de superfície de 4%, 10% e 20%. Os cálculos foram realizados com o código de transferência radiativa IMS de Nakajima et al, 1988, para um ângulo solar zenital 77°, solar azimutal 252°, ângulos de observação zenital 20° e azimutal, 188°. 123

Fig 4.18 Esquema do método de construção das LUT (Look Up Table) 125

Fig 5.1 Variação dos parâmetros de Angstrom (alpha e beta), da velocidade e direcção do vento, da humidade relativa e de diferentes massas de ar durante a campanha ACE2 Clearcolumn, 1997 134

Fig.5.2 Exemplos da espessura óptica espectral dos aerossóis para diferentes situações meteorológicas em Sagres e Foia. A) para o dia 19 de Junho de 1997; B) para o dia 29 de Junho de 1997 e C) para o dia 17 de Julho de 1997 136

Fig.5.3 Sondagem realizada no dia 29 de Junho de 1997. 137

Fig.5.4 Expoente de Angstrom calculado por dois diferentes métodos: a partir dos coeficientes de dispersão e a partir da espessura óptica dos aerossóis, para uma massa de ar continental, mas com brisa marítima nas primeiras horas da tarde. 139

Fig.5.5: Expoente de Angstrom calculado por dois diferentes métodos: a partir dos coeficientes de dispersão e calculado a partir da espessura óptica dos aerossóis, para uma massa de ar marítimo. 139

Fig.5.6 – Resultados do estudo do 'cut-off' para o dia 25 de Junho de 1997, em Foia, dia de ar marítimo 140

Fig.5.7- Sondagem de temperatura e humidade relativa do dia.A) 7 de Julho de 1997 às 18UTC, e B) 23 de Junho 1997 às 18h,em Sagres, e onde pelo perfil da humidade relativa se infere uma camada muito limpa ao nível de Foia (902m de altitude) 142

Fig.5.8 Reflectância da superfície para a banda 4 (545-565nm) do MODIS, interpolado para uma resolução espacial de 1.1 por 1.1 km e para o dia 15 de Julho de 2002 durante a campanha Veleta2002 144

Fig.5.9 – NDVI calculado com os canais 6 e 8 do SeaWIFS, para o dia 15 de Julho de 2002 durante a campanha Veleta 2002 145

Fig.5.10 - Reflectância da superfície para a banda 5 (545-565nm) do SeaWIFS, utilizando a eq.4.11 e para o dia 15 de Julho de 2002 146

Fig 5.11 - Retro trajectórias de 48horas calculadas para a Inhaca (A) e Skukuza (B), usando o modelo HYSPLIT (Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory), http://www.arl.noaa.gov/ready/HYSPLIT 148

Fig.5.12 Espessura óptica espectral para Inhaca e Sukuza, dia 31 de Agosto 2000 149

Fig.5.13 Função de fase dos aerossóis para a Inhaca e Skukuza, para o dia 31 de Agosto 2000 150

Fig.5.14 - Distribuição opticamente equivalente de dimensões e de volume dos aerossóis para a Inhaca e Sukuza para o dia 31 de Agosto de 2000 151

Fig.5.15 – :LUT (Look Up Table) para a A) Inhaca e B) Skukuza, usando a reflectancia de superfície de 10% 152

Fig.5.16 - Perfil vertical dos coeficientes de dispersão medidos por nefelómetro a bordo de um avião em dois pontos, ponto1 (latitude -22.73 e longitude 31.85), ponto 2 (latitude-22.66 e longitude 32.35) e ponto 3 (latitude -22.04 e longitude 33.0) 154

Fig.5.17 - Espessura Óptica espectral para os dias 13, 15 e 18 de Julho de 2002 em Armilla 156

Fig.5.18 - Espessura Óptica aos 440nm e o valor do coeficiente de Angstrom (alpha) para os dias 13, 15 e 18 de Julho de 2002 em Armilla 157

Fig. 5. 19 - Retro trajectórias de 48horas calculadas para a Armilla para o dia 18 de Julho de 2002, usando o modelo HYSPLIT (Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory), http://www.arl.noaa.gov/ready/HYSPLIT 157

Fig 5.20 - Distribuição de volume opticamente equivalente dos aerossóis observado no dia 18 de Julho de 2002 em Armilla 158

Fig.5.21 – Expoente de Angstrom obtido para o dia 18 de Julho de 2002, numa situação de aerossóis do deserto, na região de Armilla 159

Fig.5.22 – Espessura óptica aos 555nm obtida com o radiómetro SeaWIFS no dia 18 de Julho de 2002, na região de Armilla, numa episódio de aerossol desértico. 159

Fig.5.23 Espessura Óptica aos 440nm e o valor do coeficiente de Angstrom (alpha) para os dias 13 e 15 de Julho de 2002 em Armilla 160

Fig. 5.24 -Retro trajectórias de 48horas calculadas para a Armilla para o dia 13 de Julho de 2002 (A), dia 15 de Julho de 2002 (B), usando o modelo HYSPLIT (Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory), http://www.arl.noaa.gov/ready/HYSPLIT 160

Fig 5.25 Distribuição de volume opticamente equivalente dos aerossóis observado nos dias 13 e 15 de Julho de 2002 em Armilla 161

Fig.5.26 – Expoente de Angstrom obtido para o dia 15 de Julho de 2002, numa situação de aerossóis de aerossóis continental limpo, na região de Armilla 162

Fig.5.27 – Espessura óptica aos 555nm obtida com o radiómetro SeaWIFS no dia 15 de Julho de 2002, na região de Armilla. 162

Índice de Tabelas

Tabela 3.1- Bandas do SeaWIFS 77

Tabela 3.2- Bandas do MISR 79

Tabela 3.3 - Instrumentos e Localização 83

Tabela 3.4 - Localização das estações de observação com CIMEL (CE318) 88

Tabela 4.1 - Erro Médio Quadrático para diferentes reflectâncias da superfície para o comprimento de onda de 870 nm 108

Tabela 5.1 - Reflectâncias da superfície na região de Sukuza estimadas com o LANDSAT7 143

Tabela 5.2 - Melhor ajuste da reflectância da superfície para dois canais do SeaWIFS 146

Tabela 5.3 - Espessura óptica e parâmetros de Angstrom para Inhaca e Skukuza (31 de Agosto de 2000) 149

Tabela 5.4 - Valores Finais de Reflectância da Superfície 152

Tabela 5.5 - Comparação das espessuras ópticas AERONET/MISR 153

Tabela 5.6.-. Comparação dos parâmetros de Angstrom AERONET/MISR 153

Tabela 5.7 - Espessura óptica para o $\lambda = 450$ nm para três diferentes locais e comparação com os valores calculados com o nefelómetro 155

Tabela 5.8 - Comparação para Armilla, entre as espessuras ópticas aos 443 e 555nm e os coeficientes de Angstrom obtidos a partir de satélite e de observações à superfície (CIMEL) para 18 de Julho de 2002 (aerossóis do deserto 158

Tabela 5.9 - Comparação para Armilla, entre as espessuras ópticas aos 443 e 555nm e os coeficientes de Angstrom obtidos a partir de satélite e de observações à superfície (CIMEL) para 13 e 15 de Julho de 2002. 162

CAPÍTULO I

Motivação e Introdução

1.1. Introdução

São cada vez mais importantes as discussões em torno das alterações climáticas e dos seus impactos na vida dos homens no planeta, especialmente, no que se refere à saúde, à economia, à produção de alimentos, devendo constituir assim uma preocupação para a humanidade. No entanto, o clima tem variado, devido a causas naturais, ao longo da história da Terra, sendo de esperar que, no futuro, continue também a sofrer modificações. Convem por outro lado tentar investigar factores ligados à actividade humana e ao impacto que ela pode ter nas alterações climáticas. Baseado nas séries de observações que conduzem aos dados de clima, o Painel Intergovernamental das Alterações Climáticas (IPCC 2007) conclui que o aquecimento observado nos últimos 50 anos é atribuível a causas não naturais, isto é, à actividade humana.

Muitas das discussões sobre alterações climáticas referem os gases com efeito de estufa, cujo impacto no forçamento radiativo do clima é mais conhecido e há mais tempo referenciado, mas tendem a esquecer outros importantes componentes minoritários da atmosfera como é o caso dos aerossóis. Os aerossóis, partículas sólidas ou líquidas em suspensão na atmosfera, têm, no entanto, sido considerados como um dos maiores responsáveis pelas incertezas na estimativa do forçamento radiativo do clima, actuando na tendência da temperatura da superfície, a nível global, com um efeito contrário ao dos gases com efeito de estufa.

De notar, que a quantificação do forçamento radiativo para os aerossóis é mais complexa do que a quantificação do forçamento radiativo para os gases com efeito de estufa, já que a grande variabilidade espacial e temporal da concentração das partículas na atmosfera, a grande complexidade de misturas de diferentes composições químicas, e as diferentes formas e dimensões das partículas são difíceis de observar, monitorizar e

modelar para não mencionar a modificação das propriedades das nuvens quando com estas interactuam (forçamento radiativo indirecto e semi-directo). A variabilidade temporal e espacial deve-se, essencialmente, ao curto tempo de vida dos aerossóis atmosféricos, quando comparado com o tempo de vida de muitos gases com efeito de estufa, conduzindo a que a sua concentração na atmosfera esteja fortemente ligada às suas fontes.

Os aerossóis têm um impacto directo no forçamento radiativo, pela dispersão e absorção da radiação solar e infravermelha na atmosfera, e um impacto indirecto pelas alterações no processo de formação das nuvens, no seu albedo e no seu conteúdo de água, particularmente díficil de quantificar. A sua distribuição espacial e as propriedades radiativas das superfícies subjacentes, têm efeitos contrários no forçamento radiativo (sinais contrários) que produzem à superfície do Globo.

Assim, é necessário o conhecimento das propriedades físicas e químicas dos aerossóis para estimar o forçamento climático. Por outro lado, e face à grande variabilidade espaço-temporal dos aerossóis, o seu forçamento radiativo no clima é espacial, temporal e quantitativamente variável pelo que tem de ser investigado quer à escala global, quer à escala regional e local. Estas características conduzem a que os métodos de estudo dos aerossóis atmosféricos sejam variados, consoante se pretende estudar a sua composição química e/ou física à escala local, *"in situ"*, e/ou em toda a coluna atmosférica, ou, à escala regional, abrangendo regiões com propriedades radiativas distintas. Os diferentes métodos de estudo complementam-se, e ajudam a um melhor conhecimento das propriedades dos diferentes tipos de aerossóis.

Nos últimos anos têm-se multiplicado as campanhas observacionais com o objectivo de reduzir as incertezas do efeito dos aerossóis no balanço radiativo da Terra, sendo essenciais as observações, pois os modelos de aerossóis integram mal a diversidade de tipos e suas concentrações na atmosfera bem como as transformações que sofrem durante o seu transporte. As campanhas de observação permitem testar a validade dos modelos de aerossóis e aprofundar o conhecimento dos seus efeitos directos e indirectos num dado local (Russell et al, 1999, Raes et al, 2000). Permitem ainda acompanhar, no período de tempo duma campanha, a evolução dos aerossóis num dado local e interpretar, conhecidas as trajectórias e as condições sinópticas, os

diferentes tipos presentes associando-os aos tipos de massas de ar que atingem esse local.

Por outro lado, é cada vez mais importante recorrer à observação por satélite, à escala regional e/ou global, com o objectivo de estudar as características dos aerossóis. Este método de observação depende muito do tipo de satélite utilizado, das diferentes resoluções temporais e espaciais, do tipo de radiómetro a bordo do satélite e também dos diferentes métodos utilizados. É um grande desafio obter as propriedades dos aerossóis a partir do espectro de reflectância no topo da atmosfera (à altitude do satélite), exigindo-se, para este efeito: i) várias (mais de duas) bandas espectrais estreitas na região do vísivel e do infravermelho próximo; ii) um modelo rigoroso de transferência radiativa da radiação solar através da atmosfera até à altitude do sensor e iii) o conhecimento das características da superfície e dos modelos de inversão que relacionem as medidas do espectro solar no topo da atmosfera com as propriedades dos aerossóis. Em geral, as técnicas para obter as propriedades dos aerossóis atmosféricos por observação remota em satélites têm como objectivo obter as espessuras ópticas para diferentes comprimentos de onda e os parâmetros de Angstrom, os quais estão relacionados com a distribuição de dimensões das partículas. Para se obter o sinal dos aerossóis nas medidas realizadas por satélite torna-se necessário, primeiramente, conseguir separar as contribuições da atmosfera e da superfície; em seguida, é necessário separar a contribuição devida aos aerossóis da contribuição dos restantes constituintes minoritários atmosféricos. O grande problema é que, muitas vezes, a contribuição devida aos aerossóis é muito pequena comparada com a contribuição da superfície no sinal total medido no satélite, especialmente sobre terra, e sobre superfícies com maior reflectância. Sendo a reflectância no mar pequena (tende para zero a partir dos 600 nm) é normalmente sobre esta superfície que as observações são feitas. Sobre terra torna-se um problema de díficil resolução. Existem vários métodos para estimar a reflectância da superfície e tratar o sinal devido aos aerossóis. Contudo, os diferentes algoritmos e aproximações nem sempre dão resultados consistentes, (Kokhanovsky, A.A. et al, 2007). Em geral, todos os métodos utilizam suposições *"à priori"*, baseadas na descrição de modelos de aerossóis. Diferentes suposições e diferentes algoritmos aplicados aos mesmos dados de satélite podem resultar em diferentes estimativas das propriedades de aerossóis, (Kokhanovsky, A.A. et al, 2007).

Actualmente existem vários radiómetros a bordo de satélites, especialmente de orbita polar, com várias bandas estreitas na região do vísivel e do infravermelho próximo, em regiões do espectro solar com melhores condições para o estudo dos aerossóis. É o caso do MODIS, SeaWIFS, MISR, e outros, que nos últimos anos têm sido utilizados com esta finalidade. Infelizmente, satélites especialmente dedicados à meteorologia não consideraram prioritária a inclusão de canais essenciais para o cálculo de obtenção das propriedades dos aerossóis.

1.2. Motivação

Esta tese teve inicio durante a campanha ACE 2 ClearCOLUMN, primeira grande campanha internacional realizada em Portugal, na região sudoeste (Sagres e Fóia), com o fim de estudar os aerossóis atmosféricos, as suas propriedades radiativas e físicas e o fecho entre diferentes tipos de instrumentação, plataformas e modelos. Fiquei, desde logo, muito interessada e entusiasmada por participar nesta campanha bem como em me associar ao desenvolvimento de estudos dos diferentes tipos de aerossóis que atingem esta região de Portugal, as suas relações com os diferentes tipos de massas de ar, e os diferentes métodos utilizados. Este interesse e desejo de aprofundar o conhecimento sobre os aerossóis atmosféricos levou-me a participar em outras campanhas de observação, que considero importante para um melhor e mais profundo conhecimento das propriedades físicas e ópticas dos aerossóis atmosféricos e da sua influência no clima.

Os estudos prolongaram-se excessivamente por diversos anos, pois para além de me dedicar à realização desta tese, cumpri sempre e a tempo inteiro, as funções e tarefas que me foram atribuídas como meteorologista no Instituto de Meteorologia.

1.3. Objectivos da Tese

Durante esta tese foram utilizados diferentes métodos de estudo dos aerossóis atmosféricos, quer por observações *"in situ"*, quer por observação remota de superfície (espectorradiómetro portátil), quer por observação remota de satélite, tendo-se procedido à interpretação dos resultados abordando os problemas e as vantagens de cada um dos diferentes métodos.

O objectivo principal desta tese é a caracterização dos aerossóis atmosféricos numa região, recorrendo à obtenção das suas propriedades ópticas e físicas a partir da detecção remota de satélite sobre terra. Para a realização desta tarefa utilizou-se um modelo de inversão, CIRATRA (Coupled Inversion Radiation Transfer), (von Hoyningen-Huene, Wendisch, 1994) que foi modificado durante os estudos realizados para satisfazer os objectivos desta tese. Devido à dificuldade de estimar correctamente a reflectância da superfície e processar o sinal dos aerossóis atmosféricos, (resultante da diferença entre o sinal total que chega ao satélite e o sinal devido à atmosfera sem aerossóis, também afectada pela reflectância da superfície) sobre terra, têm-se utilizado muitos métodos e algoritmos. Os resultados obtidos são ainda pouco consistentes, (Kokhanovsky, A.A. et al, 2007). A contribuição original desta tese consiste no método que utiliza, onde não são impostas suposições *"à priori"* sobre o "tipo" de aerossóis, ou sobre as suas características como tendo sido o caso dos outros métodos. O modelo de inversão, CIRATRA; originalmente desenvolvido por von Hoyningen-Huene e Wendisch, 1994, foi alterado de modo a permitir a obtenção do índice de refracção complexo, parte real e imaginária tornando o programa mais versátil e permitindo assim caracterizar as propriedades microfísicas dos aerossóis a partir da obtenção das propriedades ópticas dos mesmos resultante de observações das radiâncias espectrais (directa e difusa) obtidas à superfície. Assim a caracterização do "tipo" de aerossóis recorreu, por um lado, às observações em duas geometrias de observação de espectrorradiómetros instalados à superfície e, por outro lado, ao algoritmo desenvolvido para aplicar as "look-up-tables", modificadas, caso a caso, consoante os "tipos" de aerossóis obtidos prèviamente a partir das observações remotas à superfície e, não de modelos de aerossóis pré-existentes, às observações de satélite. Assim, foi possível extrapolar o conhecimento do "tipo" de aerossol observado numa coluna atmosférica, num determinado local para uma região próxima desse local de observação, durante um tempo relativamente limitado.

Para além da caracterização das propriedades físicas dos aerossóis é importante quantificar os seus efeitos no forçamento radiativo do clima. Um dos "tipos" de aerossóis que atinge particularmente a região sul de Portugal, e cujo impacto no forçamento radiativo é considerado relevante, são os aerossóis oriundos do deserto, muito variável nas formas, nas dimensões e na sua composição química, dependendo

do tipo de solos que lhe dão origem. Durante a realização deste trabalho fez-se um estudo do impacto no forçamento radiativo, devido a este tipo de aerossol, no topo da atmosfera e à superfície. Neste caso, e porque as propriedades radiativas da superfície subjacente são determinantes no sinal do forçamento radiativo, foi dada particular atenção ao efeito da reflectância de superfície nos fluxos de radiação solar ascendente e descendente, que são observados ao nível do satélite (aproximadamente o Topo da Atmosfera) e à superfície do Globo.

1.4. Descrição da tese

A tese desenvolve-se em seis capítulos. Após o capítulo I (Motivação e Introdução) apresenta-se no capítulo II uma introdução teórica ao trabalho, onde se referem as principais propriedades ópticas e microfísicas dos aerossóis atmosféricos, em particular dos troposféricos, bem como as principais equações de transferência radiativa na atmosfera.

O capítulo III descreve as várias campanhas de observação e os instrumentos utilizados durante a realização deste trabalho.

O capítulo IV desenvolve as diferentes metodologias para a obtenção das propriedades ópticas e físicas dos aerossóis atmosféricos, recorrendo às medidas de radiância fornecidas por satélite, após retirada a contribuição da reflectância da superfície. Estas medidas de radiância observadas a partir de satélite são comparadas com as radiâncias estimadas, pelo modelo de transferência radiativa IMS de Nakajima e Tanaka, (Nakajima e Tanaka, 1988), ao nível do satélite, em função do "tipo" de aerossóis, prèviamente determinado a partir das medidas de radiância efectuadas à superfície com um espectrorradiómetro e do modelo de inversão CIRATRA. Para a comparação, entre os valores da radiância medidas no satélite e os valores estimados com o modelo de transferência radiativa IMS, é necessário ter ainda em conta a reflectância da superfície, que tem de ser estimada, a geometria solar e de observação do satélite. A estimativa da reflectância da superfície é uma componente essencial da metodologia, pois, como já foi referido, apresenta valores comparáveis à reflectância atmosférica, da qual se pretende retirar as propriedades e a carga dos aerossóis. Assim apresenta-se neste capítulo, por um lado, um estudo de sensibilidade do modelo CIRATRA modificado a variações de reflectância da superfície e, por outro lado, um

estudo da variação do fluxo ascendente e descendente de pequeno comprimento de onda à superfície e no topo da atmosfera, a variações da reflectância da superfície tendo como base um determinado tipo de solo, e para um aerossol do deserto. Este tipo de aerossol é um dos mais abundantes (Penner et al, 2001) a nível global e também um dos que mais afectam a Península Ibérica e Portugal Continental.

O capítulo V apresenta e interpreta os resultados obtidos referindo as dificuldades das diferentes abordagens no estudo dos aerossóis troposféricos. A metodologia utilizada para a obtenção das propriedades ópticas e físicas dos aerossóis, por observação remota em satélite sobre terra, foi aplicada aos aerossóis de longo curso, como sejam os aerossóis do deserto, os aerossóis resultantes de queimadas e os da poluição industrial e urbana oriunda de locais distantes da observações e a aerossóis de pequeno percurso. Os resultados desta metodologia mostraram ser bons quando comparados com valores das propriedades correspondentes obtidas a partir de observações com espectrorradiómetros à superfície ou mesmo com as observações das propriedades ópticas obtidas "localmente" a várias altitudes.

Finalmente o capítulo VI apresenta as conclusões mais importantes deste trabalho e propostas de algumas linhas de trabalho futuro, dado o enorme desafio que continua a ser o estudo e conhecimento dos aerossóis atmosféricos, especialmente o seu efeito no forçamento climático.

CAPÍTULO II

Aerossóis Atmosféricos

2.1. Introdução

Para o planeta Terra a energia solar é a fonte primária de energia. O balanço de energia da Terra, definido como a diferença entre a energia que entra e saí no topo da atmosfera, é quase totalmente responsável pelo estado do tempo quer à escala global quer à escala regional, e é a base dos diferentes climas da terra.

O chamado forçamento radiativo do sistema climático da terra, que conduz a variações do clima, é definido como uma alteração no balanço radiativo da terra, normalmente considerado no topo da atmosfera. Esta alteração pode ser devido a:

i) alterações da quantidade de energia que chega ao topo da atmosfera proveniente da fonte solar;

ii) alterações da composição da atmosfera ou das propriedades da superfície do globo, que fazem variar a quantidade de energia que chega ao topo da atmosfera proveniente do globo. A atmosfera tem um importante papel no balanço de energia pois toda a energia que entra ou sai no topo da atmosfera passa por esta, sofrendo, entre outros, fenómenos de dispersão e absorção.

A atmosfera da terra é constituída essencialmente por uma mistura de gases, cujas proporções se mantém aproximadamente constantes até aos 80 km de altitude. Para além das moléculas de diferentes gases encontram-se na atmosfera nuvens e partículas no estado líquido ou sólido, em suspensão, de diferentes tamanhos, formas e composição química e física, os aerossóis.

Os aerossóis atmosféricos têm um efeito significativo no balanço radiativo do sistema Terra-Atmosfera, afectando-o directamente por absorção e dispersão da radiação, e, indirectamente por causarem variação das propriedades microfísicas das nuvens e, consequentemente, da sua reflectividade, bem como do seu conteúdo em água e tempo de vida. Os aerossóis totalmente dispersores (com absorção nula da radiação) exercem um efeito negativo no forçamento radiativo no topo da atmosfera

(TOA), enquanto os aerossóis com absorção podem exercer um efeito negativo no forçamento no topo da atmosfera (TOA) se estiverem sobre superfícies com baixa reflectividade (superfícies escuras) ou um efeito positivo no TOA se estiverem sobre superfícies de grande reflectividade, como é o caso de desertos, superfícies cobertas de neve ou gelo, ou sobre nuvens, (Chylek and Wong, 1995; Haywood and Shine, 1995). Os aerossóis, para além de serem um factor do forçamento radiativo do planeta Terra, afectam também a redistribuição de energia na atmosfera. É, por exemplo, o caso de aerossóis provenientes de erupções vulcânicas que se concentram na estratosfera levando a um aumento de temperatura na estratosfera e uma diminuição à superfície (Bassett, J.R. et al, 1993); é também o caso de camadas de aerossóis do deserto que se concentram a uma dada altitude na troposfera, levando a um aumento de temperatura a esses níveis (Fouquart, Y., 1987; Leon, J.F. et al, 2001).

Ambos os efeitos radiativos, directos e indirectos, estão fortemente relacionados com as suas propriedades físicas (em particular as suas dimensões) e com a sua composição química. Devido à grande variabilidade espacial e temporal das suas propriedades físicas, químicas e ópticas, os aerossóis constituem uma das principais fontes de incerteza nos estudos do forçamento climático (Charlson et al, 1999; Lacis et al, 1992; Haywood and Ramaswamy, 1998).

A troposfera é a região da atmosfera junto da superfície da terra caracterizada por instabilidade termohidrodinâmica, onde a temperatura, em geral, diminui com a altitude. É onde ocorrem os principais fenómenos meteorológicos que caracterizam o clima e onde se situam as principais fontes de aerossóis. O curto período de vida dos aerossóis e a localização na superfície do globo da maioria das fontes das partículas, explicam a maior concentração dos aerossóis atmosféricos na troposfera, em especial junto da superfície, até uma altitude de 1 a 2 km, isto é, na chamada camada limite.

Os aerossóis têm origem na dispersão de materiais da superfície da Terra – aerossóis primários – ou têm origem na reacção de gases na atmosfera – aerossóis secundários (Jacob et al, 1995). As origens dos aerossóis primários são variadas: é o caso dos aerossóis com origem em erupções vulcânicas (no caso de erupções vulcânicas de grande intensidade podem ser lançadas partículas muito finas que atingem a estratosfera), ou aerossóis de poeiras com origem em tempestades de poeiras (típicas das regiões desérticas) ou em práticas agrícolas (origem em actividades

humanas), ou aerossóis marítimos com origem na rebentação das ondas oceânicas, ou aerossóis com origem na actividade humana (industria, transportes, aquecimento urbano, etc...) ou aerossóis com origem na combustão de matéria orgânica.

Os aerossóis ocorrem numa grande gama de dimensões e formas, concentrações, composição química, estado de mistura e fase (sólido, líquido, ou uma mistura). A maioria dos aerossóis cresce com a humidade relativa do meio ambiente e uma grande parte actua como núcleo de condensação ou de cristalização em nuvens.

Uma vez na atmosfera as partículas podem alterar a sua dimensão e composição por condensação, por evaporação, por coagulação com outras partículas, por reacções químicas ou por activação na presença de água em fase de supersaturação. O aerossol é uma mistura, sendo necessário distinguir entre mistura interna e externa. Na mistura interna a partícula individual consiste de uma mistura de espécies químicas, enquanto na mistura externa a partícula é constituída por várias substâncias químicas independentes. Pensa-se que os aerossóis junto das fontes existem como mistura externa e que com o envelhecimento tendem a tornar-se em mistura interna. Em qualquer lugar na atmosfera existe uma mistura de aerossóis de diferentes origens.

A concentração dos aerossóis na atmosfera resulta do balanço entre as suas fontes e os processos da sua remoção. Os processos de remoção dos aerossóis contribuem para a grande incerteza nos modelos de transporte global de aerossóis, particularmente as diferentes representações da remoção húmida dos aerossóis (Textor, C, 2005, Textor, C. et al, 2006). As partículas são removidas da atmosfera por dois mecanismos principais: deposição na superfície da Terra (deposição seca) e incorporação nas gotas das nuvens durante a formação das gotas de precipitação (deposição húmida)

2.2. Aerossóis Atmosféricos

2.2.1. Classificação dos Aerossóis Atmosféricos

Quando se pretende estudar os aerossóis atmosféricos depara-se com uma grande variedade de origens e fontes, composição química, características físicas e ópticas, e localização geográfica. Torna-se, pois, necessário definir diferentes tipos de

aerossóis consoante a sua origem, as suas diferentes propriedades, a sua distribuição espacial.

Devido ao facto dos aerossóis atmosféricos se apresentarem com uma grande gama de dimensões, com diâmetros a variarem de poucos nanómetro até à volta de 100 μm (*Seinfeld and Pandis, 1998*) uma das principais classificações de aerossóis baseia-se nas suas dimensões, (Junge, 1961). As partículas com diâmetro abaixo de 0.1 μm chamam-se "partículas de Aitken" e correspondem ao modo de nucleação; as com dimensões entre 0.1 e 1 μm, correspondem ao modo de acumulação, constituindo a maioria existente na atmosfera; as com dimensões acima de 1 μm são as chamadas partículas gigantes. Outras classificações baseiam-se na natureza da fonte que os produzem (naturais ou antropogénicos), ou na origem (marítimos, continentais rurais, "background" ou urbano, poeiras do deserto e queima de biomassa), ou consoante a localização na atmosfera (troposféricos e estratosféricos).

2.2.1.1. Aerossóis Estratosféricos

A estratosfera, camada da atmosfera a seguir à troposfera, é uma região de maior estabilidade dinâmica, de movimento predominantemente laminar, em que a temperatura aumenta com a altitude. Contrariamente ao que acontece na troposfera, o tempo de residência dos aerossóis estratosféricos é elevado, chegando a ser de anos, em que a sua variabilidade temporal e espacial não é tão grande. Em consequência os aerossóis estratosféricos apresentam propriedades bastante uniformes, pouco variavéis no tempo, excepto nos primeiros meses após uma erupção vulcânica forte, em que há lançamento de grande quantidade de gases e poeiras finas para a estratosfera conduzindo a um aumento da concentração de aerossóis de um factor multiplicativo de 100 (Fenn et al, 1985).

No caso de erupções vulcânicas a influência dos aerossóis estratosféricos no clima é grande, sendo notório a descida de temperatura da superfície da terra e da troposfera nos meses de Verão após uma erupção vulcânica, e um aumento da temperatura da estratosfera, como por exemplo, após a erupção do Monte Pinatubo, em Junho de 1991, a temperatura média global à superfície teve uma redução de 0.5°C e na

troposfera um aumento de 0.6°C, com o desvio maior um ano após a erupção. (Bassett, JR et al, 1993, Bugalho, L. et al, 1996).

A maior concentração de aerossóis na estratosfera encontra-se numa camada entre os 18-20km de altitude, chamada camada Junge (Junge, 1961), sendo a sua origem, essencialmente, a conversão gás partícula o que justifica a sua distribuição bastante uniforme sobre o globo. A espessura óptica dos aerossóis estratosféricos, não considerando os períodos de erupções vulcânicas, anda à volta de 0.004 para o comprimento de onda de 0.55μm (Sato et al, 1993, Bingen, C et al, 2004). Em comparação, para uma atmosfera limpa na troposfera, a espessura óptica dos aerossóis é muito variável com a localização geográfica, podendo variar entre 0.01 e 0.05 para o comprimento de onda de 0.55μm (*Lenoble, 1993*)

2.2.1.2. Aerossóis Troposféricos

É na troposfera que se concentram a maior parte dos aerossóis, chamados aerossóis troposféricos, e onde a sua variação temporal e espacial é grande, dependendo das condições de produção, transporte e remoção.

Os mecanismos de remoção dos aerossóis atmosféricos são bastante eficientes no modo de partículas finas e nas partículas grandes e ineficientes na gama de dimensões do modo de acumulação, pelo que estas últimas tendem a permanecer mais tempo na atmosfera.

O tempo de residência dos aerossóis troposféricos é muito curto, podendo variar de poucos minutos a poucas semanas. O modo de partículas finas, modo nucleação, que provém de processos de combustão ou condensação de gases recentemente emitidos, tem tempo de residência na atmosfera muito curto, inferior a 1 hora, pois coagulam muito rapidamente transformando-se em partículas maiores. (*Seinfeld and Pandis, 1998*)

Os aerossóis no modo de acumulação, com dimensões inferiores a 1μm, formam-se por processos de conversão gás partícula, por coagulação das partículas mais pequenas, por condensação de espécies voláteis ou constituídos de partículas de poeiras. São os mais abundantes na atmosfera, tendo tempo de residência mais longo, de alguns dias a poucas semanas. (*Seinfeld and Pandis, 1998*).

As partículas "grosseiras", com diâmetros superior a 1.μm, são normalmente formadas por processos mecânicos, caso de partículas de "sea-salt" ou de "poeiras" natural, cujas velocidades de sedimentação são elevadas, sendo o tempo de permanência na atmosfera pequeno, da ordem de poucos dias.

Devido ao pequeno tempo de residência dos aerossóis troposféricos na atmosfera e, porque a distribuição geográfica das fontes das partículas é muito heterogénea, estes aerossóis apresentam normalmente concentração e composição química muito variáveis.

Os aerossóis da gama 0.01-0.1μm têm um importante papel na formação das nuvens permitindo a condensação (ou sublimação) do vapor de água, (*Seinfeld and Pandis, 1998*). No entanto, do ponto de vista da radiação os aerossóis importantes são os de diâmetros entre 0.1-1.0μm, pois os mais pequenos, embora numerosos, têm pequena influência individual, definida pela sua eficiência em dispersar a radiação, enquanto os maiores, com forte impacto individual na dispersão da radiação, apresentam baixas concentrações na atmosfera, (*Seinfeld and Pandis, 1998*).

No que respeita à sua composição química os aerossóis troposféricos podem conter na sua composição química sulfatos, amónio, nitratos, sódio, cloretos, metais, material carbonoso, elementos da crosta e água. O material carbonoso dos aerossóis consiste em carbono orgânico ou em carbono elementar. O carbono elementar é também chamado de carbono negro "black carbon", grafite ou "soot", e é emitido directamente para a atmosfera predominantemente por processos de combustão. O carbono orgânico é emitido directamente ou resulta duma condensação atmosférica de gases orgânicos de baixa volatilidade. As emissões antropogénicas de aerossóis para a atmosfera têm aumentado drasticamente desde o século passado e tem tido implicações na saúde humana, na redução de visibilidade em particular nos centros urbanos ou áreas metropolitanas regionais, na deposição ácida e na perturbação do balanço de radiação do nosso planeta. Mesmo nas regiões mais remotas a composição do aerossol apresenta ainda os sulfatos como o constituinte mais importante, seguido do carbono orgânico e do carbono elementar (Bodhaine, B.A., 1995).

2.2.2. Massas de Ar e Tipos de Aerossóis em Portugal Continental

As massas de ar adquirem características de temperatura e de conteúdo de vapor de água das regiões de origem, ou de maior permanência, sendo, no entanto, modificadas durante o transporte que sofrem na atmosfera. A classificação das massas de ar faz-se, tendo em atenção a sua região de origem, as influências sofridas durante o seu deslocamento e o seu comportamento termodinâmico.

Portugal, devido à sua situação geográfica, a sudoeste da Península Ibérica e a leste do Oceano Atlântico, e à circulação geral predominantemente do quadrante oeste, é fortemente influenciado por massas de ar marítimo, quer polar quer tropical. Durante o Inverno sofre, frequentemente, a influência de massas de ar polar marítimo, frio após a passagem de superfícies frontais frias, ou quente, transportado na circulação do anticiclone dos Açores, quando este se localiza a norte dessas ilhas e com o eixo na direcção Noroeste/Sueste. Durante os meses mais frios de Inverno, e, originando as temperaturas mais baixas, Portugal Continental sofre também a influência de massas de ar polar continental frio, transportadas na circulação dum anticiclone muito desenvolvido, centrado no Norte da Europa, anticiclone da Sibéria, e estendendo-se em crista sobre a Península Ibérica, ou quente, quando o anticiclone se estende em crista até ao Mediterrâneo. A massa de ar tropical marítima ocorre todo o ano, quando o Anticiclone dos Açores está centrado sobre as ilhas ou antes da passagem de superfícies frontais frias. Durante o Verão, Portugal Continental encontra-se, com frequência, sobre a influência de massas de ar tropical continental transportada na circulação do Anticiclone dos Açores quando se estende em crista para o sul de França, ou da depressão de origem térmica localizada no centro da Península Ibérica. Nestas situações, faz-se sentir a influência da massa de ar tropical continental, quente e seca, oriunda do deserto do Sahara, especialmente no sul de Portugal e por períodos de uma a duas semanas (Carvalho, R., 1998).

As massas de ar transportam diferentes tipos de aerossóis, juntando aos oriundos das regiões de origem os resultantes de contaminação nas regiões por onde passam. É o caso de massas de ar marítimo que passam sobre regiões industrializadas, contaminando-se com aerossóis dessas regiões (Santos, D., 2008).

Os aerossóis contidos numa massa de ar são transportados na sua circulação e modificados por transformações químicas e físicas. Por exemplo, a deposição, seca ou húmida, durante o transporte altera a distribuição de dimensões duma população de partículas e, várias reacções químicas se podem dar entre os constituintes dum aerossol. Apesar destas transformações, e, não sendo possível recorrer a observações ou técnicas de monitorização lagrangeana dos aerossóis com o sentido de os associar às fontes que lhes deram origem, recorre-se à identificação das origens e trajectórias das diversas massas de ar para identificar numa dada região diferentes tipos de aerossóis que são por elas transportados (Belo, Nuno, 2004).

A caracterização dos diferentes tipos de aerossóis pode ser feita com vantagem pelas suas propriedades ópticas, especialmente recorrendo aos parâmetros de turvação de Angstrom (α,β), (von Hoyningen-Huene, 1994, A.Bodhaine, 1995), derivados de medições de espessura óptica espectral dos aerossóis, $\delta_{aer}(\lambda)$. Da relação entre o expoente de Angstrom, α, e a espessura óptica aos 1 μm, chamado coeficiente de Angstrom, β, pode-se classificar diferentes tipos de aerossóis, (Elias, T., et al, 2006, Dubovik, O. et al, 2002):

- marítimos, com valores muito baixos do expoente de Angstrom (inferiores a 1, entre 1.0 e -0.5) e também valores baixos de β, em geral abaixo de 0.2;
- continentais com valores mais elevados de α, a variar entre 1.0 e 2.0, mas com valores de β muito variáveis, mas em geral entre 0.1 e 0.4;
- aerossóis de poeiras do deserto com valores baixos de α, (inferiores a 1, em geral, inferiores a 0.5), mas com valores muito elevados de β, podendo atingir valores próximos de 1.0, dependendo da concentração de poeiras do deserto.
- aerossóis resultantes de fogos florestais com valores elevados de α (em geral, superiores a 1.2) e com valores de espessura óptica muito elavados (superior a 0.3 para os 441nm).

Uma massa de ar tem características de temperatura e humidade bem definidas em função da região de origem, pelo que a monitorização destes elementos meteorológicos é importante numa campanha de observação de aerossóis numa dada região; do mesmo modo é importante o estudo de trajectórias que indicam a variação da posição, num sistema de coordenadas, em geral coordenadas geométricas, das partículas numa dada massa de ar. No entanto, as trajectórias não nos dão informação

exacta da fonte do aerossol, pois nada indica sobre as modificações químicas durante o transporte pela massa de ar. Contudo, para uma dada região, a ligação entre o tipo de massa de ar, o trajecto desta e o tipo de aerossol fornecido a partir da espessura óptica e dos parâmetros de Angstrom pode dar uma indicação útil sobre o padrão de variação temporal dos aerossóis. Foi o que se observou, por exemplo, na campanha ACE2, em Sagres e em Foia, onde, com a entrada da brisa marítima se registou a variação diurna das características ópticas dos aerossóis (Bugalho, L., et al, 1997).

2.2.3. Importância dos Aerossóis nos Estudos de Clima.

Nas últimas décadas, as investigações sobre o forçamento radiativo do sistema climático mostraram que a incerteza associada ao efeito dos aerossóis atmosféricos era grande, podendo as estimativas do forçamento radiativo devido aos aerossóis ser da ordem de grandeza do de gases com efeito de estufa, mas de sinal contrário, quando consideradas globalmente (IPCC, 2007). Os aerossóis atmosféricos podem influenciar o clima quer directamente, quer indirectamente, pela sua influência na variação das propriedades microfísicas e ópticas das nuvens, sendo o efeito directo mais bem compreendido, apesar do efeito devido à absorção da radiação pelos aerossóis ser ainda alvo de investigações. A absorção da radiação pelos aerossóis altera a distribuição de radiação na atmosfera, em particular a distribuição vertical, fazendo variar o gradiente vertical de temperatura da atmosfera, e a quantidade de energia que chega à superfície.

Dado que os aerossóis, de diferentes origens, têm, normalmente do ponto de vista da sua interacção com a radiação um maior efeito na gama espectral dos pequenos comprimentos de onda, ou seja na gama da radiação solar, é habitual definir e quantificar o seu efeito em termos do seu forçamento radiativo directo, designado por forçamento radiativo solar dos aerossóis.

A influência dos aerossóis atmosféricos na variação do fluxo radiativo solar no topo da atmosfera, pode ser expressa pela seguinte expressão que fornece o forçamento radiativo solar médio global no Topo da Atmosfera ΔF, em função de parâmetros geofísicos (S_0, T, A_c, Rs) e dos aerossóis (δ_{aer}, ω_0 e β_{scat}) e obtida usando a expressão simplificada (Haywood and Shine, 1995; Chylek and Wong, 1995):

$$\Delta F = -\frac{1}{2} S_o T^2 (1 - A_c) \underline{\delta_{aer}} \left[\underline{\omega_0 \beta_{scat}} (1 - R_s)^2 - 2(1 - \omega_0) R_s \right] \quad \textbf{eq.2. 1}$$

onde S_0 é a constante solar, T a transmissividade da atmosfera acima da camada de aerossóis, A_c a fracção da atmosfera coberta por nuvens e R_s o albedo da superfície. Os parâmetros dos aerossóis, sublinhados, são:

- ◊ a espessura óptica, δ_{aer}, que representa a extinção total (absorção e dispersão) na coluna devido aos aerossóis, directamente relacionada com a carga total de aerossóis na coluna atmosférica, e que regula a magnitude do forçamento radiativo devido aos aerossóis,
- ◊ o albedo de dispersão simples, ω_0, que representa o balanço entre dispersão e absorção da radiação na atmosfera, ou seja, relacionado com a capacidade de absorção dos aerossóis na atmosfera,
- ◊ e a fracção hemisférica ascendente de dispersão, β_{scat}, que indica a quantidade de energia que é dispersa para o espaço e que não atinge a superfície do globo.

Estes dois últimos parâmetros determinam o sinal desse forçamento, e, para um dado valor do albedo da superfície, R_s, a camada de aerossóis pode contribuir para um aumento ou diminuição da temperatura da atmosfera.

No entanto, o problema não deve ser equacionado apenas em termos médios globais pois:

1) Contrariamente aos gases com efeito de estufa, globalmente uniformes, as concentrações de aerossóis são altamente variáveis no espaço e no tempo.

2) O forçamento devido aos gases com efeito de estufa, com efeito predominante na radiação de grande comprimento de onda, actua dia e noite, enquanto o forçamento radiativo solar devido aos aerossóis acontece apenas durante o dia.

3) O tempo de residência dos aerossóis na troposfera é grosseiramente de 1 a 2 semanas; se todas as fontes de SO_2 fossem fechadas hoje, o forçamento climático dos aerossóis de sulfato desapareceria do planeta em 2 semanas. Pelo contrário, o tempo de residência dos gases com efeito de estufa é medido em décadas ou séculos, (Theodore, J. 1995). Assim, se parassem hoje as emissões de aerossóis e de CO_2 o sistema climático continuaria a responder à quantidade acumulada de CO_2 na atmosfera.

2.3. Propriedades dos Aerossóis Troposféricos

A radiação electromagnética propaga-se no vácuo sem alteração das suas características. No caso da propagação se realizar através dum meio não opaco sofre atenuação devido à absorção e à dispersão resultantes da interacção da radiação com moléculas ou partículas. A absorção depende fundamentalmente da composição química da partícula, isto é da natureza da partícula, que é indicado pela parte imaginária do seu índice de refracção, e da sua forma. A dispersão depende, fundamentalmente, para além da forma e da composição química, do seu raio, do comprimento de onda da radiação incidente e da geometria de observação.

O conhecimento das propriedades ópticas dos aerossóis atmosféricos é essencial para o estudo dos seus efeitos no balanço da radiação e no clima. Para a resolução da equação de transferência radiativa na região do espectro de radiação de pequeno comprimento de onda, radiação solar, necessária para o balanço radiativo solar, é importante conhecer as características dos aerossóis na coluna atmosférica, especialmente a espessura óptica dos aerossóis, relacionada com a carga de aerossóis na atmosfera, a função de fase, relacionada com as características de dispersão dos aerossóis, e o albedo espectral de dispersão simples nessa região do espectro de radiação, relacionado com as características da absorção dos aerossóis. As propriedades ópticas dos aerossóis na coluna atmosférica dependem da sua distribuição de dimensões, do índice de refracção, que se relaciona com a sua composição química, da forma das partículas, e, também, da sua distribuição espacial, em particular da sua distribuição vertical.

2.3.1. Propriedades Microfísicas e Químicas dos Aerossóis.

O espectro de dimensões dos aerossóis, a sua forma, assim como o seu índice de refracção complexo, são as propriedades físicas e químicas mais importantes, que determinam as suas propriedades ópticas, como veremos na secção 2.3.2.

2.3.1.1 Distribuição de Dimensões dos Aerossóis

O conhecimento das dimensões das partículas é importante, pois muitas propriedades físicas como o volume, a massa e as características cinéticas, como a velocidade, dependem das dimensões destas (Hinds, 1999). Os mecanismos de remoção das partículas na atmosfera dependem fortemente das suas dimensões.

A distribuição de dimensões é o número de partículas por unidade de raio (ou diâmetro), e, por unidade de superfície, quando referida a toda a coluna, ou por unidade de volume, no caso de medições locais"in situ". A distribuição de dimensões referida a toda a coluna atmosférica pode ser obtida por inversão das observações fotométricas designando-se por distribuição de dimensões ópticamente equivalente, como será visto no capítulo IV, em 4.2.

É difícil medir a distribuição de raios (ou diâmetros) dos aerossóis, pois os diferentes métodos de medição alteram a distribuição real destas. Assim, o método utilizado para a medição da distribuição de diâmetro das partículas deve ser sempre indicado. Por exemplo, utilizando o método de contador óptico de partículas simples ou espectrómetro, em que o resultado é a contagem dum número de partículas com diâmetro opticamente equivalente, este pode conter uma multiplicidade de diâmetros reais para o mesmo diâmetro ópticamente equivalente, caso os valores do índice de refracção sejam diferentes.

Função de Distribuição

Devido às dimensões das partículas na atmosfera se distribuírem por várias ordens de grandeza, a escala logarítmica é a mais apropriada para a sua representação gráfica, sendo a distribuição do número de partículas, com unidade $\mu m^{-1}\ cm^{-3}$, dada por:

$$n(r_p) = \frac{dN(r_p)}{d\log r_p} = \frac{1}{r_p}\frac{dN(r_p)}{dr_p} \qquad \textbf{eq.2. 2}$$

onde r_p é o raio da partícula e $dN(r_p)$ é o número de partículas com raios compreendidos entre r_p e r_p+dr_p.

O número total de partículas é proporcional ao integral da função de distribuição do número de partículas pelo seu raio (Junge, 1963; Berry, 1967; Whitby e tal, 1972),

$$N = \int_0^{\infty} n(r_p)\, d \log r_p \qquad \textbf{eq.2. 3}$$

que representa o número de partículas por unidade de volume de ar, ou seja, a concentração, com unidade de [cm^{-3}]. Na prática $N = \int_{r\,min}^{r\,max} n(r_p) d \log r_p$ em que *rmin* é o raio mínimo observado e *rmax* o maior raio observado

A função de distribuição, $n(r_p)$, tem duas variáveis independentes, para além das coordenadas do espaço e do tempo, que são o diâmetro (ou raio) da partícula e a sua composição química. Para cada espécie química pode definir-se uma função de distribuição $n_i(r_p,x,y,z,t)$ que representa o número de partículas da espécie i com raio, r_p, entre r_p e r_p+dr_p, a posição x,y,z, e tempo, t. A função de distribuição total dos aerossóis pode ser expressa como a soma de todas as espécies químicas (Husar, R, 1976). Pressupõe-se, neste caso, que os aerossóis são compostos por mistura externa, isto é, diferentes partículas têm diferentes componentes, não se aplicando ao caso de mistura interna em que as partículas contêm mais de um componente.

Considerando, por exemplo, a função de distribuição de massa m_i, como uma relação da função de dimensões n_i,

$$m_i = \frac{4}{3}\pi\rho_i r_{pi}^{\,3} n_i \qquad \textbf{eq.2. 4}$$

Onde r_{pi} é o raio da partícula considerada esférica, ρ_i é a sua massa específica. A função de distribuição de massa total é definida por:

$$m(r_p,x,y,z,t) = \sum_i m_i(r_{pi},x,y,z,t) \qquad \textbf{eq.2. 5}$$

Dado que o diâmetro dos aerossóis é variável com a humidade relativa do ar, a função de distribuição (eq2.2) vai também depender desta grandeza.

Há diversas funções de distribuição usadas para modelar a distribuição dos aerossóis em função do espectro de dimensões. As mais comummente usadas são: a distribuição log-normal, a distribuição da lei de potência (Junge) e a distribuição Gamma modificada.

Função de Distribuição Log-Normal

Um conjunto de partículas tem uma distribuição log-normal se o logaritmo do seu valor for normalmente distribuído. No caso da distribuição de número de partículas temos:

$$\frac{dN(r_p)}{d\log r_p} = \frac{N}{(2\pi)^{1/2}\log\sigma_g}\exp\left(-\frac{(\log r_p - \overline{\log r_p})^2}{2\log^2\sigma_g}\right) \qquad \textbf{eq.2. 6}$$

onde $\overline{\log r_p}$ representa a média da distribuição e σ_g^2 representa a sua variância; $\overline{r}_p$ corresponde ao valor da mediana dos raios e N ao número total de partículas de aerossol. O valor de σ_g é chamado o desvio padrão geométrico e é igual à razão entre o raio abaixo do qual se encontram 84.1% das partículas e o valor da mediana dos raios das partículas. Esta distribuição aplica-se a cada um dos compenentes do aerossol na atmosfera (Deepak and Gerber, 1983).

O número de modos de uma distribuição log normal pode ser modelado a fim de representar precisamente os aerossóis em situações reais (*Seinfield e Pandis, 1998*)

Uma das propriedades da distribuição log-normal é a distribuição de superfície e de volume também o ser e com o mesmo desvio padrão geométrico, σ_g.

É apontado por vários autores (Hess et al, 1998; Remer et al, 1998) que a distribuição de número dos aerossóis atmosféricos pelo seu raio segue, normalmente, uma distribuição log-normal bimodal.

Função de Distribuição da Lei de Potência (Junge)

Outra função matemática para descrever a distribuição do número de partículas pelo seu raio, nos aerossóis atmosféricos, é a função de distribuição da lei de potência de Junge representada por:

$$\frac{dN(r_p)}{d\log r_p} = C(r_p)^{-\upsilon} \qquad \textbf{eq.2. 7}$$

em que C e υ são constantes. Se se fizer o gráfico desta distribuição em coordenadas log-log o resultado é uma linha recta com declive $-\upsilon$; se r_p=1μm, então ($dN/d\log r_p$)=C, para todos os valores de υ. A constante C é fixada pelo número total de partículas, N, calculada pela eq.2.3.

Esta função de distribuição prossupõe que a concentração de aerossóis na atmosfera tem uma diminuição monótona com o aumento do valor do raio das partículas. Esta suposição não é geralmente verdadeira na atmosfera, pelo que esta função de distribuição deve ser aplicada com precaução e apenas a partículas com valores de diâmetro superiores a 0.1 μm.

O expoente υ, chamado expoente de dimensão por se relacionar com a distribuição de dimensões das partículas, deve ter um valor entre 2 e 5, (Pruppacher and Klett, 1980), para compreender a maioria das partículas de pequenas dimensões. O valor inferior corresponde a partículas maiores e o superior a partículas mais pequenas. Como veremos adiante, este expoente está relacionado com o chamado expoente de Angstrom, α, em que, pela relação $\upsilon=\alpha+3$, α indica a proporção entre partículas grandes e pequenas,. Curcio (1961) determinou que a maioria das distribuições de dimensões dos aerossóis pode ser bem representada por um compósito de duas distribuições de dimensões consistindo duma distribuição de tipo de Junge mais uma composta de grandes partículas. M.D.King et al, (1978) refere que aproximadamente 50% das distribuições analisadas eram bem representadas por um compósito duma distribuição de Junge mais uma distribuição de partículas relativamente grandes com raios centrados a cerca de 0.5 μm

A distribuição da lei de potência (Junge) quando aplicada a uma distribuição de do número de partículas pelo seu raio dá um resultado razoável, mas o mesmo não acontece quando aplicada a uma distribuição de superfície ou de volume. Vários estudos indicam uma sobrevalorização do volume de partículas "pequenas" e uma subvalorização do volume de partículas "grandes"

A principal vantagem da distribuição da lei de potência é a sua simplicidade, mas é muitas vezes inadequada para a descrição dos aerossóis atmosféricos. Esta

distribuição pode ser razoavelmente adaptada à distribuição de número dos aerossóis atmosféricos pelo seu raio, contudo é inadequada à distribuição de superfície e de volume.

Função de Distribuição Gamma Modificada

Esta função de distribuição é algumas vezes usada para representar a distribuição de dimensões em aerossóis estratosféricos. A função de distribuição gamma modificada foi proposta por *Deirmendjian (1969)*. A forma da função é:

$$\frac{dN\ (r_p)}{d\ \log\ r_p} = C\ (r_p)^{\upsilon}\ \exp(\ -Br^{\ \gamma}) \qquad \textbf{eq.2. 8}$$

onde C, B, υ e γ são constantes positivas. Se $\gamma = 1$ reduz-se a uma distribuição gamma. A constante C está relacionada com a concentração de partículas, N, e B, υ e γ determinam a forma da distribuição

2.3.1.2 Forma das Partículas de Aerossóis

Para além da dimensão das partículas as propriedades ópticas dos aerossóis atmosféricos dependem também da sua forma e composição química.

As dimensões das partículas atmosféricas são muitas vezes representadas por um diâmetro, implicando serem esféricas, o que na atmosfera não é verdadeiro. Na pratica, as dimensões das partículas de formas irregulares é expressa em termos dum diâmetro equivalente que depende mais das propriedades físicas que das geométricas. O diâmetro equivalente é definido como o diâmetro duma partícula esférica, que teria para uma determinada propriedade física, o mesmo valor que o da correspondente partícula. (Hinds, 1999).

Há diferentes tipos de diâmetros equivalentes. Um dos mais frequentemente usados é o diâmetro aerodinâmico, D_a, o qual é definido como o diâmetro duma esfera de massa volúmica igual a 1 g cm^{-3}, e com a mesma velocidade no ar que a partícula em causa. O seu valor pode ser calculado através de:

$$D_a = D_g k \sqrt{\frac{\rho_p}{\rho_o}} \qquad \textbf{eq.2. 9}$$

onde D_g é o diâmetro geométrico da partícula, ρ_p é a massa volúmica da partícula, ρ_o é a massa volúmica de referência (1g cm^{-3}) e k é um factor de forma, que é 1 para o caso da esfera. Por causa do efeito da densidade da partícula no diâmetro aerodinâmico, uma partícula esférica de alta densidade terá um diâmetro aerodinâmico maior que o seu diâmetro geométrico.

A grande importância da forma das partículas relaciona-se com o facto da principal teoria de dispersão e/ou absorção por partículas, teoria de Mie, só apresentar solução analítica para a hipótese de partículas esféricas. No entanto, na atmosfera, os aerossóis apresentam formas muito variadas, especialmente observadas em aerossóis de poeiras do deserto ao microscópio electrónico (SEM- scanning electron microscopy, e TEM- transmission electron microscopy).

A teoria de partículas não esféricas está sómente desenvolvida para algumas formas bem definidas, tais como elipsoides e cilindrícas, iluminadas prependicularmente ao seu eixo (van de Hulst, 1957). A luz dispersa por partículas não esféricas pode ser obtida com o uso de modelos semi empiricos de dispersão como o de Pollack e Cuzzy (1980). Nos últimos anos têm havido progressos em algoritmos avançados para calcular a dispersão por partículas não esféricas, (Mishchenko et al, 2000). Vários estudos, incluindo experiências em laboratório, têm sido feitos de forma a estudar a dispersão por partículas não esféricas (Li Liu et al, 2003). A dispersão da luz por partículas não esféricas depende fortemente das suas formas partículares. Em termos práticos, a forma dum aerossol é por vezes apresentada por factores de forma.

Os aerossóis atmosféricos exibem grande variedade de formas, normalmente não esféricas, com grandes fracções de poeiras e matérias fibrosas (Kaufman et al, 1994; von Hoyningen-Huene and Posse, 1997). No entanto, a dispersão da radiação visível por aerossóis de dimensões sub-micrométricas é calculada com boa aproximação pela teoria de Mie, o mesmo acontecendo com partículas maiores inseridas numa atmosfera com humidade relativa superior a 80% (von Hoyningen-Huene and Posse, 1997).

2.3.1.3 Índice de Refracção

O índice de refracção dos aerossóis é muito dependente da sua composição química.

Os parâmetros chaves que governam a absorção e dispersão da luz por uma partícula são o comprimento de onda (λ) da radiação incidente, a dimensão da partícula, usualmente expresso por um parâmetro adimensional, $\alpha_M = \pi D_p/\lambda$, e o índice de refracção complexo N_m=n+ik, (propriedade óptica da partícula, relativa ao meio ambiente). Quer a parte real do índice de refracção, n, quer a parte imaginária, k, são funções do comprimento de onda e estão relacionadas respectivamente com a dispersão e com a absorção. Quanto maior a parte real do índice de refracção, n, mais o feixe incidente é afectado pela mudança do meio de propagação, ou seja, maior a dispersão. Quanto maior for a parte imaginária mais o aerossol absorve a radiação incidente.

Normalmente o índice de refracção, N_m, é normalizado pelo índice de refracção do meio, N_0, $m=N_m/N_0$, onde o meio a considerar é o ar. Como para o ar o índice de refracção é praticamente igual à unidade, N_0=1.00029+0i para o comprimento de onda de 589 nm, N_m e m são praticamente idênticos.

Para a banda entre os 400 e os 700 nm a água é considerada não absorvente, visto que a parte imaginária do índice de refracção é muito próxima de zero (da ordem de 10^{-9}). O mais importante componente absorvente das partículas atmosféricas é o carbono elementar ("soot"), reflectindo-se no valor da parte imaginária, k, relativamente elevado. O índice de refracção proposto por Shettle & Fenn, (1975), para a água é de m = 1.333 -10^{-9}i e para o carbono elementar ("soot") é de m = 1.75 - 0.44i

A parte real do índice de refarcção é, geralmente, mais bem determinada, porque a incerteza introduzida nas características da dispersão pela incerteza do índice de refracção é, em regra, muito menor que a incerteza devido à informação insuficiente sobre a distribuição de dimensão das partículas. A maior dificuldade consiste na determinação da parte imaginária do índice de refracção, a qual está relacionada com a absorção da radiação pelos aerossóis.

Se um aerossol é constituído por uma mistura interna uniforme, cada partícula contem uma dada percentagem de cada componente, e o seu índice de refracção é uma média pesada dos índices de refracção dos seus componentes individuais. Se o aerossol é constituído por uma mistura externa cada componente é uma substância pura, com o seu próprio índice de refracção e, neste caso é importante conhecer a distribuição de dimensões, por componente.

Estudos têm mostrado que os erros no índice de refracção que decorrem da suposição que a partícula é homogénea, são inferiores a 20% (Sloane, 1983). O valor médio do índice de refracção, $\overline{m}$, para um aerosol contendo n componentes é calculado por $\overline{m} = \sum_{i=1}^{n} m_i f_i$ onde m_i é o índice de refracção do componente i e f_i é a fracção de volume do componente i.

2.3.2. Propriedades Ópticas dos Aerossóis

2.3.2.1 Propriedades Ópticas de uma Partícula

A absorção e a dispersão são formas de interacção da luz incidente com o meio, partículas e moléculas. Estes dois fenómenos em conjunto conduzem à extinção da radiação transmitida.

As propriedades ópticas de uma partícula, importantes para os estudos dos aerossóis atmosféricos, são os coeficientes de eficiência de dispersão, Q_{scat}, e de absorção, Q_{abs}, e, portanto, de extinção, e a distribuição angular da radiação dispersa descrita pela função de fase natural, P. Uma outra propriedade importante para alguns estudos, mas que não vamos utilizar neste trabalho, é a distribuição angular da radiação polarizada devido a uma partícula.

Em 1908, Mie, resolveu as equações de Maxwell, que descrevem a radiação electromagnética, para o caso duma onda plana incidente numa esfera, estabelecendo a chamada teoria de Mie para a dispersão por partículas esféricas. A teoria de Mie assenta no formalismo matemático que permite tratar a interacção entre a radiação electromagnética e as partículas consideradas esféricas, homogéneas e isotrópicas, de dimensões semelhantes ao do comprimento de onda da radiação incidente. Neste caso, a radiação dispersa é uma função do ângulo de observação, índice de refracção, e do chamado "pârametro óptico de dimensão", ou parâmetro de Mie, definido como $\alpha_M = 2\pi r_p/\lambda$, onde r_p é o raio da partícula, e λ é o comprimento de onda da radiação incidente. Para um mesmo índice de refracção, m, as propriedades ópticas são constantes se α_M for constante, ou seja, se a relação r_p/λ for constante

O "parâmetro óptico de dimensão", adimensional, pode ser usado para distinguir diferentes regimes de dispersão. Se:

- $\alpha_M << 1$ – quando as partículas são muito menores comparadas com o comprimento de onda da luz incidente, a interacção é puramente dipolar e a dispersão da luz faz-se segundo a teoria de Rayleigh, e designa-se por dispersão de Rayleigh;
- $\alpha_M \approx 1$ – quando a dimensão das partículas é aproximadamente da mesma ordem de grandeza que o comprimento de onda da luz incidente, a dispersão pode ser estudada aplicando a teoria de Mie, e designa-se por dispersão de Mie;
- $\alpha_M >> 1$ – a dispersão é governada pela óptica geométrica, difracção, refracção e reflexão, e designa-se por dispersão geométrica.

Pode admitir-se que a grande maioria dos aerossóis atmosféricos (modo de acumulação), supondo que são esféricos, se encontram nas condições da dispersão de Mie.

2.3.2.1.1 Dispersão e Absorção por uma Partícula. Teoria de Mie

A energia dispersa por uma partícula é proporcional à intensidade de energia incidente, sendo a constante de proporcionalidade a secção eficaz de dispersão da partícula, $\sigma_{scat}(r_p,\lambda, m)$, expressa em m^2. O mesmo se aplica à energia absorvida, definindo a secção eficaz de absorção, $\sigma_{abs}(r_p,\lambda, m)$, e à energia extinta, absorvida e dispersa, definindo a secção eficaz de extinção, $\sigma_{ext}(r_p,\lambda, m)$. A secção eficaz de extinção, $\sigma_{ext}(r_p,\lambda, m)$, pode ser expressa por:

$$\sigma_{ext}(r_p,\lambda,m) = \sigma_{scat}(r_p,\lambda,m) + \sigma_{abs}(r_p,\lambda,m) \qquad \textbf{eq.2. 10}$$

Por sua vez a secção eficaz de dispersão de uma partícula está relacionada com o coeficiente de eficiência de dispersão, $Q_{scat}(r_p,\lambda, m)$, adimensional, através da relação $\sigma_{scat}(r_p,\lambda, m)/A$, onde A é a área da projecção geométrica da secção da partícula, que no caso de ser esférica é πr^2. Do mesmo modo pode relacionar-se a secção eficaz de absorção de uma partícula com os coeficientes de eficiência de absorção, $Q_{abs}(r_p,\lambda,m)$.

A teoria Mie pode servir como a base dum procedimento computacional para calcular a dispersão e a absorção da luz por qualquer esfera como função do

comprimento de onda (Bohren and Huffman, 1983). Os coeficientes de eficiência de dispersão e de extinção são obtidos através das seguintes relações:

$$Q_{scat}(m,\alpha_M) = \frac{2}{\alpha_M^{\,2}} \sum_{k=1}^{\infty} (2k+1)\left[|a_k|^2 + |b_k|^2\right] \qquad \textbf{eq.2. 11}$$

$$Q_{ext}(m,\alpha_M) = \frac{2}{\alpha_M^{\,2}} \sum_{k=1}^{\infty} (2k+1)\,\mathrm{Re}\left[a_k + b_k\right] \qquad \textbf{eq.2. 12}$$

onde a_k e b_k são função de α_M ("parâmetro óptico da partícula", função do raio da partícula, r_p, e do comprimento de onda,λ), do índice de refracção, e de funções de Bessel de primeira e de segunda espécie.

As secções eficazes de dispersão e extinção vêm então dadas por

$$\sigma_{scat}(r_p,\lambda,m) = Q_{scat}(r_p,\lambda,m)\,\pi r_p^2 \qquad \textbf{eq.2. 13}$$

$$\sigma_{ext}(r_p,\lambda,m) = Q_{ext}(r_p,\lambda,m)\,\pi r_p^2 \qquad \textbf{eq.2. 14}$$

onde o coeficiente de eficiência de extinção $Q_{ext}=Q_{scat}+Q_{abs}$.

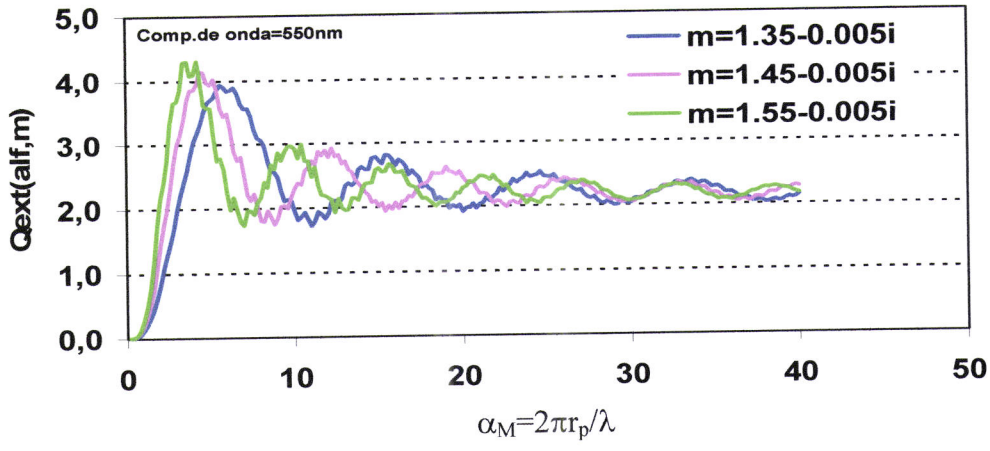

Fig 2.1 Função de eficiência de extinção em relação ao raio de partículas, parâmetro óptico de tamanho, para o comprimento de onda 0.55 μm e para 3 diferentes índices de refracção.

Como exemplo, a fig.2.1 representa o coeficiente de eficiência de extinção em relação ao parâmetro óptico de dimensão da partícula, para o comprimento de onda 0.55 μm, e para 3 diferentes partes reais do índice de refracção. Da análise da figura verifica-se que o coeficiente de eficiência de extinção tende para zero quando α_M tende

para zero. Quando α_M tende para valores elevados (α_M>20) o coeficiente $Q_{ext}(\alpha_M,m)$ tende para 2; o primeiro grande máximo deste coeficiente (o mesmo para a dispersão) acontece para valores de α_M entre 3 e 6 o que significa que a extinção é máxima quando a dimensão da partícula é da ordem de grandeza da do comprimento de onda da radiação incidente. Para valores de α_M <20 o coeficiente $Q_{ext}(\alpha_M,m)$ é sensível à parte real do índice de refracção; o valor máximo de $Q_{ext}(\alpha_M,m)$ é maior e acontece para valores mais baixos de α_M, quando a parte real do índice de refracção tem valores superiores.

A razão do coeficiente de eficiência de dispersão pelo de extinção é chamado albedo de dispersão simples, $\omega_o(\lambda)$

$$\omega_o(\lambda) = \frac{Q_{scat}(\alpha_M, m)}{Q_{ext}(\alpha_M, m)} \qquad \textbf{eq.2. 15}$$

A fracção da luz extinta por dispersão simples de uma partícula é ω_o, e a fracção absorvida é 1-ω_o. O valor de $\omega_o(\lambda)$, dependente do comprimento de onda, varia de 0 a 1, sendo o valor de 1 correspondente a aerossóis não absorventes, ou seja, totalmente dispersores. A dependência de ω_o com o comprimento de onda depende da natureza (composição química) dos aerossóis (Dubovik et al, 2002, Russell, P.B., et al, 2002)

2.3.2.1.2 Distribuição Angular da Radiação Dispersa por uma Partícula. Função de Fase

A função de fase expressa a probabilidade da radiação oriunda duma dada direcção ser dispersa para uma outra direcção. É calculada a partir da teoria de Mie, resolvendo as equações de Maxwell para a radiação dispersa uma vez por uma partícula, ou seja, para a dispersão simples. Todas as partículas de diferentes tipos e dimensões têm uma função de fase diferente, para cada comprimento de onda.

Assim, a função de fase da dispersão, ou simplesmente função de fase, descreve a dependência angular da dispersão da luz incidente numa partícula, para um dado comprimento de onda. Representa a intensidade monocromática dispersa por uma partícula, para um ângulo θ, isto é, a energia dispersa por unidade de ângulo sólido numa determinada direcção e para um dado comprimento de onda, $L_{\lambda,d}$, relativa à

média da energia dispersa em todas as direcções e para um dado comprimento de onda, isto é:

$$P_\lambda(\theta,\alpha_M,m) = \frac{L_{\lambda,d}(\theta,\alpha_M,m)}{\int_0^\pi L_{\lambda,d}(\theta,\alpha_M,m)\sin(\theta)d\theta} \qquad \textbf{eq.2. 16}$$

onde $L_{\lambda,d}(\theta,\alpha_M,m)$ é a intensidade monocromática dispersa para um ângulo θ por uma partícula com uma dada dimensão, α_M, e com um índice de refracção, m. O integral da função de fase sobre uma esfera unitária centrada na partícula é 4π,

$$\int_0^{2\pi}\int_0^{\pi} P_\lambda(\theta,\alpha_M,m)\sin\theta d\theta d\phi = 4\pi \qquad \textbf{eq.2. 17}$$

Note-se que a suposição duma partícula esférica permite remover a dependência de $L_{\lambda,d}$ do ângulo azimutal φ, dependendo apenas do ângulo zenital θ.

Para partículas de raios pequenos a função de fase é simétrica nas direcções para a frente e para trás, (ver eq.2.30). A assimetria direccional torna-se mais pronunciada no sentido da incidência da radiação com o aumento das dimensões da partícula. Os lóbulos de dispersão pequenos, para ângulos de dispersão θ>90°, tornam-se quase imperceptíveis comparados com o forte lóbulo para a frente para as partículas de maiores dimensões. Para um ângulo de dispersão de 0° a função de fase para as partículas grandes tem valores de duas a três ordens de grandeza superiores ao das pequenas partículas. Assim, numa análise da função de fase em função do ângulo de dispersão pode reconhecer-se a existência das grandes partículas pela forma desta junto do ângulo de dispersão de 0°. Qualquer que seja o valor do raio da partícula a função de fase é mínima para ângulos de dispersão variando entre os 90° e os 140°.

Muitos parâmetros úteis podem ser derivados da função de fase para expressar a distribuição da intensidade de radiação dispersa pela partícula.

Assim, usando a teoria de Mie, para um dado índice de refracção, raio da partícula e comprimento de onda da radiação incidente, as propriedades ópticas (eficiência de extinção, de dispersão, o albedo de dispersão simples e a função de fase) duma partícula individual podem ser determinadas, e com elas inferidas as propriedades microfísicas e químicas dos aerossóis (n(r), forma, m).

2.3.2.2 Propriedades Ópticas de uma População de Partículas

O tratamento da dispersão para uma população de partículas é muito complicado. Se contudo, a distância média entre as partículas for grande comparada com a dimensão das partículas pode-se assumir que a intensidade total dispersa é igual à soma das intensidades dispersas por uma partícula individual e a teoria de dispersão de uma particula simples pode ser usada. Esta suposição pode ser aplicada para a maior parte das concentrações dos aerossóis que se encontram na atmosfera e, até para outras situações com concentrações bem acima das que se encontram na atmosfera, como por exemplo, se se tiver uma concentração total de partículas até 10^6 cm^{-3}, constituída por partículas esféricas de 1μm de diâmetro.

Se considerarmos uma população monodispersa de aerossóis o coeficiente de extinção, $\tau_{ext}(\lambda)=(\tau_{scat}(\lambda) + \tau_{abs}(\lambda))$, com unidade m-1, é proporcional à concentração total das partículas, isto é,

$$\tau_{ext}(\lambda) = \sigma_{ext}(m, \alpha_M)N \qquad \text{eq.2. 18}$$

onde N é a concentração total das partículas (m-3), determinada pela eq 2.3 e, σext a secção eficaz de extinção.

Para uma população de partículas monodispersas, esféricas e de concentração N, o coeficiente de extinção pode ser relacionado com o coeficiente de eficiência de extinção aplicando a eq 2.14 por:

$$\tau_{ext}(\lambda) = \pi r^2 N Q_{ext}(m, \alpha_M) \qquad \text{eq.2. 19}$$

Os coeficiente de dispersão, $\tau_{scat}(\lambda)$, e de absorção, $\tau_{abs}(\lambda)$, têm relações semelhantes com Qscat(m, α_M) e Qabs(m, α_M), respectivamente.

Para uma população de partículas de diferentes dimensões, com uma distribuição de dimensões $n(r_p)$, mas considerando índices de refracção idênticos, m, o coeficiente de extinção é dado por:

$$\tau_{ext}(\lambda) = \int_{r\,min}^{r\,max} \pi r^2 Q_{ext}(m, \alpha_M) n(r_p) dr_p \qquad \textbf{eq.2. 20}$$

Expressões similares podem ser escritas para $\tau_{scat}(\lambda)$ e $\tau_{abs}(\lambda)$ em termos de $Q_{scat}(m,\alpha_M)$ e $Q_{abs}(m,\alpha_M)$.

Considerando uma população de aerossóis atmosféricos polidispersos com uma dada distribuição de dimensões, $n(r_p)$, a função de fase dos aerossóis é dada por:

$$P_a(\theta,\lambda,m) = \frac{\int_{r\,min}^{r\,max} \pi r_p^2 Q_{scat}(m,\alpha_M) P_\lambda(\theta,\alpha_M,m) n(r_p) dr_p}{\int_{r\,min}^{r\,max} \pi r_p^2 Q_{scat}(m,\alpha_M) n(r_p) dr_p} \qquad \textbf{eq.2. 21}$$

onde o denominador é o coeficiente de dispersão, $\tau_{scat}(\lambda)$. A função de fase $P_\lambda(\theta,\alpha_M,m)$, que figura no numerador, vem dada pela eq.2.16 e obedece à eq.2.17. A função de fase dos aerossóis, $P_a(\theta,\lambda,m)$ é também normalizada, isto é:

$$\int_0^\pi P_a(\theta,\lambda,m) sen\theta d\theta = 2$$

2.3.2.3 Propriedades Ópticas dos Aerossóis Integradas na Coluna Atmosférica

A) A espessura óptica dos aerossóis, $\delta_{aer,\lambda}$, é um parâmetro extensível dependente do número de partículas, que representa a extinção da radiação, por dispersão e absorção, devido aos aerossóis, em toda a coluna atmosférica.

$$\delta_{aer,\lambda} = \int_0^z \tau_{ext}(\lambda,z) dz \qquad \textbf{eq.2. 22}$$

ou seja, usando a eq 2.20 :

$$\delta_{aer,\lambda} = \int_z \int_{r\,min}^{r\,max} \pi r^2 Q_{ext}(m,\alpha_M) n(r_p,z) dr_p dz \qquad \textbf{eq.2. 23}$$

ou seja,

$$\delta_{aer,\lambda} = \int_{r\,min}^{r\,max} \pi r^2 Q_{ext}(m,\alpha_M) n_{colAtm}(r_p) dr_p \qquad \textbf{eq.2. 24}$$

onde a distribuição de dimensões dos aerossóis se refere a toda a coluna atmosférica, $n_{colAtm}(r_p)$.

A espessura óptica de dispersão, $\delta_{aer,\lambda}^{scat}$, e de absorção, $\delta_{aer,\lambda}^{abs}$, são definidas da mesma forma (eq.2.24) onde o coeficiente de eficiência de extinção é substituído pelos coeficientes de eficiência de dispersão e de absorção, respectivamente.

Para a determinação da espessura óptica usando medidas " in situ" é necessário fazer hipóteses sobre o perfil do coeficiente de extinção, $\tau_{ext}(\lambda,z)$, com a altitude, o que conduz a muitos erros (Bergin et al, 2000). A espessura óptica é, em geral, determinada a partir de medidas espectrorradiométricas (detecção remota passiva) à superfície ou em satélites, ou por detecção remota activa, recorrendo ao Lidar.

B) A radiância angular medida no plano do almucantar, plano onde o ângulo zenital se mantém constante e igual ao ângulo zenital solar, variando os ângulos azimutais, $L_{scat}(\lambda,\varphi)$ está também relacionada com a distribuição de dimensões das partículas de aerossóis na coluna atmosférica pela expressão:

$$L_{scat}(\lambda,\varphi) = \int_{-\infty}^{+\infty} \pi r^2 F(r,\lambda,m,\varphi) \frac{dN_{col}(r_p)}{d\log r_p} d\log r_p \qquad \textbf{eq.2. 25}$$

onde $L_{scat}(\lambda,\varphi)$ é a radiância no almucantar e, cujo valor deve ser corrigido para a dispersão múltipla e onde $F(r,\lambda,m,\varphi)$ é a intensidade de dispersão angular, obtida pela teoria de Mie.

C) A função de fase dos aerossóis é definida de forma idêntica à eq.2.21 onde a distribuição de dimensões dos aerossóis, $n(r_p)$, se refere a toda a coluna atmosférica, e representando o denominador a espessura óptica de dispersão dos aerossóis. Do mesmo modo que para uma partícula, a função de fase dos aerossóis é normalizada para uma população de partículas representadas numa coluna atmosférica, isto é:

$$\int_0^{\pi} P_a(\theta,\lambda,m)\sin\theta d\theta = \frac{\int_{rmin}^{rmax} \pi r_p^2 Q_{scat}(m,\alpha_M) n(r_p) dr_p \int_0^{\pi} P_\lambda(\theta,\alpha_M,m)\sin\theta d\theta}{\int_{rmin}^{rmax} \pi r_p^2 Q_{scat}(m,\alpha_M) n(r_p) dr_p} = 2 \qquad \textbf{eq.2. 26}$$

D) Considerando a coluna atmosférica pode-se definir o albedo de dispersão simples, ω_o, como a razão:

$$\omega_o(\lambda) = \frac{\delta_{aer,\lambda}^{scat}}{\delta_{aer,\lambda}} = \frac{\delta_{aer,\lambda}^{scat}}{\delta_{aer,\lambda}^{scat} + \delta_{aer,\lambda}^{abs}} \qquad \textbf{eq.2. 27}$$

Considerando que o índice de refracção é conhecido, o valor de ω_o depende do comprimento de onda.

2.3.2.4 Dependência Espectral da Espessura Óptica e do Albedo de Dispersão Simples dos Aerossóis Atmosféricos.

A espessura óptica dos aerossóis apresenta uma dependência espectral, isto é, depende do comprimento de onda, relacionada com a distribuição de dimensões das partículas. Esta dependência é traduzida pela expressão empírica de Angstrom (Angstrom, 1929):

$$\delta_{aer,\lambda} = \beta\lambda^{-\alpha} \qquad \textbf{eq.2. 28}$$

em que $\delta_{aer,\lambda}$ é a espessura óptica dos aerossóis para o comprimento de onda λ; β é o coeficiente de turvação de Angstrom, relacionado com a idade das partículas dentro da massa de ar e com a estabilidade da atmosfera, e é igual à espessura óptica dos aerossóis para o comprimento de onda de 1μm; α é o expoente de Angstrom, e está relacionado com a distribuição de dimensões das partículas, sendo um bom indicador da proporção entre partículas grandes e pequenas.

A dependência espectral da espessura óptica dos aerossóis, mostrada na expressão empírica de Angstrom, é importante na modelação dos efeitos radiativos dos aerossóis na atmosfera, na obtenção dos parâmetros dos aerossóis usando a detecção remota, na identificação das regiões fonte de aerossóis e na sua evolução no tempo. A variabilidade na distribuição de dimensões dos aerossóis atmosféricos está relacionada com a variabilidade dos processos de formação inicial desses aerossóis, tais como a queima de bio massa (Reid and Hobbs, 1998), Remer et al, 1998), as erupções vulcânicas (Russell et al, 1993), os aerossóis de origem marítima (sea salt) (Hoppel et al, 1990), partículas de outras origens (d'Almeida, 1987). Por outro lado, os aerossóis durante o tempo de residência na atmosfera e durante o transporte pelas massas de ar, sofrem mudanças na distribuição de dimensões relacionadas com processos de coagulação, condensação, conversão gás-partícula entre outros (Reid et al, 1998).

Para a distribuição de dimensões lognormal, ou para a maior parte das condições naturais, o valor do expoente de Angstrom não é uniforme, mas depende da gama de comprimentos de onda usados para a sua determinação (M.Hess, P.Koepke, 1998). Deve, portanto, indicar-se os valores do comprimento de onda para os quais se está a calcular o expoente de Angstrom.

O expoente de Angstrom, α, é dado pelo declive do logaritmo da espessura óptica dos aerossóis versus o logaritmo do comprimento de onda,

$$\alpha = -\frac{d\ln\delta_{aer,\lambda}}{d\ln\lambda} = -\frac{\ln\left(\frac{\delta_{aer,\lambda 2}}{\delta_{aer,\lambda 1}}\right)}{\ln\left(\frac{\lambda_2}{\lambda_1}\right)} \qquad \textbf{eq.2. 29}$$

É utilizado para caracterizar a espessura óptica como função do comprimento de onda e fornecer alguma informação básica da distribuição de dimensões dos aerossóis.

Para as grandes partículas o expoente de Angstrom está entre 0 e 1, reflectindo a dependência de Q_{abs} e Q_{scat} com o comprimento de onda nesta região. Para as distribuições de dimensões onde dominam as pequenas partículas o expoente de Angstrom, α, apresenta valores superiores a 1.

2.3.2.5 Dispersão de Rayleigh

Quando a partícula é muito mais pequena que o c.d.o. da luz incidente, a dispersão segue o regime de "dispersão de Rayleigh".

A irradiância dispersa por uma esfera suficientemente pequena comparada com o c.d.o. da radiação incidente é proporcional a $1/\lambda^4$ ($Q_{scat} \approx \lambda^{-4}$). Tal comportamento é muitas vezes referido como dispersão de Rayleigh. Como resultado, as particulas pequenas dispersam a luz de pequenos c.d.o. mais eficientemente que a luz de grandes c.d.o. A absorção por uma partícula ou molécula cuja dimensão é muito mais pequena que o comprimento de onda da radiação incidente é proporcional a $1/\lambda$ ($Q_{abs} \approx \lambda^{-1}$). Isto significa que, para este caso, isto é, para dimensões das partículas muito inferiores ao comprimento de onda da luz incidente, os c.d.o. mais pequenos são extinguíveis mais eficientemente que os comprimentos de onda mais longos.

No caso de partículas muito pequenas quando comparadas com o comprimento de onda da radiação incidente, isto é, no caso de estar no regime de dispersão de Rayleigh, o padrão de dispersão da intensidade da luz é simétrica na direcção para a frente e para trás e mais ou menos independente da forma das partículas. Neste caso, sendo θ o ângulo entre o feixe incidente e o feixe disperso, a função de fase de dispersão é:

$$P_{Ray,\lambda}(\theta) = \frac{3}{4}(1+\cos^2\theta) \qquad \textbf{eq.2. 30}$$

$P_{Ray,\lambda}(\theta)$ consiste do produto duma componente circular independente de θ e o termo $(1+\cos^2\theta)$.

Uma aproximação que é frequentemente utilizada para estimar a espessura óptica devido às moléculas e pequenas partículas quando comparadas com o comprimento de onda da radiação incidente na atmosfera é dada por (Hansen and Travis, 1974; B.Bodhaine et al, 1999):

$$\delta^{d}_{Ray,\lambda} = \frac{p}{p_o}\left[0.008569\ \lambda^{-4}(1+0.0113\ \lambda^{-2}+0.00013\ \lambda^{-4})\right] \qquad \textbf{eq.2. 31}$$

onde p é a pressão atmosférica do local e p_o a pressão atmosférica de referência (1013.25 hPa). Da eq 2.22 a espessura óptica de Rayleigh (devido às moléculas), $\delta^{d}_{Ray,\lambda}$, é dada pelo integral vertical do coeficiente de dispersão de Rayleigh, $\tau_{Ray}(\lambda)$, desde o nível da superfície até uma altitude de 120 km. A transmissividade na atmosfera devido à dispersão de Rayleigh, T_{Ray}, é função da massa óptica de ar e da espessura óptica de Rayleigh (Meador, W. et al, 1980, Gueymard, C, 1995).

2.4. Transferência Radiativa

2.4.1. Radiação Electromagnética

Todos os corpos cuja temperatura seja diferente do zero absoluto emitem radiação electromagnética. A energia emitida, para determinado comprimento de onda, λ, por um corpo considerado perfeito emissor, isto é um corpo negro, é função exclusiva da sua temperatura e pode ser calculada através da função de Planck:

$$B_\lambda(T) = \frac{2hc^2\lambda^{-5}}{\exp(\frac{hc}{\lambda kT})-1} \qquad (\mathrm{W/m^2.\mu m.sr}) \qquad \textbf{eq.2. 32}$$

onde h é a constante de Planck, c a velocidade da luz no vácuo, k a constante de Boltzmann e T a temperatura absoluta do corpo. A aplicação desta função ao caso da atmosfera pressupõe a condição de equilíbrio termodinâmico local.

A radiação electromagnética é um processo de transmissão de energia composta por campos eléctricos e magnéticos. O vector de Poynting é o vector fluxo de energia, cuja direcção e sentido é o de transporte de energia. Este vector representa a potência por unidade de área numa onda electromagnética, designada densidade de fluxo radiante, ou irradiância, F (Wm^{-2}). A irradiância tem dependência do comprimento de onda, F_λ ($Wm^{-2}\mu m^{-1}$)- A radiância, L ($Wm^{-2}sr^{-1}$) é o fluxo radiante em função do ângulo sólido, $d\Omega$, que atravessa uma superfície perpendicular ao feixe radiante. Tem também dependência do comprimento de onda, L_λ ($Wm^{-2}\ \mu m^{-1}sr^{-1}$). A radiância como função da direcção dá uma completa descrição do campo da radiação. Em coordenadas esféricas, em que θ representa o ângulo com a direcção vertical, Z, ângulo zenital, e ϕ, o ângulo azimutal, com a direcção X, a irradiância F_λ pode ser obtida a partir da radiância L_λ:

$$F_\lambda = \int_0^{2\pi}\int_0^{\pi} L_\lambda(\theta,\phi)\cos\theta d\Omega = \int_0^{2\pi}\int_0^{\pi} L_\lambda(\theta,\phi)\cos\theta\sin\theta d\theta d\phi \qquad \textbf{eq.2. 33}$$

Quando a radiância é independente da direcção, o campo da radiação chama-se isotrópico. Neste caso, $F_\lambda=\pi L_\lambda$.

Devido aos movimentos de rotação e translação da Terra e ás características da sua orbita em torno do sol, a irradiância do sol recebida num dado local depende da posição geográfica deste, do dia do ano e da hora (hora, minutos, segundos).

2.4.2. Equação de Transferência Radiativa

A variação da radiância que atravessa a atmosfera, $L\lambda(s,\theta,\varphi)$ ao percorrer a distância ds na direcção de propagação (θ,φ), nas condições de equilíbrio termodinâmico local, é devida aos seguintes processos:

◊ Radiação incidente absorvida e dispersa (uma única vez) pelos gases e partículas em suspensão, na direcção de propagação:

$$dL_{\lambda,dir} = -\tau_{ext}(\lambda)L_{\lambda,dir}ds \qquad \text{eq.2. 34}$$

Radiação dispersa de outras direcções para a direcção considerada. Para completar a variação da intensidade dum feixe de radiação monocromática devemos acrescentar um termo que corresponde ao aumento da intensidade de radiação na direcção de propagação, (θ,φ), por dispersão da radiação proveniente de outras direcções, (θ',φ'):

$$dL_{\lambda,dif} = \tau_{scat}(\lambda)J(\theta,\varphi)ds \qquad \text{eq.2. 35}$$

onde $\tau_{scat}(\lambda) = \tau_{Ray}(\lambda) + \tau_{a,scat}(\lambda)$

$$J(\theta,\varphi) = \frac{1}{4\pi}\int_{-\pi}^{+\pi}\int_{0}^{2\pi} L_{\lambda}(\theta,\varphi)P(\theta',\varphi',\theta,\varphi,\lambda)sen\,\theta' d\theta' d\varphi'$$

eq.2. 36

em que P(θ',φ',θ,φ) é uma função que descreve a distribuição angular do campo da radiação dispersa, a função de fase, correspondente à direcção (θ',φ') de onde vem a radiação e à direcção (θ,φ) de observação.

Radiação emitida pelo meio, calculada pela função de Planck.

A radiação emitida pelos corpos para um dado comprimento de onda é dada por:

$$L_{\lambda}(T) = \varepsilon(\lambda)\ B_{\lambda}(T) = \alpha(\lambda)\ B_{\lambda}(T) \qquad \text{eq.2. 37}$$

A emissividade dum corpo, ε(λ) é igual a 1 para o corpo negro e entre 0 e 1 para os outros corpos. Pela lei de Kirchoff o seu valor é igual ao de absorvidade desse corpo, α(λ). Então

onde $0 \leq \alpha(\lambda) \leq 1$ e representa a razão entre Lλ(T) e Bλ(T) em que Lλ(T) é a energia emitida para um dado comprimento de onda λ, por um corpo real à mesma temperatura que o corpo negro. O seu valor pode ser calculado por σabs(λ)/σext(λ)

Na equação de transferência radiativa o termo referente à radiação emitida pelo meio será dado por:

$$dL_{\lambda,em} = J_{\lambda}^{em}(\theta,\varphi)ds \qquad \textbf{eq.2. 38}$$

onde:

$$J_{\lambda}^{em}(\theta,\varphi) = (1-\omega_{o,\lambda})B_{\lambda}(T) \qquad \textbf{eq.2. 39}$$

em que $(1-\omega_{o,\lambda}) = \frac{\sigma_{abs}}{\sigma_{ext}} = \alpha(\lambda)$ (ver eq.2.27)

Para a radiação de pequeno comprimento de onda, radiação solar, a equação de transferência radiativa refere-se à radiação emitida pelo sol, que entra no topo da atmosfera, e que é absorvida e dispersa/reflectida pela atmosfera e superfície do globo. Para a radiação de grande comprimento de onda, radiação terrestre, refere-se à radiação emitida pela superfície do globo ou à radiação absorvida e reemitida pela atmosfera

Na equação de transferência radiativa na atmosfera para o pequeno comprimento de onda a radiação emitida pelas moléculas, partículas e corpos à temperatura T observada na superfície do globo ou atmosfera terrestre, é desprezável dado que Bλ(T) é muitíssimo inferior que a radiância solar incidente, Lλ.

Para uma camada de espessura ds a transferência radiativa da radiação de pequeno comprimento de onda pode ser escrita como:

$$dL_{\lambda} = -\tau_{ext}(\lambda)L_{\lambda}ds + \tau_{ext}(\lambda)J'(\theta,\varphi)ds \qquad \textbf{eq.2. 40}$$

A função de dispersão, J'(θ,φ), depende da intensidade de radiação na direcção incidente, $L_{\lambda}(\theta,\varphi)$, da fracção de radiação que é dispersa, ω0,λ, e da fracção de radiação dispersa de outras direcções na direcção considerada, J'(θ,φ)=ω0,λ J(θ,φ)

$$J'(\theta,\varphi) = \frac{\omega_{o,\lambda}}{4\pi}\int_{-\pi}^{+\pi}\int_{0}^{2\pi} L_{\lambda}(\theta,\varphi)P(\theta',\varphi',\theta,\varphi,\lambda)sen\,\theta' d\theta' d\varphi' \qquad \text{eq.2. 41}$$

É, pois, possível determinar a intensidade de radiação em qualquer ponto da atmosfera, desde que se conheçam a distribuição dos componentes, os coeficientes de absorção e dispersão, e a função de distribuição da radiação dispersa, J'(θ,φ). No entanto, na prática, as heterogeneidades na distribuição dos componentes da atmosfera e a grande variabilidade dos coeficientes de absorção e dispersão para cada componente

e por comprimento de onda, tornam impossível a resolução analítica destas grandezas e obrigam a recorrer a aproximações para a integração da equação de transferência.

Se aplicarmos a aproximação duma atmosfera plana-paralela, ds=dz/cos(θ), onde θ é o ângulo que o feixe incidente faz com a vertical, ângulo zenital, a eq.2.40 vem:

$$\cos(\theta)\frac{dL_\lambda(z,\theta,\varphi)}{\tau_{ext}(\lambda,z)dz} = -L_\lambda(z,\theta,\varphi) + J'_\lambda(z,\theta,\varphi) \qquad \textbf{eq.2. 42}$$

Sendo a espessura óptica dada por $\delta_\lambda(z,0) = \int_0^z \tau_{ext}(\lambda,z)dz$, ou seja, $d\delta_\lambda = -\tau_{ext}(\lambda,z)dz$. Fazendo $\mu = \cos(\theta)$ teremos:

$$\mu\frac{dL_\lambda(\delta,\mu,\varphi)}{d\delta} = L_\lambda(\delta,\mu,\varphi) - J'_\lambda(\delta,\mu,\varphi) \qquad \textbf{eq.2. 43}$$

que é a chamada equação de Schwarzchild, equação de transferência radiativa numa atmosfera plana-paralela, considerando a região do espectro de radiação do pequeno comprimento de onda. A partir desta equação é possível determinar as radiâncias ascendente, $L_\lambda^\uparrow$, e descendente, $L_\lambda^\downarrow$, a um dado nível da atmosfera:

Para a radiância ascendente, $L_\lambda^\uparrow$, onde $1 \geq \mu \geq 0$ (ou $0 \leq \theta \leq \pi/2$), vem:

$$\mu\frac{dL_\lambda^\uparrow(\delta,\mu,\varphi)}{d\delta} = L_\lambda^\uparrow(\delta,\mu,\varphi) - J'^\uparrow_\lambda(\delta,\mu,\varphi) \qquad \textbf{eq.2. 44}$$

Para a radiância descendente, $L_\lambda^\downarrow$ onde $-1 \leq \mu \leq 0$ (ou $\pi/2 \leq \theta \leq \pi$), vem:

$$-\mu\frac{dL_\lambda^\downarrow(\delta,-\mu,\varphi)}{d\delta} = L_\lambda^\downarrow(\delta,-\mu,\varphi) - J'^\downarrow_\lambda(\delta,-\mu,\varphi) \qquad \textbf{eq.2. 45}$$

2.4.2.1 Extinção Atmosférica da Radiação Solar

Caso particular da eq.2.40 é a sua aplicando à atmosfera, considerando apenas a dispersão simples e desprezando a emissão de radiação. Os prinicipais processos de interacção da radiação solar com o meio são: - Absorção da radiação incidente pelos gases e partículas em suspensão, dada por:

$dL_\lambda = -\tau_{g,abs}(\lambda)L_\lambda ds$ onde $\tau_{g,abs}(\lambda)$ representa a soma do coeficiente de absorção dos gases e o dos aerossóis (m^{-1})

-Dispersão da radiação incidente pelos gases, dada por:

$dL_\lambda = -\tau_{Ray}(\lambda)L_\lambda ds$, sendo $\tau_{Ray}(\lambda)$ o coeficiente de dispersão de Rayleigh (m^{-1})

- Dispersão da radiação incidente pelas partículas em suspensão, dada por: $dL_\lambda = -\tau_{scat}(\lambda)L_\lambda ds$, sendo $\tau_{scat}(\lambda)$ o coeficiente de dispersão dos aerossóis (m^{-1})

Fazendo $\tau_{ext}(\lambda) = \tau_{g,abs}(\lambda) + \tau_{Ray}(\lambda) + \tau_{scat}(\lambda)$ **eq.2. 46**

pode-se escrever: $dL_\lambda = -\tau_{ext}(\lambda)L_\lambda ds$ **eq.2. 47**

Chamada lei de Beer Lambert.

Integrando esta expressão entre s=0 e s=s1 obtemos

$$L_{s1,\lambda} = L_{0,\lambda}\exp(-\int_0^{s1}\tau_{ext}(\lambda,s)ds) = L_{0,\lambda}\exp(-m_{air}\delta_\lambda) \qquad \textbf{eq.2. 48}$$

onde $L_{o,\lambda}$ e $L_{s1,\lambda}$ são as intensidades da radiação incidente e transmitida, respectivamente, e, m_{air} é a massa óptica relativa de ar atravessada. O cálculo da massa óptica relativa de ar pode ser aproximado por $m_{air} \cong 1/\cos\theta = 1/\mu$, onde θ é o ângulo solar zenital, considerando a atmofera como plana-paralela.

Os critérios para esta aproximação são:

- o sol ter um ângulo zenital inferior a 75°, isto é, quando a curvatura da atmosfera e a refracção atmosférica são negligenciáveis, (Lenoble, 1993);
- a razão (H/R<<1) entre a altitude de escala, H, e a distância ao centro da Terra, R, (raio da Terra , aproximadamente de 6380 km);
- a concentração de moléculas ou partículas absorventes e dispersoras não deve variar na horizontal;
- as condições fronteira serem horizontalmente não dependentes.

O valor mínimo de m_{air}, a unidade, é atingido para o sol no zenith (θ=0°). Para ângulos zenital maiores, por causa do efeito da curvatura da Terra, a relação entre o ângulo solar zenital e a massa de ar é mais complicado (Kasten and Young, 1989).

$$m_{air} = \frac{1}{\cos(\theta) + 0.50572 * (96.07995 - (\theta * 180/\pi))^{1.6364}} \qquad \textbf{eq.2. 49}$$

em que θ está em radiano.

Nos programas usados neste trabalho para ângulos solar zenital superiores a 60° foi aplicada a fórmula aproximada de Kasten e Young, 1989 (eq 2.49).

Em condições de ausência de nebulosidade, a espessura óptica, resultante da integração da eq.2.46 a toda a atmosfera, é devida à absorção por gases, $\delta_{g,\lambda}$ dependente do comprimento de onda, à dispersão de Rayleigh, $\delta_{Ray,\lambda}$ e à atenuação por aerossóis, $\delta_{aer,\lambda}$, isto é:

$$\delta_{\lambda} = \delta_{g,\lambda} + \delta_{Ray,\lambda} + \delta_{aer,\lambda} \qquad \textbf{eq.2. 50}$$

Capítulo III

Observação e Instrumentação

3.1. Introdução

Os aerossóis atmosféricos formam um sistema altamente complexo cujas propriedades físicas não podem ser completamente determinadas. Exibem uma grande variabilidade temporal e espacial, quer na sua composição físico-química quer na sua concentração na atmosfera, [Shettle and Fenn, 1979; WCP (WMO), 1986; d'Almeida et al., 1991; Hess et al., 1998].

As campanhas de observação intensiva de aerossóis são de grande importância para:

- a validação dos modelos de aerossóis, que, em geral, assumem a esfericidade das partículas (teoria de Mie), e que, os seus componentes estão externamente misturados, embora, em condições ambientais, seja mais frequente a mistura interna;
- a validação dos modelos de resolução da equação de transferência radiativa na atmosfera;
- Permitem também, um melhor conhecimento das características físicas, químicas e ópticas dos aerossóis, considerando-se as particularidades próprias das regiões onde se realizam.
- Permitem aferir métodos de medição.

Nos últimos anos têm-se realizado diversas campanhas de observação dos aerossóis cobrindo vastas regiões do globo como a Antártida, o Artico, a região do Índico (INDOEX), a região do Sul de Africa durante a época das queimadas (SAFARI2000), o Atlântico Norte entre Portugal e o arquipélago das Canárias (ACE 2), ou cobrindo regiões mais restritas como a campanha Veleta 2002, em Granada, Espanha, ou a campanha CAPEX, em Portugal, em 2006.

Usualmente, nos modelos atmosféricos de previsão de médio prazo e de clima, e, mesmo nos modelos de transferência radiativa, como o 6S, são usados modelos de

aerossóis, como o modelo OPAC (Hess, M: et al, 1998, d'Almeida, G.A. et al, 1991), constituídos por classes de aerossóis com características indicativas. São de grande importância as campanhas de observação dos aerossóis atmosféricos de forma a validar ou modificar aqueles modelos existentes.

As campanhas intensivas de observação concentram, num dado local, uma grande quantidade e variedade de instrumentação, quer usando a observação remota à superfície ou em satélite, quer retirando uma amostra num dado volume de ar de forma a ser analisada no local, as chamadas observações *"in situ"*. Um dos problemas na medição *" in situ"* das propriedades microfísicas, químicas e ópticas dos aerossóis é a necessidade de retirar uma amostra de ar da atmosfera e transportá-la até aos instrumentos, podendo sofrer alguma alteração dessas propriedades. Por outro lado, os instrumentos de medição *"in situ"*, que analisam as propriedades dos aerossóis num certo volume de ar, alteram, normalmente, a humidade relativa da amostra, alterando a distribuição de dimensões dos aerossóis. Assim, é muito importante a realização de campanhas intensivas de observação, onde se fazem diferentes medições simultâneas, ou quase, de várias grandezas relativas às propriedades dos aerossóis, quer locais quer na coluna atmosférica, de forma a comparar resultados e relacioná-los. É de salientar que a interpretação dos resultados deve ser feita cuidadosamente tendo em atenção as condições sinópticas e as massas de ar em presença. No entanto, as campanhas intensivas de observação estendem-se por um dado período de tempo, em geral, limitado, de 1 a 3 meses.

Para além destas campanhas, tornou-se necessário, devido à importância que os aerossóis exercem no balanço radiativo, quer à escala global quer à escala regional, ter um conjunto de estações de observação e monitorização dos aerossóis, equipadas com instrumentação de detecção remota à superfície, distribuídas por todo o mundo e inseridas na rede – AERONET (AErosol RObotic NETwork). Na fig.3.1 estão indicadas as várias estações desta rede, notando-se a assimetria na sua distribuição, com os continente Africano, Asiático e Sul Americano a terem uma menor densidade de estações.

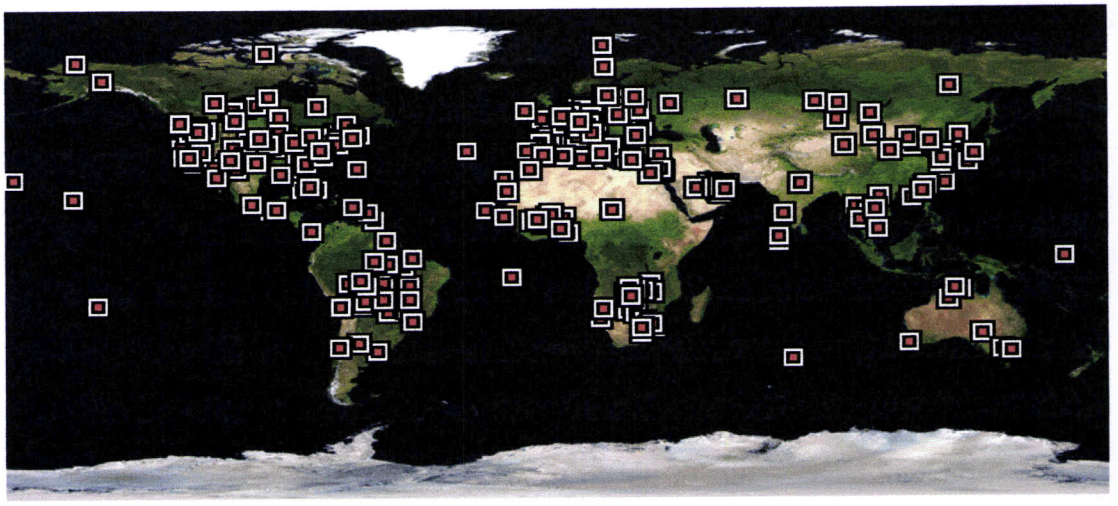

Fig 3.1 Distribuição global das estações da rede AERONET

Em Portugal existem três estações desta rede: Açores, na ilha do Faial, no meio do oceano Atlântico, com início de actividade em Janeiro de 1999; Évora, em Portugal Continental, localizada numa região rural, afastada de poluição industrial, a cerca de 100km da costa Atlântica, no sul de Portugal, com observações desde Junho de 2003; e Cabo da Roca, localizada no ponto mais ocidental da Europa, na costa Atlântica, a cerca de 20km a noroeste de Lisboa, com actividade desde Dezembro de 2003.

3.2. Instrumentos Utilizados neste Trabalho

O estudo das características ópticas, físicas e químicas dos aerossóis exige diferentes métodos de medição consoante o fim a que se destinam. As diferentes formas de monitorizar as propriedades dos aerossóis são complementares. Enquanto a observação remota à superfície, ou por satélite, nos dá a identificação das propriedades numa coluna da atmosfera, num dado local ou numa área, as observações *"in situ"*, permitem, em combinação com as observações na coluna atmosférica, obter informação da distribuição vertical dos aerossóis. Esta informação deve ser complementada, para cada local, recorrendo à análise de trajectórias e das situações sinópticas.

As características ópticas dos aerossóis podem obter-se:

- por observação remota à superfície, pela medição da radiância solar espectral directa e/ou indirecta (no plano do almucantar ou no plano principal), usando radiómetros ou espectrorradiómetros, e desta inferir algumas das

propriedades físicas da população de aerossóis, representando toda a coluna atmosférica, através do recurso a códigos de inversão (Nakajima et al, 1988; von Hoyningen-Huene et al, 1994; King et al, 1978), e a modelos de transferência radiativa (Nakajima et al, 1988) cujas equações genéricas demos conta no capítulo II

- por observação remota em satélites, que medem a radiância solar espectral que depois de atingir a superfície da terra é reflectida para o espaço e atinge o satélite. A radiância medida para além de integrar a contribuição de toda a coluna atmosférica, como no caso anterior, numa área relacionada com a resolução do radiómetro, integra também a contribuição da superfície, que sobre terra é, normalmente, da mesma ordem de grandeza da contribuição da coluna atmosférica, e, depende também das características da orbita do satélite; neste caso, é necessário retirar da radiância espectral recebida no satélite a contribuição da superfície para poder inferir algumas propriedades físicas da população de aerossóis, através do recurso a códigos de inversão e modelos de transferência radiactiva, tal como no caso anterior. A diferença entre as duas metodologias reside no facto desta fornecer propriedades de aerossóis numa área relativamente extensa, ao contrário da metodologia anterior que fornece as propriedades dos aerossóis na coluna atmosférica do local de observação.
- por observação *"in situ"*, ou seja, por amostragem num ponto da atmosfera, em geral a uma dezena de metros da superfície, monitorizando as características dos aerossóis num dado ponto. Também se aplica o mesmo método de observação colocando os instrumentos a bordo de um avião e obtendo amostras de ar para análise em diferentes pontos da atmosfera, podendo construir-se um perfil vertical ou horizontal. Os instrumentos por nós utilizados para a caracterização das propriedades ópticas em observações *"in situ"* são o nefelómetro, para os coeficientes de dispersão e de retro dispersão espectrais dos aerossóis, e o aetalómetro, para os coeficientes de absorção dos aerossóis. Foram ainda, pontualmente, utilizadas observações do TDMPS (Twin Differential Mobility Particle Sizing, constituído por dois DMPS (Differential Mobility Particle Spectrometer)) e do APS

(Aerodynamic Particle Sizer), que fornecem os espectros de diâmetros (aerodinâmicos) dos aerossóis respectivamente na gama 3 nm e os 900 nm e acima dos 500nm, para validarmos os espectros de dimensões que foram obtidos a partir dos coeficientes de dispersão espectrais medidos com o nefelómetro.

3.2.1. Observações *"in situ"*

Nas medições das características ópticas dos aerossóis *"in situ"* vamo-nos referir a medições dos coeficientes de dispersão e de absorção espectrais, e a medições da distribuição de dimensões das partículas, medidos em instrumentos que analisam uma amostra de ar, retirada a uma dada altura na atmosfera.

A medição das propriedades directas num certo volume de ar exige uma montagem dos instrumentos de forma a receberem uma amostra de ar que entra por uma cabeça de amostragem para um tubo que distribui para os instrumentos. As cabeças de amostragem podem ser PM10, se admitem a entrada a partículas com diametro aerodinâmico inferior a 10 μm, PM5, se as partículas que entram têm um diametro aerodinâmico inferior a 5 μm, PM1.0, se as partículas a que é permitida a entrada têm um diametro aerodinâmico inferior a 1.0 μm.

É importante ter-se em conta a possibilidade de perda potencial de partículas através do sistema da cabeça de amostragem e do tubo de transporte. As perdas de partículas de aerossol no sistema podem ser devidas a dispersão nas paredes dos tubos, a deposição inercial e a deposição turbulenta em alguns pontos da tubagem (Sheridan et al, 2001). Todos estes factores devem ser ponderados de forma a poder-se estimar as perdas de partículas. Esta estimativa depende das características do sistema cabeça de amostragem e dos tubos, em especial da velocidade do fluxo no sistema e do número de Reynolds, sendo, na maioria dos casos, as perdas estimadas inferiores a 10%. No entanto, no nosso trabalho não foram contabilizadas estas perdas. Apenas na campanha ACE2 CLEARCOLUMN foi feita a estimativa dos valores de corte dos diâmetros dos aerossóis admitidos (ver 5.2.2) com a amostra de ar no nefelómetro após passagem na cabeça de amostragem PM10.

3.2.1.1. Instrumento de Medição dos Coeficientes de Dispersão e de Retro-dispersão: Nefelómetro

Durante a campanha do Clearcolumn ACE2 as medições do coeficiente de dispersão e de retro dispersão foram realizadas por um nefelómetro integrador com 3 comprimentos de onda, 450nm, 550nm e 700nm, Fig.3.2. (TSI 3563,TSI Incorporated, St.Paul, Minnesota, USA), em Foia, localizada a 902m de altitude, no sudoeste de Portugal Continental. O desenvolvimento deste instrumento iniciou-se em 1949 por Beuttell e Brewer, melhorado por Crosby e Koerber em 1963 e por Charlson e Ahlquist em 1967.

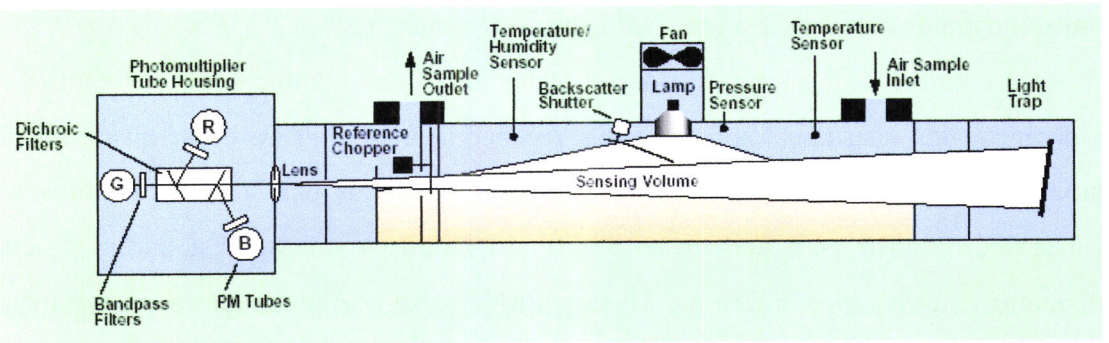

Fig. 3.2 Corte esquemático do nefelómetro TSI 3563

O nefelómetro integrador oferece um método directo de medir a luz dispersa pelas partículas de aerossol sem suposições acerca da sua composição, forma ou estado físico. Detecta e mede as propriedades dispersoras das partículas de aerossol. É baseado na contagem de fotões que as partículas e as moléculas de gaz dispersam, sendo detectados e contados usando um fotomultiplicador altamente sensível. Os coeficientes de dispersão quer dum meio gasoso ou dum aerossol podem ser medidos com a combinação duma fonte de luz Lambertiniana e um detector de luz ortogonal, permitindo a calibração com gases de coeficientes de dispersão conhecidos. É constituído por uma fonte de luz, que é encaminhada para a cavidade interior do instrumento com a ajuda dum espelho reflector. O tubo óptico por onde a luz passa é usado para isolar térmicamente a lâmpada da zona de medição. Dentro da zona de medição a abertura do lado de detecção do instrumento limita a integração da luz a ângulos superiores a 7°, enquanto a sombra dos pratos limitam a integração a ângulos inferiores a 170°. A radiação dispersa é medida entre os 7° e os 170°, e a radiação retro dispersa é medida entre os 90° e os 170°. Este é um erro sistemático, dependente da

dimensão das partículas dispersoras, que exige uma correcção aos dados medidos, chamado erro da truncatura da banda angular usada pelo instrumento para a integração óptica (entre os 7° e os 170°). Para as partículas com dimensões muito maiores que o comprimento de onda da radiação incidente, partículas maiores que 1μm, que apresentam uma elevada dispersão no sentido da radiação incidente, isto é, para pequenos ângulos de dispersão, próximos de 0°, a truncatura até aos 7° pode provocar uma subestimativa da dispersão na direcção da radiação incidente até 50%, (Anderson et al, 1996, Anderson et al, 1998). Assim, os dados obtidos com o nefelómetro durante as campanhas do ACE2 Clearcolumn e SAFARI2000 foram corrigidos do efeito de truncatura angular segundo a metodologia descrita por Anderson and Ogren, 1998.

É, também, de grande importância ter em consideração a humidade relativa do ar na amostra quando se realiza a medição dos coeficientes de dispersão com o nefelómetro. A variação da humidade relativa dos 30% para os 85% conduz a um aumento do valor do coeficiente de dispersão medido de cerca de 7.2%, (Anderson et al, 1996). Os maiores aumentos no coeficiente de dispersão acontecem entre os 68% e os 75% de humidade relativa devido ao factor de crescimento higroscópico do aerossol, f(HR), (Carriço, C. et al, 1998). Porque estes efeitos variam inversamente com o valor absoluto do coeficiente de dispersão, é geralmente maior para os maiores comprimentos de onda e para o coeficiente de retro dispersão. Para os estudos realizados no âmbito das campanhas de observação dos aerossóis atmosféricos foram escolhidos períodos com valores baixos de humidade relativa, inferior a 30%, de forma a evitar o erro devido ao efeito da humidade relativa nos coeficientes de dispersão (Fig.3.3).

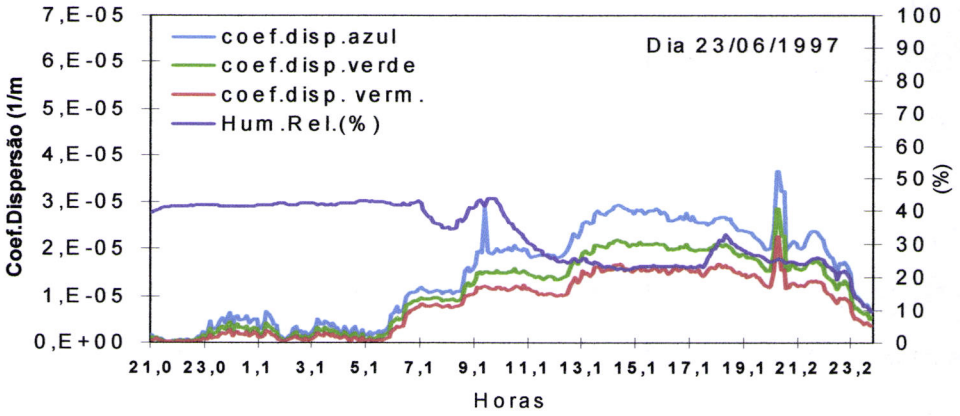

Fig.3.3 - Valores de coeficiente de dispersão para os comprimentos de onda 450 nm, 550nm e 700 nm, medidos com um nefelómetro TSI 3563, instalado em Foia, Portugal , durante a campanha do ACE 2 Clearcolumn

Estão também incorporados no instrumento vários sensores para monitorizar a sensibilidade da dispersão de Rayleigh à temperatura e à pressão. Sensores de temperatura, humidade e pressão estão colocados próximo da câmara de medição permitindo a correcção em tempo quase real da dispersão de Rayleigh.

O que o instrumento mede é a extinção da luz numa distância. A extinção é causada quer pela dispersão quer pela absorção da luz pelos aerossóis, pelas moléculas de ar ou pela superfície interior da cavidade de amostragem. Conhecendo o coeficiente de extinção produzida pela superfície interna da cavidade de amostragem, o coeficiente de extinção causado pelos aerossóis e moléculas dos gases na amostra de ar admitida, vem dada por:

$$\tau_{ext} = \tau_{abs} + \tau_{scat} = \ln(I/I_0)/x \qquad \textbf{eq.3. 1}$$

onde x é a distância percorrida pela luz, I é a intensidade da luz depois de percorrida a distância x, e , I_0 é a intensidade inicial da luz. Os coeficientes de absorção e dispersão podem ser dados pelas somas de dois componentes: gases e aerossóis. Assim: $\tau_{scat} = \tau_{Ray} + \tau_{a,scat}$ e $\tau_{abs} = \tau_{g,abs} + \tau_{a,abs}$ onde τ_{Ray} é o coeficiente de dispersão de Rayleigh e $\tau_{a,scat}$ é o coeficiente de dispersão devido aos aerossóis, $\tau_{g,abs}$ é o coeficiente de absorção dos gases e $\tau_{a,abs}$ é o coeficiente de absorção dos aerossóis. O nefelómetro mede o coeficiente τ_{scat} e τ_{Ray}, subtraindo-os para obter $\tau_{a,scat}$. Considera-se o coeficiente de absorção, τ_{abs}, negligenciável para os comprimentos de onda em questão.

O instrumento é calibrado, usando dois gases com diferentes propriedades de dispersão conhecidas. Os gases usados na calibração, como por exemplo durante a campanha do ACE2, foram o ar e o dióxido de carbono (CO_2) com um grau de pureza superior a 99.9%.

Os coeficientes de dispersão obtidos para vários comprimentos de onda (no caso do nefelómetro da TSI 3563 para três comprimentos de onda), permitem determinar os pârametros de turvação, especialmente o expoente de Angstrom, correlacionado com a distribuição de dimensões das partículas que estão na região de dispersão de Mie:

$\tau_{scat}(\lambda) = C\lambda^{-\alpha}$, onde α é o expoente de Angstrom e C é o valor do coeficiente de dispersão para o comprimento de onda de 1 μm, indicando a quantidade de dispersão.

O valor médio do expoente de Angstrom, α, em função dos valores medidos dos coeficientes de dispersão para os três comprimentos de onda do nefelómetro (λ_1=450 nm, λ_2=550 nm, λ_3=700 nm) é dado por:

$$\alpha = -\frac{1}{2}\left(\frac{\ln(\tau_{scat}(450)/\tau_{scat}(550))}{\ln(450/550)} + \frac{\ln(\tau_{scat}(550)/\tau_{scat}(700))}{\ln(550/700)}\right) \qquad \textbf{eq.3. 2}$$

Esta expressão é a média do valor do expoente de Angstrom cálculado para dois intervalos 450 – 550 nm e 550 – 700 nm.

As incertezas nas medições com o nefelómetro TSI 3563 foram descritas em detalhe por Anderson and Ogren, 1998. O cálculo das incertezas é expresso por uma combinação linear dos seguintes termos:

$$\Delta\tau^2_{total} = \Delta\tau^2_{noise} + \Delta\tau^2_{drift} + \Delta\tau^2_{cal} + \Delta\tau^2_{trunc} \qquad \textbf{eq.3. 3}$$

Estas incertezas são especificações instrumentais e representam:

1) o ruído instrumental (aproximadamente 7% para $\sigma_{a,scat}$ = 33 Mm^{-1});

2) deriva na calibração baseado na medição repetida dos gases de calibração (aproximadamente 4%);

3) incerteza na calibração devido à incerteza na medição da dispersão de Rayleigh do ar e CO_2 (aproximadamente 5.5%);

4) incerteza da truncatura (cerca de 2%).

Para valores baixos da humidade relativa, e valores de dispersão da ordem dos 33 Mm^{-1}, a incerteza analítica total de todas as fontes é da ordem dos 10% (Anderson and Ogren, 1998).

3.2.1.2. Outros instrumentos

Foram usados outros instrumentos como o aetalómetro para a medição dos coeficientes de absorção correspondente ao comprimento de onda de 550 nm, e instrumentos de medição da distribuição de dimensões das partículas.

O princípio do aetalómetro é medir a atenuação dum feixe de luz incidente numa amostra de aerossóis embebidos no filtro de quartzo do aetalómetro, partindo da suposição que o principal absorvente da radiação electromagnética, na região vísivel do espectro, é o "carbono negro". Esta suposição não é inteiramente verdadeira, apesar do

"carbono negro" ser o material com um maior coeficiente de absorção na atmosfera na banda espectral do visível. A incerteza na determinação do coeficiente de absorção usando o aetalómetro está relacionada com o rigor instrumental (da ordem dos 20%), precisão do instrumento (6%), ruído instrumental (fixado em 0.88 Mm^{-1} para valores médios) e incerteza na calibração que converte para valores de coeficiente de absorção aos 550 nm e, corrige a dispersão no filtro que é medida como absorção. Esta última parcela no cálculo do erro de medição pode ser bastante elevada. Segundo alguns investigadores a incerteza na medição do coeficiente de absorção pode ser da ordem dos 30% (Heintzenberg et al, 1997), ou 49% para valores de coeficiente de 2 Mm^{-1}, ou de 28% para valores de coeficiente de 5 Mm^{-1}, (Sheridan et al, 2001)

A distribuição de dimensões pode ser medida usando instrumentos baseados em vários princípios físicos. Em geral, a contagem de partículas ou a medida da distribuição de dimensões de partículas individuais é feita detectando-se as partículas por carga eléctrica, ou por peso, ou por dispersão da luz, ou por radioactividade.

O instrumento APS (Aerodynamic Particle Sizer) mede as dimensões e contagem de partículas relalacionando o seu tempo de permanência, ou "tempo de voo", num fluxo de ar acelerado com uma curva de calibração em 58 bandas entre os 0.5μm e os 20 μm de diametro aerodinâmico.

Durante a campanha ACE2 foi monitorizado a distribuição de dimensões dos aerossóis nos vários locais. O instrumento usado em Fóia foi um TDMPS (Twin Differential Mobility Particle Sizing), constituído por dois DMPS (Differential Mobility Particle Spectrometer), que separa as partículas com base nas suas diferentes mobilidades eléctricas (Knutson and Whitby, 1975), para partículas com diâmetros entre os 3 nm e os 900 nm e um APS (Aerodynamic Particle Sizer, TSI 3320), para partículas acima dos 500 nm.

3.2.2. Observação por Detecção Remota.

3.2.2.1. Observação Remota à Superfície

Detecção remota é definida como o modo de detectar e medir as características de um objecto à distância, sem interferir fisicamente com o meio que está a ser analisado. Os corpos emitem radiação consoante a sua temperatura e características

radiométricas e, reflectem e/ou absorvem a radiação que neles incide. Os sensores em detecção remota podem ser activos, se emitem radiação que interage com os corpos, sendo detectada num percurso inverso, como o caso dos radares ou do Lidar, e passivos se detectam a radiação que é reflectida, absorvida (no caso dos gases) ou emitida pelos corpos. Da radiação detectada e medida à distância por radiómetros, espectrorradiómetro ou espectrofotómetros obtem-se características dos corpos através de aplicação de modelos físicos e algoritmos de inversão.

Os radiómetros, intrumentos que medem a intensidade da radiação electromagnética numa banda do espectro electromagnético, são, em geral, conhecidos pela porção do espectro que medem: radiómetro para o vísivel, infravermelho ou microondas. Os espectrorradiómetros e espectrofotómetros são radiómetros que medem a intensidade de radiação electromagnética em várias bandas do espectro electromagnético, em geral muito estreitas, contidas num dado ângulo sólido e oriunda de uma dada direcção.

Para estudar os aerossóis atmosféricos na coluna atmosférica pode recorrer-se às observações feitas por espectrorradiómetro/espectrofotómetro em várias bandas na região do vísivel e do infravermelho próximo, a partir da superfície da terra ou em altitude (por exemplo em satélites).

A medição da radiação solar directa, num dado comprimento de onda do vísivel e contida num dado ângulo sólido igual ou inferior ao disco solar, permite, de uma forma simples, obter a atenuação da radiação solar pela atmosfera por aplicação da lei de Beer- Lambert (eq.2.48).

Para determinar o valor da espessura óptica, δ_λ, é necessário ter os valores da radiância no topo da atmosfera, $L_0(\lambda)$, para cada comprimento de onda λ, obtidos para cada instrumento. O "método de Langley" é a técnica usada para a obtenção destes valores, e para a calibração do instrumento. Realizam-se diversas medidas de radiância, $L(\lambda)$, para várias massas de ar, m_{air}, durante um período de tempo em que se considere não haver variação da espessura óptica total, δ_λ.

Aplicando logaritmos à eq2.48, lei de Beer-Lambert, vem:

$$\ln(L_\lambda) = \ln(L_{0,\lambda}) - m_{air}\delta_\lambda \qquad \textbf{eq.3. 4}$$

Considerando agora a Eq. 2.50 obtem-se a espessura óptica devido aos aerossóis, $\delta_{aer,\lambda}$:

$$\delta_{aer,\lambda} = \mu_0(\ln(L_{0,\lambda}) - \ln(L_\lambda))\text{-}(\delta_{Ray\lambda} + \delta_{g,\lambda}) \qquad \textbf{eq.3. 5}$$

Da eq 3.4, considerando uma massa de ar nula, m_{air}=0, como se não houvesse atmosfera, tem-se $L_{0,\lambda}$ =L_λ. Este valor é alcançado por extrapolação dos valores de L_λ medidos para diferentes massas de ar. As medições de L_λ, com o objectivo de obter o $L_{0,\lambda}$ fazem-se, preferêncialmente, em zonas de altitude, de atmosfera muito limpa, por forma a não se introduzirem erros na suposição do valor constante de espessura óptica. O valor de $L_{0,\lambda}$ assim obtido pode ser aplicado na fórmula eq 3.5 de forma a obter-se a espessura óptica dos aerossóis, conhecidos os valores da espessura óptica de Rayleigh ($\delta_{Ray,\lambda}$) e a espessura óptica dos diferentes gases ($\delta_{g,\lambda}$).

Para o cálculo da espessura ótpica dos aerossóis devem realizar-se as medições de L_λ em bandas do espectro de radiação sem absorção devida a gases. Neste caso, a espessura óptica total, δ_λ, será a soma da espessura óptica devido aos aerossóis e a espessura óptica de Rayleigh (devido ás moléculas), cujo valor pode ser determinado (Bodhaine, B.A. et al, 1999).

Com alguns espectrorradiómetros podem também realizar-se medições da radiância espectral solar dispersa no plano do sol, designado plano almucantar, Fig 3.4.

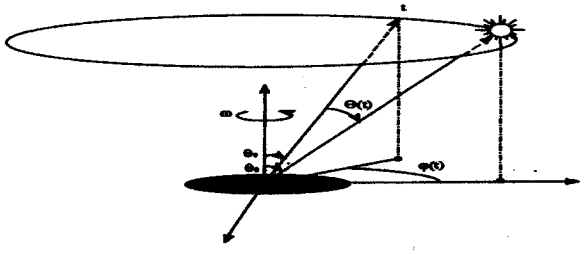

Fig.3.4 – Geometria de observação no plano do almucantar

Entende-se por plano do almucantar o plano que tem um ângulo zenital constante, igual ao ângulo zenital do sol, θ_s , e onde varia $\varphi_{v(i)}$, ângulo azimutal de observação. O ângulo de dispersão, $\Theta_{d(i)}$, relaciona-se com o ângulo azimutal de observação, $\varphi_{v(i)}$, no plano do almucantar, por:

$$\cos\Theta_{d(i)} = (\cos\theta_s)^2 + (\sin\theta_s)^2 \cos(\varphi_{v(i)} - \varphi_s) \qquad \textbf{eq.3. 6}$$

sendo φ_s o ângulo azimutal do sol.

As medições na região da auréola solar, região no plano almucantar para ângulos azimutais entre 3° e 25°, são de grande importância para a inversão, especialmente em aerossóis com um modo de partículas grandes.

Pode ainda fazer-se medições da radiação solar dispersa noutra geometria, o plano principal, onde o ângulo azimutal de observação se mantem constante, igual ao ângulo azimutal do sol, variando o ângulo zenital de observação. Esta geometria de observação não foi utilizada para a realização deste trabalho, sendo mais adequada às observações de radiância polarizada, devido à função de fase polarizada ser muito sensível à parte real do índice de refracção para grandes ângulos de dispersão. A observação da radiância espectral no plano principal tem o inconveniente de depender da estrutura vertical da distribuição de aerossóis, desconhecida *à priori.*

3.2.2.1.1. Características dos Instrumentos

As principais características dos espectrorradiómetro/ espectrofotómetro utilizados neste trabalho podem ser resumidos do seguinte modo:

i). FieldSpec FR (Full Range) ASD (Analytical Spectral Devices)– espectrorradiómetro de campo, portátil, que mede a radiação solar directa, entre 350nm e os 2500nm, com resolução espectral variável, com 1512 canais em todo o espectro de medição, podendo obter-se 10 espectros por segundo. É constituído por três detectores independentes: um primeiro detector (UV/VNIR) na banda 350 nm aos 1000nm, com uma resolução espectral de 3nm; um segundo, entre os 1000nm e os 1800nm (SWIR1) e um terceiro, dos 1800 nm aos 2500nm (SWIR2), ambos com resoluções espectrais de 10nm; o primeiro detector opera à temperatura ambiente e os dois detectores SWIR1 e SWIR2 são arrefecidos termoeléctricamente; a abertura do ângulo de observação, (FOV), é de 1°.

Citamos algumas características importantes neste instrumento:

- O sinal de fundo, sinal que o instrumento detecta quando a radiação de entrada é nula, fundamental para a qualidade das medições, é avaliado pelo

instrumento na fase de início dos procedimentos de medição e pode ser repetida durante a fase de medição sempre que se achar conveniente.

- precisão do comprimento de onda dado pelo instrumento é de +/-1nm.
- linearidade do sensor é de +/-1%.

As bandas centradas nos 500 e 670 nm correspondem a bandas de absorção do ozono, banda Chappius pelo que se deve proceder à sua correcção.

ii). Cimel CE318 - espectrofotómetro de varrimento angular em duas geometrias distintas, no plano de almucantar e no plano principal. Este instrumento tem dois colimadores, tubos limitadores de campo, um dos quais com o ângulo de abertura de observação de 1° (FOV de 1°), para as medições de radiância solar directa e outro com o ângulo de abertura de 5° (FOV de 5°) para medições de radiância difusa em duas geometrias. Este instrumento tem oito filtros que permitem realizar medidas da radiância directa para os comprimentos de onda:

- 440, 670, 870 e 1020 nm, com largura de banda de 10 nm, para o estudo dos aerossóis
- 936 nm para a determinação do vapor de água na coluna atmosférica.
- os outros três filtros são utilizados para medidas de polarização da radiância a 120° para o comprimento de onda de 870 nm.

O tempo de execução dum conjunto de medidas para a radiância solar directa é de 10s. As medidas polarizadas e as medidas na geometria do plano prinicipal não foram utilizadas neste trabalho. Este instrumento tem um detector que aponta ao sol com uma precisão de 0.1°, permitindo a medição automática. Holben et al, (1998), faz uma descrição dos procedimentos de aquisição de dados com este instrumento.

O Cimel CE318 pertencente ao CGE (Centro de Geofísica de Évora) fez medições durante a campanha Veleta 2002, tendo sido realizada uma pré-campanha de calibração numa região de elevada altitude, de ar muito limpo com valores muito baixos de turavação (Alados-Arboledas et al, 2004). A comparação das espessuras ópticas dadas pelo Cimel CE318 do CGE com outro instrumento calibrado pela AERONET, durante a campanha Veleta 2002, mostrou uma boa concordância dentro da incerteza da espessura óptica dos aerossóis (Estellés et al., 2004).

Este instrumento está inserido na rede de monitorização dos aerossóis AERONET (Aerosol Robotic NETwork) em duas estações localizadas em Évora e

Cabo da Roca., podendo os resultados ser obtidos em tempo quase real em http://aeronet.gsfc.nasa.gov

iii). ASP – Atmosphere Spectral Photometer – desenvolvido pelo Instituto de Meteorologia da Universidade de Leipzig, com 80 canais de bandas estreitas (de 8 nm no UV a 22 nm no infravermelho próximo) na gama de 355– 1075 nm (von Hoyningen et al, 1991)

iv). MFRSR – Multi Filter Rotating Shadow – band Radiometer – é fabricado pela Yankee Environmental Systems. Mede a irradiância solar espectral global e difusa descendente, operando nas bandas 413, 500, 616, 670, 865 e 930 nm mais uma banda larga dos 350 nm aos 1100 nm. Está instalado no Observatório de Física da Atmosfera do CGE, em Évora, e foi utilizado na campanha Veleta 2002.

3.2.2.2. Observação Remota em Satélites

Os satélites meteorológicos ou ambientais levam a bordo vários intrumentos, entre os quais os que medem a radiação electromagnética numa banda larga ou em multicanais espectrais (radiómetros e espectrorradiómetros).

Os satélites meteorológicos, usualmente utilizados, podem ter dois tipos diferentes de orbita em torno da Terra:

- Uma orbita geoestacionária, GEO (Geostationary Earth Orbit) em que a velocidade de rotação do satélite em torno da terra é identica à velocidade de rotação da terra, isto é, uma orbita completa a cada 24 horas. A área da terra observada pelo satélite é, então, sempre a mesma, podendo ter-se uma elevada resolução temporal consoante as características dos instrumentos. Estes satélites estão colocados numa orbita a cerca de 36000 km de altitude, sobre o equador terrestre. Devido à posição do satélite, o nadir (ponto com angulo de observação 0°, isto é, na vertical de observação do instrumento a bordo do satélite) é sobre a região equatorial, e as regiões polares apresentam em consequência uma grande deformação.
- Uma orbita polar, LEO (Low Earth Orbit) em que o satélite completa uma orbita em torno da terra com uma periodicidade que varia de noventa a cento e vinte minutos. Estas orbitam são realizadas a uma altitude muito inferior aos satélites geostacionários, em geral entre os 400 e os 2000 km. Devido às orbitas

mais baixas na atmosfera a resolução espacial, apesar de dependente dos instrumentos a bordo, é melhor que a dos satélites geostacionários.

Os satélites meteorológicos, em geral, têm orbitas heliossíncrones. São orbitas polares (ou quase polares), mas usando as perturbações causadas pela não esfericidade da terra se mantem constante o ângulo sol - terra – satélite. Isto consegue-se escolhendo uma dada inclinação do satélite para uma dada orbita (por exemplo, 98.8° para uma orbita de excentricidade zero e de semi eixo maior de 7228 km). Estes satélites, por serem heliossincrones, atravessam o equador no mesmo ponto à mesma hora local, todos os dias.

- Uma orbita prevista, para ser usada em satélites meteorológicos, num futuro próximo, é a orbita Molniya, uma orbita com grande excentricidade (altamente elíptica) e já usada em satélites de comunicação. Tem sido sugerido que esta orbita será útil para observações meteorológicas nas latitudes elevadas, estendendo as capacidades de observação contínua dos satélites geostacionários para todo o hemisfério Norte (e posteriormente para todo o mundo, consoante as orbitas). O programa da Nasa ESSP (NASA's Earth System Science Pathfinder) propôs recentemente uma nova missão dum satélite numa orbita Molniya especialmente destinada a observar os ventos polares (em latitudes elevadas).

3.2.2.2.1. Instrumentos a Bordo de Satélites Utilizados neste Trabalho

As imagens de detecção remota são adquiridas usando um sistema de detectores; os sinais são digitalizados, transmitidos, recebidos, processados e armazenados.

A observação de uma parcela por detecção remota em satélites é função das variações nas condições atmosféricas, do ângulo de visão do sensor, do ângulo solar, da sensibilidade radiométrica do sensor e da largura de banda, para além de erros instrumentais e de processamento.

Assim, a calibração dos instrumentos e a validação dos dados são actividades de grande importância de forma a garantir que os produtos de observação remota sejam altamente consistentes e reproduzíveis. A calibração é o processo de definir

quantitativamente a resposta do sistema para inputs conhecidos e controlados, em geral, sob regiões bem definidas.

O objectivo da calibração radiométrica é desenvolver uma equação de calibração que represente melhor a curva de calibração (gráfico da radiancia incidente versus contagens). Por outro lado, pretende-se obter uma determinação quantitativa dos coeficientes de ganho para esta equação, bem como as incertezas na medição da radiância usando estes coeficientes. Em geral, escolhe-se para região de operação do sensor a que corresponde uma resposta linear deste, isto é, onde o sinal de "output" varia linearmente com o sinal de "input".

A equação de calibração aplicada para converter contagens em radiâncias é, em geral, linear:

$$L_{cg} = \alpha(C - C_0) \qquad \textbf{eq.3. 7}$$

onde se relaciona contagem digital medida no sensor, C, com a radiância (L_{ch}, sinal de input, e expressa em Wm^2sr^{-1}); C_0 é o valor de intercepção do zero, em contagem, relacionado com o sinal de fundo.

Em alguns sensores, como no caso do MISR (Multi-angle Imaging SpectroRadiometer), a curva de calibração é quadrática:

$$C - C_o = G_0 + G_1 L_{ch} + G_2 L_{ch}^2 \qquad \textbf{eq.3. 8}$$

onde L_{ch} é a radiância incidente medida na banda ($Wm^{-2}sr^{-1}\mu m^{-1}$) para o canal, C é o número de contagem sobre a superfície, e C_o é o número de contagem correspondente ao sinal de fundo, G_0, G_1 e G_2 são os coeficientes de calibração.

O valor de C_0 é o valor de intercepção do zero, em contagem, relacionado com o sinal de fundo. O valor da radiância para uma dada banda espectral, entre os valores de comprimento de onda λ_{min} e λ_{max} é dada por :

$$L_{ch} = \int_{\lambda\,min}^{\lambda\,max} L_\lambda \, d\lambda \qquad \textbf{eq.3. 9}$$

onde L_λ é a radiância ($Wm^{-2}sr^{-1}\mu m^{-1}$) para o comprimento de onda, λ, na banda espectral e L_{ch} é a radiância total da banda espectral.

Cada banda espectral dum determinado sensor tem uma função de resposta característica. A radiância para a banda é, então, dada por:

$$L_{ch} = \int_{\lambda\min}^{\lambda\max} L_\lambda d\lambda = \frac{\int_{\lambda\min}^{\lambda\max} fR_\lambda L_\lambda d\lambda}{\int_{\lambda\min}^{\lambda\max} fR_\lambda d\lambda} \qquad \textbf{eq.3. 10}$$

onde fR_λ é a função de resposta espectral para uma dada banda, característica do instrumento óptico e sensor.

Se o sinal de input excede um valor crítico definido para cada sensor, a resposta torna-se não linear ou atinge o nível de saturação

Durante o processo de calibração, que é sempre uma comparação com uma referência, é importante determinar como o sistema responde aos sinais vindos de diferentes partes da "cena". A óptica do sensor será o factor determinante.

Antes do lançamento do sensor em orbita é feita uma calibração sob condições controladas em laboratório caracterizando os sensores quanto às suas propriedades: radiométricas, espectrais, polarimétricas e geométricas

Após o lançamento as características dos detectores e filtros dos sensores têm muitas vezes modificações. Assim, as calibrações pre lançamento deixam de ser óptimas. Acrescenta-se a degradação do sensor com o tempo (usualmente dado em percentagem de degradação por ano)

O método usado, neste trabalho, para obtenção das características ópticas dos aerossóis a partir de medições por instrumentos a bordo de satélite exige que o radiómetro tenha mais de duas bandas na região vísivel e infravermelho próximo do espectro de radiação electromagnética. Se os dados a tratar forem observados sobre mar quaisquer bandas (mais de duas) entre os 400 e os 1000 nm podem ser usadas; se estiver a tratar dados recolhidos sobre terra temos de ter em atenção a reflectividade da superfície da terra, sendo, normalmente, apenas usadas as bandas entre os 400 e os 600 nm, que correspondem a menores valores de reflectividade, especialmente quando se tratam dados sobre vegetação.

3.2.2.2.1.1. SeaWIFS (Sea Viewing Wide Field of View Sensor)

O SeaWIFS é um radiómetro a bordo do satélite SeaStar, desenvolvido pela Orbital Sciences Corporation (OSC), com o objectivo principal de ter um conjunto de dados da cor do oceano.

O satélite foi lançado a 1 de Agosto de 1997 numa orbita LEO, helio-síncrone, a uma altitude de 705km, com uma inclinação de 98° 20'. A orbita final foi atingida 20 dias após o lançamento, e começou a adquirir dados 10 dias depois.

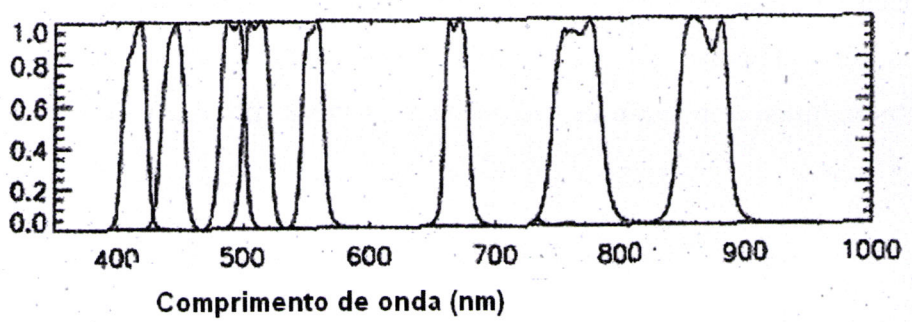

Fig.3.5 Função de resposta das bandas do SeaWIFS (MUMM OceanColour_Sensors.pdf)

Tabela 3.1

Bandas do SeaWIFS	
Bandas	**Comprimento de Onda (nm)**
1	402-422
2	433-453
3	480-500
4	500-520
5	545-565
6	660-680
7	745-785
8	845-885

O SeaWIFS, considerado como um instrumento no seguimento do CZCS (Coastal Zone Color Scanner), é um radiómetro que consiste dum scanner óptico e dum módulo electrónico, com oito bandas na região do vísivel e infra vermelho próximo do espectro de radiação solar, (Tabela 3.1).

O ângulo de observação instantâneo do instrumento (IFOV, Instantaneous Field of View) é 1.6 mrad por pixel, com um varrimento cobrindo um ângulo de observação de 58.3° a partir do nadir. O scanner do SeaWIFS pode inclinar-

se de +20°, 0,-20°, relativo ao nadir, para minimizar o número de medições contaminadas com "glint". O desenho concebido para o SeaWIFS foi de forma a minimizar a sensibilidade do instrumento à luz polarizada. As funções de resposta do sensor para as 8 bandas estão representadas na Fig. 3.5

Um aspecto muito interessante neste instrumento é o facto de ter sido modificado de forma a produzir uma resposta bilinear, estendendo substancialmente a gama dinâmica de contagem (e, portanto, de medição). Como resultado desta característica não é esperado saturação sobre nuvens, ou areia branca, gelo, etc...Assim, por exemplo, para a banda 1 (402-422 nm, centrada em 412 nm), Fig.3.6, tem uma sensibilidade muito elevada, considerávelmente inferior a 1 mW/ contagem sobre três quartos da gama dinâmica da banda. Acima deste ponto a sensibilidade do canal é reduzida, permitindo a medição de radiâncias de nuvens (por exemplo) acima dos 60 mW.

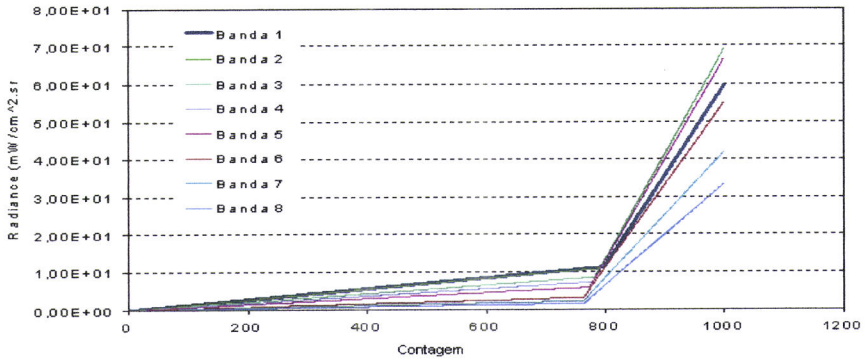

Fig.3.6. Gráfico mostrando as curvas de calibração para as 8 bandas espectrais do SeaWIFS

3.2.2.2.1.2. MISR (Multi-angle Imaging SpectroRadiometer)

Este espectrorradiómetro encontra-se a bordo do satélite Terra, com uma orbita polar a 705 km de altitude, e uma inclinação de 98.3° que permitem observar a superfície da terra em latitudes superiores a 81°. A bordo deste satélite, para além do MISR encontram-se os radiómetros ASTER (Advanced Spaceborne Thermal Emission and Reflection Radiometer), CERES (Clouds and the Earth's Radiant Energy System), MODIS (Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer), MOPITT (Measurements

Of Pollution In The Troposphere) e faz parte do sistema de obsevação da terra (EOS, Earth Observing System).

O objectivo deste espectrorradiómetro é estudar a ecologia e o Clima da Terra através da aquisição de dados de radiação solar reflectida duma forma sistemática e global, de forma a monitorizar a radiância no topo da atmosfera e a reflectida pela superfície da terra, e caracterizar as propriedades radiativas dos aerossóis, nuvens e superfície nos pequenos comprimentos de onda. É o primeiro instrumento a obter dados sobre a terra em nove ângulos diferentes simultaneamente em cada uma das 4 bandas espectrais, apresentadas na tabela 3.2. É constituído por nove câmaras: uma aponta no nadir (ângulo de observação 0º), quatro apontam para ângulos do lado direito do nadir e outros quatro do lado esquerdo do nadir. Os ângulos de observação são:0º (nadir), 26.1º, 45.6º, 60.0º, 70.5º.

Tabela 3.2

Bandas do MISR	
Bandas	**Comprimento de Onda (nm)**
1	425-467
2	543.5-572.5
3	661-683
4	846-886

A resolução espacial varia de 250 m a 1.0km, para a câmara no nadir, e de 275 m a 1.1 km, para os outros ângulos de observação, consoante o modo de operação: modo local (LM) de alta resolução, modo global (GM) de menor resolução e o modo de calibração (CM). No trabalho realizado com dados do MISR usou-se apenas a câmara no nadir, com a maior resolução espacial.

Este espectrorradiómetro tem, na região vísivel e infra vermelho do espectro de radiação electromagnética, quatro bandas espectrais. O sinal para cada uma das bandas tem a forma gaussiana centradas em 443, 555, 670 e 865 nm, (Tabela 3.2)

As medições de radiância são obtidas com um rigor de cerca de 3% sobre elevadas reflectividade e a insensibilidade à polarização é de mais ou menos 1%. Cada elemento de pixel fotoactivo estimulado pela radiância incidente responde com um output medido em contagem (número digital).

3.3. Campanhas de Observação dos Aerossóis Atmosféricos no Âmbito deste Trabalho

3.3.1. Campanha ACE 2 (2nd Aerosol Characterization Experiment)

O primeiro objectivo das campanhas ACE (Aerosol Characterization Experiment), organizadas pelo IGAC (International Global Atmospheric Chemistry) foi a determinação das propriedades dos aerossóis naturais e antropogénicos em três regiões distintas do globo.

A campanha do ACE1 foi realizada numa atmosfera de influência de massas de ar marítimas remotas, no sul da Austrália. A campanha do ACE2 foi conduzida numa atmosfera de influência de massas de ar antropogénicamente modificadas, na região Este do Atlântico Norte, desde o sul de Portugal às ilhas Canárias, entre 16 de Junho a 24 de Julho de 1997 (Raes, F. et al, 2000). A campanha ACE3 foi realizada na região da Ásia/Oceano Índico. Portugal participou na campanha ACE2 com uma equipa de investigadores da Universidade de Évora, que coordenou a equipa portuguesa que incluíu o Instituto de Meteorologia no projecto CLEARCOLUMN, com a plataforma observacional em Sagres e em Foia.

Os objectivos específicos do ACE2, (Raes, F. et al, 2000), foram:

a) Determinar as propriedades físicas, químicas, radiativas e de nucleação em nuvens, de aerossóis de origem antropogénica, na região do Atlântico Norte, e investigar as relações entre estas propriedades;

b) Quantificar os processos físicos e químicos, controlando a evolução dos principais tipos de aerossóis;

c) Desenvolver procedimentos para extrapolar as propriedades e processos dos aerossóis da escala local para a regional e global, e estimar o forçamento radiativo regional directo e indirecto por aerossóis de origem antropogénica na região Atlântico Norte.

O projecto ACE2 incluiu seis sub-projectos, (Raes, F. et al, 2000) entre os quais o projecto CLEARCOLUMN do qual são apresentados deiversos resultados neste trabalho. O projecto CLEARCOLUMN teve como objectivo o estudo dos efeitos

radiativos dos aerossóis, integrado sobre uma coluna vertical numa atmosfera sem nebulosidade, usando medições à superfície e em outros níveis na atmosfera (avião e satélite), com plataforma observacional em Sagres e em Foia (Russell and Heintzenberg, 2000).

A campanha ACE2 CLEARCOLUMN teve como plataformas observacionais as estações de Sagres e de Foia, ambas na região sudoeste de Portugal, e o observatório de Izaña, nas ilhas Canárias. O principal objectivo era avaliar a incerteza dos métodos usados na obtenção do forçamento radiativo directo dos aerossóis no Atlântico Norte. Para atingir este objectivo foram medidas as propriedades ópticas dos aerossóis quer na coluna atmosférica quer os seus perfis realizando observações a diferentes altitudes, esquematicamente representadas na Fig. 3.7. As diferentes observações (na coluna atmosférica e a diferentes altitudes) das propriedades ópticas e microfísicas dos aerossóis foram relacionadas recorrendo quer a modelos de transferência radiactiva quer a modelos de aerossóis. Em cada coluna, mediu-se ou calculou-se os parâmetros dos aerossóis necessários para quantificar o forçamento radiativo dos aerossóis troposféricos. Pretendeu-se também usar parâmetros ópticos dos aerossóis obtidos de satélite e relacioná-los com os medidos na coluna atmosférica, à superfície, e "in situ".

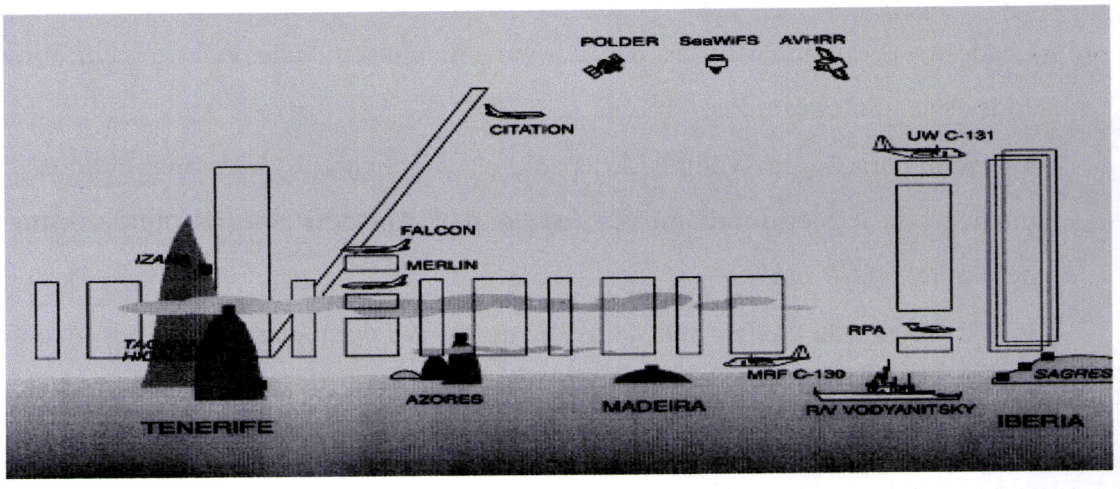

Fig. 3.7 Esquema de diferentes plataformas de observação dos aerossóis na campanha ACE-2 CLEARCOLUMN (Raes, F. et al, 2000)

Neste trabalho apresentam-se, no Capítulo 5, os resultados de diferentes relações entre as propriedades ópticas dos aerossóis, obtidas em duas das plataformas da campanha ACE2 CLEARCOLUMN, uma localizada em Sagres (37ºN, 09ºW, 50m

de altitude) e a outra em Foia (37.31°N, 08.6°W, 902m de altitude), ambas situadas na região sudoeste de Portugal. Em Sagres as medidas foram realizadas na Base Radionaval, localizada no extremo Sudoeste de Portugal a cerca de 1km a Noroeste da cidade de Sagres. O local das medições ficava aproximadamente a 1km da costa Oeste de Portugal e a cerca de 100m da costa Sul, a uma altitude de 50 m. Neste local, a influência das actividades humanas foi desprezável. Durante a campanha, que decorreu cerca de dois meses, a direcção predominante do vento foi de Norte-Noroeste. Quando a direcção do vento era de Norte as regiões ao longo da costa influenciavam as características dos aerossóis observados em Sagres. Em Foia as medições foram obtidas na Base Aérea, localizada a aproximadamente 50 Km a Nordeste de Sagres e a 902 m de altitude. A vizinhança do local não era afectada directamente por actividades humanas. Devido à altitude e particularidades da região o local encontrava-se, em geral, nas primeiras horas do dia, acima da camada limite de mistura. Próximo do meio do dia e início da tarde a camada limite de mistura subia até acima do local descendo novamente durante a noite. Durante o período de observação notou-se um ciclo diurno na observação das características dos aerossóis, encontrando-se o local, muitas vezes numa camada muito limpa.

Em ambas as estações foram realizadas comparações entre valores de propriedades ópticas e microfísicas dos aerossóis medidas ou calculadas. Assim, foram realizados os seguintes estudos:

- comparação dos valores dos parâmetros ópticos dos aerossóis obtidos por medição de espectrorradiómetros (na coluna atmosférica) e os obtidos com o nefelómetro ("*in situ*");
- comparação da distribuição de diâmetros das partículas obtidas por inversão de medidas ópticas de espectrorradiómetro e por medição directa "in situ";
- comparação de medições dos coeficientes de dispersão medidos com o nefelómetro com os valores calculados a partir das distribuições de dimensões medidas.

Em Foia os instrumentos de observação *"in situ"* estavam instalados num contentor, e retiravam a amostra de ar a cerca de 30 m de altura acima da superfície. A amostra de ar passava por uma cabeça de amostragem PM10, o que significa que apenas entravam partículas com diâmetros aerodinâmicos inferiores a 10 μm, e era

transportada por uma tubagem até ser distribuída para cada um dos instrumentos instalados: nefelómetro, aetalómetro e DMPS. Em certas condições meteorológicas (grandes valores da velocidade do vento e, para certas direcções do vento, à altura da cabeça de amostragem) foram detectadas situações em que houve perdas de aerossóis de maiores dimensões que não chegaram a ser admitidos nos diferentes instrumentos (ver no cap.V.- 5.2.2)

A instrumentação em cada um dos locais e relevante para este trabalho está indicada na Tabela 3.3

Tabela 3.3

Instrumentos e Localização

LOCAL	ESPECT.RADIÓM	NEFELÓM.	DIMENS. PART.
Sagres (50m)	ASP (LIM)	TSI 3563 (U.I.)	TDMPS (IFT)
Foia (900m)	FieldSpec FR (I.M.)	TSI 3563 (U.E.)	DMPS (IFT) APS (IFT)

3.3.1.1. Condições Meteorológicas durante a Campanha

As condições sinópticas no Sul de Portugal durante a campanha ACE2 CLEARCOLUMN apresentaram influência marítima acentuada (16 de Junho a 3 de Julho) e na parte final da campanha influência continental. Assim:

- de 16 de Junho a 3 de Julho, a situação meteorológica foi influênciada pelo Anticiclone dos Açores, localizado, em geral, a noroeste do Arquipélago dos Açores, estendendo-se em crista sobre a Península Ibérica, alternando temporáriamente com a passagem duma depressão nas regiões a norte da Península Ibérica. Durante todo este período a massa de ar dominante foi marítima, com aerossóis marítimos (Fig.3.8). Observou-se alguma contaminação com ar continental, devido à passagem pelas zonas costeiras, com poluição industrial, de Portugal, especialmente por Estarreja, Lisboa e Sines, nos dias 17 a 19 e 23 a 25 de Junho. De 25 de Junho a 3 de Julho, uma depressão persistente,

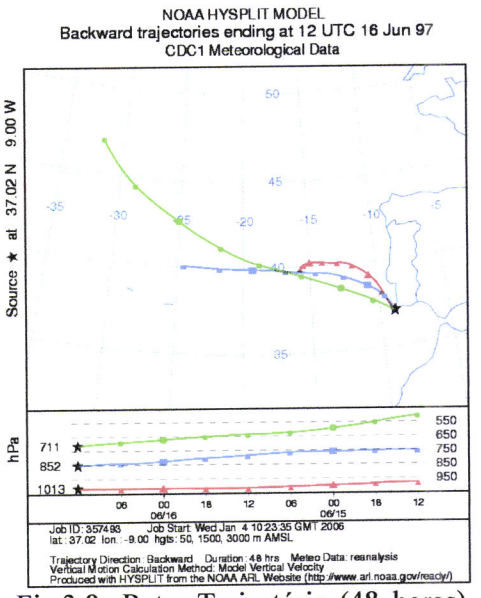

Fig.3.8 -Retro-Trajectória (48 horas) para o dia 16 de Junho, com trajectória sobre o Atlântico norte para todos os níveis (Produzido por HYSPLIT-NOAA ARL).

panha e França, transportava aerossóis de regiões continentais industrializadas, ou seja, poluição industrial/urbana. Este período correspondeu aos primeiros acontecimentos de medição de níveis de poluição em Sagres.

- de 10 a 14 de Julho, a acção conjunta do anticiclone dos Açores, que se estendeu para leste, e duma depressão centrada nas Ilhas Britânicas condicionaram as condições meteorológicas durante este período.

centrada sobre a Grã-Bretanha, levou a que a corrente dominante fosse de norte, com uma massa de ar polar marítima

- de 4 a 9 de Julho, o enfraquecimento da depressão conduziu à intensificação do anticiclone dos Açores, que se estendeu até à Europa Central, com uma região depressionária a sul da Península Ibérica. Durante este período, a massa de ar continental, com origem nas regiões do norte de F

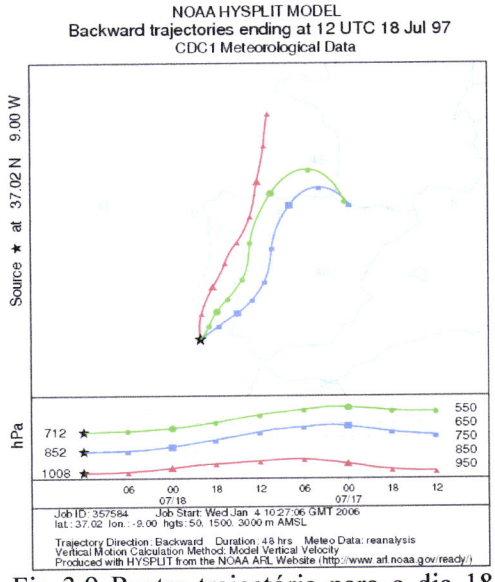

Fig 3.9 Rectro-trajectória para o dia 18 de Julho de 1997, referente a um período de 48 horas (Produzido por HYSPLIT-NOAA ARL).

- de 15 a 25 de Julho as condições sinópticas foram influênciadas pela posição do anticiclone dos Açores a estender-se para o norte de França, pela depressão centrada a sul de Portugal com um vale a estender-se para norte, permitindo a circulação de ar quente e seco do norte de África, e pela depressão centrada na europa de leste. As trajectórias mostram o trajecto continental (Fig.3.9)

Com base na análise de rectro-trajactórias para diferentes níveis e de sondagens podemos dividir todo o período da campanha em três situações consideradas tipicas:

1) Situação de ar tipicamente marítimo limpo (16/06 – 30/06/97) em que as sondagens revelaram que Foia e Sagres estiveram a maior parte do tempo no interior da camada de aerossóis de origem marítima, que se estendia desde o nível do mar, ou seja, dentro da camada limite marítima. Para este mesmo período as trajectórias mostraram que a sua origem, para os níveis de 500 e 700 hPa, era na costa dos Estados Unidos ou no Atlântico, e para os níveis da superfície, 925 e 850 hPa era o norte da Escócia e da Islândia.

2) Situação de ar marítimo/marítimo poluído (1/07 – 14/07/97) em que as sondagens revelaram que Foia esteve, a maior parte do tempo, entre duas diferentes camadas de aerossóis e Sagres esteve sempre dentro da camada limite marítima. As trajectórias tiveram origem marítima no Atlântico Norte e junto do Canadá e Gronelândia, para os níveis 500 e 700 hPa; para os níveis da superfície, 925 e 850 hPa as origens localizaram-se sobre o oceano Atlantico entre Islândia e Escócia, no Norte de França ou no Golfo da Biscaia.

3) Situação de ar tipicamente continental/continental poluído (17/07 – 21/07/97) em que as sondagens revelaram que Foia esteve a maior parte do tempo entre duas diferentes camadas de aerossóis, excepto para o último dia. Durante este período as trajectórias mostraram diferentes origens: aos 500 hPa com origem no Oceano Atlântico, aos 700 hPa a origem foi, normalmente no Norte de África, para o nível da pressão à superfície, e níveis isobáricos de 925 e 850 hPa as trajectórias foram essencialmente de E, NE e N, sobre o continente e sua origem foi normalmente continental: Norte da Europa, Norte de Espanha e um dia da Costa Africana.

3.3.2. Campanha SAFARI 2000

SAFARI 2000 (Southern African Regional Science Initiative) foi um projecto regional de iniciativa internacional, concebido para identificar e compreender as emissões, transporte, transformação e deposição dos gases traçadores e aerossóis sobre a região do sul de África (incluindo África do Sul, Moçambique, Botswana, Zimbabwé, Zambia, Malawi), em particular a caracterização e quantificação dos aerossóis de fogos de savana e de origem antropogénica e a sua influência no clima regional. Com este fim, foram realizadas, no período de Março de 1999 a Março de 2001, três campanhas de observação intensiva, uma na estação seca e duas na estação húmida. A 3ª campanha intensiva de campo na época seca (Agosto e Setembro de 2000) foi a actividade mais intensiva e envolveu cerca de 200 investigadores de 80 Países (Swap et al, 2002).

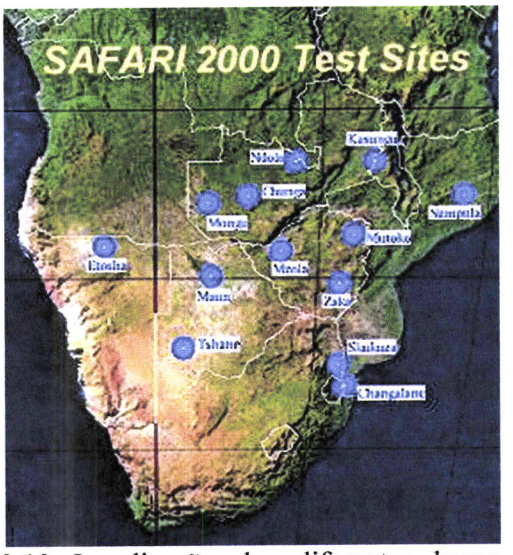

Fig3.10 Localização das diferentes bases de apoio instrumental à campanha SAFARI 2000, no período de Agosto e Setembro de 2000

O Centro de Geofísica da Universidade de Évora participou com um nefelómetro (TSI 3563) a bordo dum avião da South African Weather Bureau Aerocommander, JRB, estacionado no aeroporto de Pietersburg, (Lat. 23.883S; Long: 29.45E). As equipas de investigação estabeleceram-se em diferentes locais do Norte, Centro e Sul de Moçambique, África do Sul, Zimbabwé e Botswana, com diferentes instrumentos e objectivos.

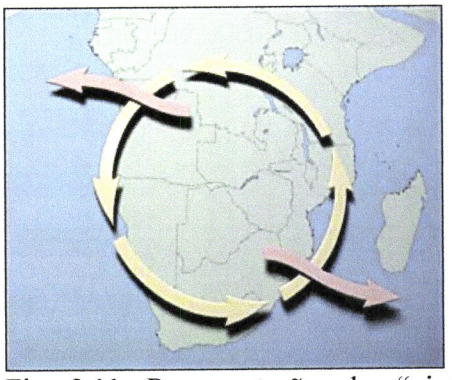

Fig 3.11 Representação do "giro" anticiclónico e a saída períodica de poluentes para o Atlântico Sul e Índico

Estas campanhas foram concebidas a partir do pressuposto que os aerossóis

produzidos nas queimadas nas savanas de África pudessem atingir regiões longínquas no Atlântico Sul (detectado no Brazil, Andreae, M.O., et al, 1994) e no Índico (Lacaux, J.P., et al, 1996). A circulação atmosférica na região Sul de África leva à formação de um anticiclone estável e bem definido, que persiste anualmente, em média, cerca de 2/3 do tempo (Garstang et al, 1996). A combinação de ondas de leste no norte e de ondas de oeste a sul e o sistema de altas pressões situado entre elas contribuem para esta circulação que capta e acumula, por vezes, mais de duas semanas, os produtos poluentes de emissões nas regiões mais industrializadas da África do Sul, permitindo a recirculação dos aerossóis e gases traçadores (Tyson et al, 1996). Periodicamente este "giro anticiclónico" desfaz-se permitindo que os poluentes e aerossóis sejam transportados para o Atlântico Sul, (Swap, R., et al, 1996), Fig 3.11.

Neste projecto um dos principais objectivos foi o estudo dos forçamentos radiativos directos e indirectos no clima pelos aerossóis produzidos pelos fogos sazonais na savana africana, na época seca, de Julho a Setembro, nesta região do sul de África. Para além da caracterização dos aerossóis dos fogos florestais e dos seus efeitos nos forçamentos radiativos, pretendeu-se também estudar o transporte e transformação dos aerossóis das regiões industrializadas da África do Sul para outras regiões do sul de África, designadamente para Moçambique, Suazilândia e Botsuana.

No âmbito deste trabalho foram utilizadas as medidas dos coeficientes de dispersão (nefelómetro, TSI 3563, pertencente ao Centro Geofísica de Évora), e medidas de radiância, na região de estudo, do radiómetro MISR (Multi-angle Imaging SpectroRadiometer), a bordo do satélite TERRA, e dos espectrorradiómetros CIMEL, das estações da AERONET Inhaca e Sukuza, com o objectivo de obter as características dos aerossóis presentes, espessura óptica e os parâmetros de Angstrom, a partir dos quais se puderam inferir as suas propriedades microfísicas.

3.3.3. Campanha Veleta 2002

Da colaboração entre a Universidade de Évora/Centro Geofísico de Évora e a Universidade de Granada resultou a participação na campanha Veleta 2002, realizada em Espanha, junto de Granada (Serra Nevada), em Julho de 2002.

O objectivo principal desta campanha observacional era estudar os efeitos da altitude na radiação Ultra Violeta (UV) que atinge a superfície da terra (Alados-

Arboledas,L. et al, 2004). Para estudar a modificação causada pelos aerossóis na distribuição espacial e angular da radiação solar foram feitas medidas espectrais de radiação solar, em plataformas localizadas a diferentes altitudes e em diferentes locais relativos à direcção dos ventos dominantes na Serra Nevada, fig 3.12.

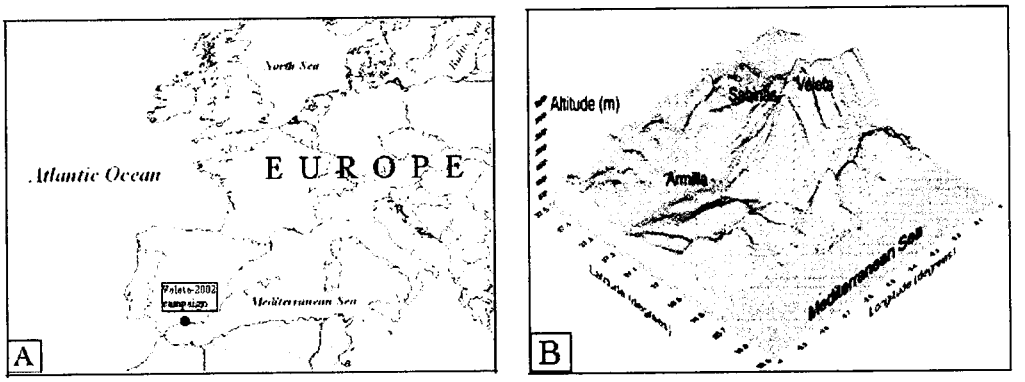

Fig.3.12 Campanha Veleta 2002; A) Localização Geográfica; B) Topografia da região mostrando diferentes locais de observação

As observações espectrais da radiação solar nas diferentes plataformas cobriram diferentes gamas de espectros e recorreram a diversos instrumentos entre os quais os mais dedicados à obtenção das propriedades dos aerossóis. Assim, foram instalados em locais distintos (Tabela 3.4) espectrorradiómetros do tipo CIMEL e um LIDAR móvel de dois canais. Um dos espectrorradiómetro CIMEL (CE318) da Universidade de Évora (CGE) esteve instalado em Armilla.

As medições realizadas em Ahí de Cara destinaram-se a calibrar e intercomparar os diferentes instrumentos, posteriormente instalados nos outros locais.

Tabela 3.4

Localização das estações de observação com CIMEL (CE318)

Local	Instituições	Coordenadas
Ahí de Cara	NASA,GOA,UGR1, UGR2, GRSV, CGE	Lat:37.12°N; Long:3.43°W; Alt:2103m
Armilla	GOA, UGR2,CGE	Lat:37.13°N; Long:3.63°W; Alt:680m

Durante a campanha distinguiram-se quatro diferentes condições meteorológicas associadas a diferentes tipos de aerossóis que atingiram as regiões de estudo:

- "background", associado a condições consideradas como as normais para região e para a época do ano (verão), com uma depressão térmica centrada no interior da Península Ibérica e um anticiclone localizado no mediterrâneo. Estas condições foram observadas frequentemente entre os períodos de aerossóis continental poluído e os episódios de poeiras do deserto.
- "limpo",associado a condições de atmosfera limpa, com uma massa de ar polar, em que a espessura óptica dos aerossóis era extremamente baixa, especialmente observadas no dia 14 de Julho.
- "continental poluido", associado a condições de transporte de poluição de regiões continentais, especialmente da Europa Central .
- "poeiras do deserto", associado a condições de transporte de poeiras do deserto. Estas condições ocorreram no fim da campanha, entre 18 e 22 de Julho.

CAPÍTULO IV

Metodologia de Estudo dos Aerossóis Atmosféricos.

4.1 Introdução

Quando se realiza o estudo das propriedades dos aerossóis atmosféricos e dos seus impactos no balanço radiativo do sistema climático é importante começar por classificar os tipos de aerossóis em presença, a sua origem e trajectória. Às diferentes massas de ar, podem associar-se alguns tipos principais de aerossóis atmosféricos. É o caso, por exemplo, de aerossóis marítimos associados a massas de ar marítimo de origem no Atlantico Norte e com trajectória sobre o oceano; ou o caso de aerossóis continentais, rural ou poluído, associados a massas de ar de origem continental com trajecto sobre regiões agrícolas ou industriais; ou ainda o caso dos aerossóis de deserto associados a massa de ar continental com origem no deserto do Sahara.

Pelo facto dos aerossóis troposféricos serem caracterizados por uma grande variabilidade temporal e espacial o seu estudo, e o conhecimento da sua distribuição na atmosfera, exige diferentes métodos. Neste trabalho, vai recorrer-se, de uma forma quase sistemática, à combinação de observações de detecção remota, à superfície e em satélites, e a observações *"in situ"* para obter as propriedades físicas de aerossóis.

Enquanto a utilização da detecção remota à superfície ou em satélite permite obter informação dos aerossóis em toda a coluna atmosférica, a utilização das observações *"in situ"* à superfície permite conhecer as características dos aerossóis localmente nas camadas mais baixas da atmosfera, o que normalmente difere do tipo de aerossóis que se obtém na coluna atmosférica. O modelo de inversão utilizado é o modelo CIRATRA (Coupled Inversion Radiation Transfer) que foi modificado para se adaptar de forma conveniente ao trabalho aqui desenvolvido.

A caracterização dos aerossóis troposféricos realizou-se sob dois aspectos diferentes:

- Numa primeira abordagem recorreu-se a medidas da radiância solar directa descendente e da radiância solar dispersa no plano do almucantar, em diversos

comprimentos de onda, e ao modelo CIRATRA modificado, para inferir as propriedades físicas dos aerossóis numa coluna atmosférica: i) a espessura óptica, relacionada com a carga de aerossóis; ii) o índice de refracção, relacionado com a natureza dos aerossóis e iii) o espectro de dimensões opticamente equivalente. Este método permite uma resolução temporal de observação muito boa, com várias observações por dia, num mesmo local, quer em campanhas intensivas de observação ou em estações de observação, onde se instalem radiómetros. No entanto, não permite uma cobertura espacial boa de forma a ter-se uma distribuição espacial, à escala regional, dos aerossóis.

Por outro lado, com esta abordagem não é possível a caracterização do perfil vertical dos aerossóis, isto é, não permite dizer nada sobre a existência de mais de uma camada de aerossóis, ou de tipos diferentes de aerossóis, ou das altitudes das camadas onde se encontram. Para se conhecer a distribuição vertical dos aerossóis e as suas propriedades, recorreu-se a informação adicional, para além da anteriormente referida, observações *"in situ"*, recolhida a uma altura conhecida, em geral próximo da superfície, designadamente às medidas dos coeficientes de dispersão ou de absorção espectrais ou à distribuição de dimensões das partículas. A combinação da informação obtida por detecção remota à superfície e por observação *"in situ"* foi complementada com recurso à análise de retro trajectórias das massas de ar, em diversos níveis isobáricos e à análise das situações sinópticas e das características do local. As observações *"in situ"* permitem uma resolução temporal de poucos minutos, podendo fazer-se uma monitorização práticamente continua num dado local e a uma dada altura, em geral próxima da superfície.

- Numa segunda abordagem e, complementando a informação obtida pela abordagem anterior e no sentido de permitir uma caracterização espacial regional dos aerossóis, recorreu-se às medidas de radiâncias fornecidas por satélites, após retirada a contribuição da reflectância da superfície da terra. Estas medidas foram comparadas com as radiâncias estimadas ao nível do satélite em função do tipo de aerossóis, reflectância da superfície, geometria solar e de observação do satélite (Look-up-Tables, LUT), para extrair as propriedades físicas dos aerossóis numa dada região inserida no campo de visão do satélite.

Em geral, as chamadas Look-Up-Tables, LUT, são construídas partindo duma classe de aerossol caracterizado, em termos médios, por uma função de fase, um índice de refracção e uma distribuição de dimensões fornecidas pelos modelos ou observado, e, aplicando um modelo de transferência radiativa (no nosso caso utilizou-se quase sempre o modelo de transferência radiativa que incluí a dispersão múltipla, IMS, de Nakajima e Tanaka, 1988, e, por vezes, o modelo 6S). Deste modo, pode calcular-se a radiância ao nível do satélite para diferentes reflectâncias da superfície e para diferentes geometrias solar e de observação do satélite. Neste trabalho, para a construção das LUT, não se recorreu, como é prática comum, a modelos de aerossóis já existentes, mas às características físicas dos aerossóis determinadas a partir das observações fornecidas pelos espectrorradiómetros à superfície, conjugadas com o CIRATRA. As LUT, assim construídas, foram aplicadas às observações por satélite, no local e dia em estudo. Este método permite monitorizar um determinado tipo de aerossol, sendo especialmente importante na monitorização de eventos de poeiras do deserto, de poluição industrial, ou de aerossóis resultantes de fogos. Foram usados diversos tipos de satélites que transportam a bordo radiómetros com mais de duas bandas na região visível e infravermelho próximo e, com resoluções espaciais diferentes (ver secção 3.2.2.2).

A segunda abordagem, em que se recorreu às medidas de radiância de satélite, foi igualmente aplicada sobre terra, e não apenas sobre oceano, onde, contrariamente ao que se observa sobre terra, a contribuição da radiância reflectida na superfície da água no valor da radiância total recebida no satélite é desprezável. No caso deste trabalho, onde se inferiram as propriedades dos aerossóis a partir da radiância recebida no satélite sobre terra, e, onde a contribuição da radiância reflectida pela superfície na radiância recebida é significativa, levantam-se vários problemas que contribuem para a incerteza do resultado. Destaca-se o facto da reflectância da superfície ser muito variável no espaço e no tempo, e, em geral desconhecida. Destaca-se ainda o facto de ser necessário utilizar um modelo de elevação sobre terra de forma a permitir uma boa correcção da dispersão de Rayleigh no valor da radiância total recebida no satélite e, assim, permitir identificar a componente desta devido à dispersão produzida pelos aerossóis, da qual se obtem as suas propriedades. Neste trabalho são apresentadas metodologias que procuram minimizar as incertezas da reflectância da superfície e da elevação do terreno na inferência das propriedades dos aerossóis.

4.2 Modelo de inversão CIRATRA (Coupled Inversion Radiation Transfer).

Os aerossóis atmosféricos, pela enorme variação na sua composição química e física, no espaço e no tempo, constituem um sistema altamente complexo, não completamente determinado. No entanto, as características ótpicas dos aerossóis podem ser usadas para inferir algumas das propriedades físicas da população de aerossóis. Uma das mais importantes propriedades físicas dos aerossóis atmosféricos é a distribuição de dimensões das partículas a qual pode ser obtida por inversão dos dados ópticos, associada com a dependência, de uma ou mais propriedades ópticas, do comprimento de onda e/ou com a dependência angular. Se se utilizarem medidas da espessura óptica dos aerossóis, e a sua dependência do comprimento de onda, o resultado esperado da inversão é a distribuição colunar (em toda a coluna atmosférica) de dimensões dos aerossóis, ópticamente equivalente, que não coincide necessáriamente com a distribuição de dimensões das populações de aerossóis existentes na coluna. Para a solução deste problema há vários métodos numéricos que não apresentam, no entanto, uma solução única.

Todos os métodos de inversão, desenvolvidos nas últimas décadas, tentam resolver um conjunto de equações integrais por diferentes métodos matemáticos. Como a solução não é única, todos os algorítmos requerem um passo em que se tem de escolher/ determinar qual o resultado que melhor representa a distribuição de dimensões dos aerossóis na actual atmosfera. Vários algorítmos utilizam para além da espessura óptica espectral dos aerossóis a distribuição angular da radiância dispersa para obter a distribuição de dimensões dos aerossóis (Nakajima et al, 1983, 1996) e o índice de refracção complexo (Wendish and von Hoyningen-Huene, 1994; Yamasoe et al., 1998; O.Dubovik and M.D.King, 2000). No caso presente recorreu-se ao modelo de inversão (CIRATRA), no qual foram introduzidas várias alterações adiante apresentadas.

4.2.1. Descrição do CIRATRA

O modelo de inversão utilizado neste trabalho é o CIRATRA (Coupled Inversion Radiation Transfer), (von Hoyningen-Huene, Wendisch, 1994) modificado, em que se obtem como resultado:

- a distribuição colunar, opticamente equivalente, de dimensões dos aerossóis;
- a função de fase dos aerossóis a partir dos dados de dispersão angular;
- a parte real do índice de refracção, obtida da comparação entre a radiância medida e calculada no plano do almucantar, para o comprimento de onda de 0.87μm;
- No entanto, o algoritmo original foi modificado pela autora, permitindo que a parte imaginária do índice de refracção seja também obtida de forma semelhante à parte real do indice de refracção. Na versão original a parte imaginária do índice de refracção era imposta no início da inversão. Para isso, tinha de haver um conhecimento prévio do tipo de aerossol que se pretendia analisar, e, do qual se pretendia obter as propriedades físicas.

A versão original do CIRATRA (von Hoyningen-Huene, Wendisch, 1994) é constituída por um conjunto de programas em Fortran 77, que correm ligados por batch em MSDOS e que a seguir se descrevem:

i) Programa de inversão em que a partir das medidas de espessura óptica dos aerossóis (eq.2.24) e da radiância dispersa na região da auréola solar, para o comprimento de onda 870nm, (eq.2.25) se obtém a distribuição colunar de dimensões dos aerossóis, opticamente equivalente, por um processo iterativo não linear, para um dado índice de refracção complexo. A radiância dispersa angular na auréola solar é medida em vários comprimentos de onda (440 nm, 670 nm, 870 e 1020 nm para o radiómetro CIMEL), sendo no CIRATRA, em geral, usado o comprimento de onda de 870nm, devido a ser pequena a correcção da dispersão de Rayleigh quando comparado com comprimento de onda de 440 nm, e por não haver correcção para o ozono e oxigénio, como acontece para o comprimento de onda centrado nos 670 nm.

Este programa utiliza um método iterativo para a resolução da eq.2.29, e, inicia-se com a suposição duma distribuição de Junge, com o expoente, υ, dado pela relação

com o expoente de Angstrom, α, declive da dependência da espessura óptica espectral do comprimento de onda, já apresentada na secção 2.3.1.1.1.2. A distribuição de Junge constitui apenas um começo para um processo de inversão mais rápido. Durante este processo impõe-se o constrangimento do número de partículas numa dada classe de raios entre r_k e r_k+dr, ser sempre maior que zero ($dN_i(r_k) > 0$). As iterações param quando a diferença entre a espessura óptica espectral medida e calculada é inferior a 0.01, valor que corresponde, quando se considera o comprimento de onda 500nm, à situação de atmosfera "limpa", isto é, livre de aerossóis. No caso de se utilizar para as iterações não apenas a espessura óptica dos aerossóis mas também a radiância na auréola solar (resolução da eq.2.25) as iterações param quando a diferença, dada por uma soma ponderada entre a diferença da espessura óptica calculada e medida e a diferença da radiância angular calculada e medida para a região da aureola solar, for inferior a 0.01. Os factores de ponderação estão relacionados com o número de comprimentos de onda e o número de ângulos de dispersão usados.

Alguns erros na inversão podem estar associados:

- a erros numéricos, como a passagem do integral a soma finita e o número de classes de raios utilizado para a distribuição de dimensões das partículas;
- à suposição da teoria de Mie;
- à interdependência de informação contida na espessura óptica espectral e a sensibilidade do intervalo finito do raio das partículas. É importante escolher um intervalo de raio apropriado para a inversão. A dimensão das classes das partículas tem de ser seleccionado de acordo com o coeficiente de eficiência de extinção para cada comprimento de onda: para a luz visível, as partículas com raios inferiores a 0.05μm não contribuem muito para o coeficiente de extinção, porque o coeficiente de eficiência de extinção é próximo de zero, enquanto para as partículas com raios superiores a 2μm os coeficientes de eficiência de extinção convergem para um valor constante 2, e têm uma muito pequena dependência do comprimento de onda.

A primeira versão deste programa, de 1991 (W. von Hoyningen-Huene, M.Wendisch, 1991) usava apenas a espessura óptica espectral dos aerossóis, não

permitindo a obtenção do número de partículas com raios maiores que 2μm. Este esquema de inversão é ainda possível de correr quando não existem medidas da radiância angular na região da auréola. Por causa da importância das partículas maiores para a transferência radiativa, especialmente no caso dos aerossóis do deserto e marítimos, o programa de inversão foi modificado de forma a incluir também a radiância angular na auréola (para ângulos azimutais entre os 3° e os 25°) para um canal, 0.87μm. (Wendisch, M., von Hoyningen-Huene, W., 1994). A inversão das medidas de radiância angular dispersa nos ângulos de dispersão entre 0° e 40°, onde os efeitos da não esfericidade da forma das partículas são menores, resulta num maior rigor na obtenção da distribuição de dimensões dos aerossóis de partículas não esféricas (Dubovik e tal, 2000). A correcção de dispersão múltipla na auréola, necessária para a inversão dos parâmetros dos aerossóis, é importante, especialmente no caso de espessuras ópticas elevadas em que a dispersão para a frente é grande e para ângulos de elevação solar inferiores a 15°. Foi feita, primeiramente, com a parametrização Box-Deepak, considerando apenas a dispersão de Rayleigh. Nos casos de espessuras ópticas dos aerossóis elevadas, como pode ser observada nos casos de aerossóis de poeiras do deserto, esta parametrização não era suficiente, tendo sido incluída, numa versão mais recente, uma parametrização para a dispersão múltipla na região da auréola com base no programa de transferência radiativa de Nakajima (Posse, P., von Hoyningen-Huene, W., 1995).

As medidas da radiância dispersa no plano do almucantar são normalizadas. Sendo $L_{sky}(\lambda,\theta)$ a radiância dispersa no plano do almucantar, a radiância normalizada $p_{sky}(\lambda,\theta)$ é dada por:

$$p_{sky}(\lambda,\theta) = \frac{L_{sky}(\lambda,\theta)}{\int_0^{\pi} L_{sky}(\lambda,\theta)\, sen\ \theta d\theta} \qquad \textbf{(eq.4. 1)}$$

A normalização pelo integral remove a influência da calibração e da massa óptica relativa. A normalização faz todas as medidas de radiância dispersa comparáveis, sendo o seu integral igual à unidade. Contudo a normalização necessita duma extrapolação das medidas na banda dos ângulos de dispersão (entre os 3° e o ângulo de dispersão máximo, θ_{max}) para toda a gama de ângulos entre 0° e 180°. Para esta extrapolação, e também para as interpolações, utiliza-se a função de Henyey-

Greenstein. Esta função de fase pode ser escrita em função do ângulo de dispersão na forma de expansão em polinómios de Legendre, o que é muito conveniente em muitas soluções da equação de transferência radiativa (Wiscombe, 1977, Stamnes et al, 1988). No entanto, é necessária uma adequada precaução no uso da função de Henyey-Greenstein para aproximar os resultados da dispersão de Mie (Olivier Boucher, 1998). Na verdade vários estudos têm mostrado que a função de fase de Henyey-Greenstein falha na reprodução da retro dispersão e tende a sobrestimar a função de fase de Mie para ângulos de dispersão entre os 90° e 150°, (Olivier Boucher, 1998), região importante por ser a região angular típica de observação de muitos satélites (Dubovick et al, 2000).

ii) Programa para o cálculo da função de fase da atmosfera para o caso da dispersão simples, com base na distribuição de dimensões obtida no programa anterior e, usando a teoria de Mie para a dispersão pelos aerossóis, considerados como partículas esféricas, ou para o caso de se considerar as partículas como não esféricas o modelo empírico de Pollack e Cuzzy, (1980) ou T-Matriz de Mishchenko, (2004);

iii) Programa de transferência radiativa, baseado em Nakajima e Tanaka, (1988), que incluí o código IMS, (Intensity corrected Multiple Scattering), que utiliza a aproximação delta-M para a truncadura da função de fase dos aerossóis e corrige a dispersão de primeira e segunda ordem. Com este procedimento calcula-se intensidades com um rigor superior a 1% para todas as direcções de dispersão e com um pequeno número de pontos de quadratura para a integração da equação de transferência radiativa. Com este programa calcula-se a radiância dispersa no plano do almucantar, considerando a dispersão múltipla, ou seja, a radiância angular do céu.

iv) Programa de comparação entre as radiâncias normalizadas, medida e a calculada no plano do almucantar, a partir do programa de transferência radiativa, utilizando o critério do desvio médio quadrático (RMSD). O menor valor do desvio médio quadrático corresponderá, em geral, à melhor aproximação da radiância normalizada calculada, no plano do almucantar e que no nosso caso é normalmente inferior a 10%.

v) Programa principal que faz correr os programas anteriores, para os índices de refracção com a parte real a variar entre 1.31 e 1.70.

A escolha da parte real do índice de refracção é feita quando se atinge o valor mínimo do desvio médio quadrático entre as radiâncias normalizadas, medidas e calculadas, no plano do almucantar. Tendo sido escolhido a parte real do índice de refracção, os resultados da inversão são os correspondentes a esse índice, ou seja, a distribuição de dimensões das partículas de aerossóis na coluna atmosférica e a função de fase.

Uma outra versão deste programa de inversão inclui a modificação que permita seja considerado o caminho percorrido por um feixe de radiação numa atmosfera não plana, podendo ser utilizada para ângulos de elevação do sol inferior a 8° (Posse, P., von Hoyningen-Huene, W., 1995).

vi) Os programas necessitam como "input" de uma base de dados dos coeficientes de eficiência de extinção $Q_{ext}(r,\lambda,m)$, de dispersão, $Q_{scat}(r,\lambda,m)$ e de absorção, $Q_{abs}(r,\lambda,m)$, assim como a função angular $F(r,\lambda,m,\theta)$, obtidos a partir da teoria de Mie e nas seguintes condições:

- parâmetro de dimensão das partículas, $\alpha = 2\pi r / \lambda$ a variar de 0 a 120

- a parte real do índice de refracção a variar: 1.31, 1.33, 1.35, 1.375, 1.40, 1.425, 1.45, 1.475, 1.50, 1.525, 1.55, 1.575, 1.60, 1.65 e 1.70.

- a parte imaginária do índice de refracção a variar para os valores de 0.0, 0.001, 0.002, 0.005, 0.01, 0.02.

O CIRATRA permite, para além da teoria de Mie, o uso de outros modelos de dispersão, como a teoria semi empírica de Pollack e Cuzzy, (1980), e o método T-matrix para esferóides, (Mishchenko et al, 2000). Enquanto para o modelo de Pollack e Cuzzy e teoria de Mie estão disponíveis os factores de eficiência, Q_{ext} (r,λ,m), e a função angular, $F(r,\lambda,m,\theta)$, para toda a gama de parâmetros de dimensão das partículas, já para o model da T- matriz estão disponíveis apenas uma pequena gama de parâmetros de dimensão.

O fluxograma do CIRATRA, com os dados de entrada necessários, os programas e os resultados, encontra-se representado no Fig.4.1., onde se assinala a cor diferente as modificações introduzidas no programa CIRATRA no âmbito desta tese e que a seguir se apresentam.

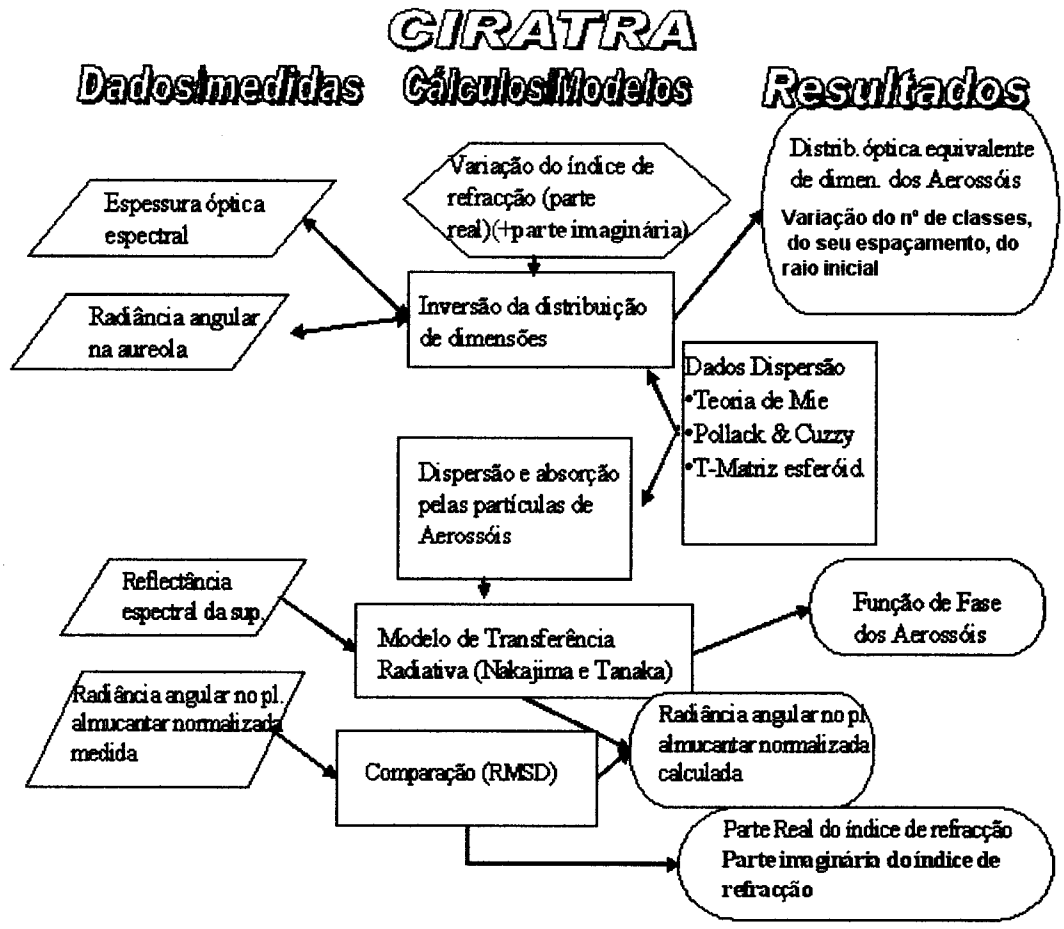

Fig.4.1 - Esquema do programa CIRATRA inicial com as letras a preto e as modificações introduzidas nesta tese com letras a vermelho.

4.2.2. Alterações Introduzidas no CIRATRA

A versão inicial do CIRATRA foi modificada, durante a realização desta tese, de forma a correr sem os vários batch em MSDOS a ligar os programas. A modificação teve como principal objectivo interligar os diferentes subprogramas de forma a correr como um único programa, permitindo maior versatilidade no cálculo dos diferentes parâmetros, e mesmo a possibilidade de cálculo de outros, como foi o caso do índice de refracção compexo (m). Assim, foram reescritos, totalmente, todos os programas de forma a funcionarem como subrotinas chamadas por um programa principal totalmente novo.

O novo programa principal permite:

- modificações no ficheiro de entrada, podendo alterar-se o número de classes de raios das partículas para a inversão, o raio inicial dos aerossóis e o espaçamento entre as diferentes classes.

- alterações nos índices de refracção de entrada no programa tanto a parte real como a parte imaginária, para o estudo da inversão. Este novo programa principal permite fazer variar a parte real e a parte imaginária do índice de refracção, sendo a escolha final do índice, quer da parte real quer da parte imaginária, feita pelo menor desvio médio quadrático entre as radiâncias medidas e calculadas no plano do almucantar, para os 0.87μm. Com o novo programa principal podem ser escolhidas diferentes partes reais e imaginárias para o estudo da inversão. O número e o valor das partes reais e imaginárias do índice de refracção dadas no início do programa podem ser introduzidos por um ficheiro de entrada, ou dentro do programa por data.

- foram também calculadas as intensidades angular de dispersão e os coeficientes de eficiência de dispersão e de absorção, pela teoria de Mie, para o comprimento de onda de 0.67μm. Pode, deste modo, utilizar-se a radiância angular dispersa no plano do almucantar para o comprimento de onda dos 0.67μm, de forma a encontar-se o índice de refracção complexo e a função de fase dos aerossóis também para este comprimento de onda.

Estas alterações estão assinaladas a vermelho na Fig.4.1.

Para além do programa principal todos os programas tiveram de sofrer alterações para que corressem como subrotinas, não sendo necessário a escrita para ficheiros (caso não o quiséssemos ou não fosse necessário).

O modo como este novo programa está organizado permite a adição fácil de novas subrotinas, como a subrotina dos coeficientes de eficiência de extinção, absorção e dispersão e da função angular calculados pela teoria de Mie.

4.2.3. Validação do CIRATRA

4.2.3.1 Comparação com o Algoritmo de Inversão Aplicado na AERONET

Os algoritmos de inversão utilizados na rede da AERONET estão bem documentados (Dubovik et al, 2000, 2002, e em http://aeronet/gsfc.nasa.gov/), podendo ser usados como referência a muitos estudos de inversão (Olmo et al, 2006). Também o foram no presente trabalho.

Para esta comparação foram escolhidos dois dias de observações realizadas em Granada (Espanha) com situações atmosféricas específicas: uma correspondendo a um período de episódio de poeiras do Sahara (25 de Maio de 2005), com predomínio de partículas grandes, e outra correspondendo a um episódio de poluição transportada da Europa/Atlântico (1 de Fevereiro de 2005), com predomínio de partículas pequenas (Olmo et al, 2006). Os resultados da inversão obtidos com o programa CIRATRA foram comparados com os resultados da AERONET e apresentam-se nas figuras 4.2 a 4.5.

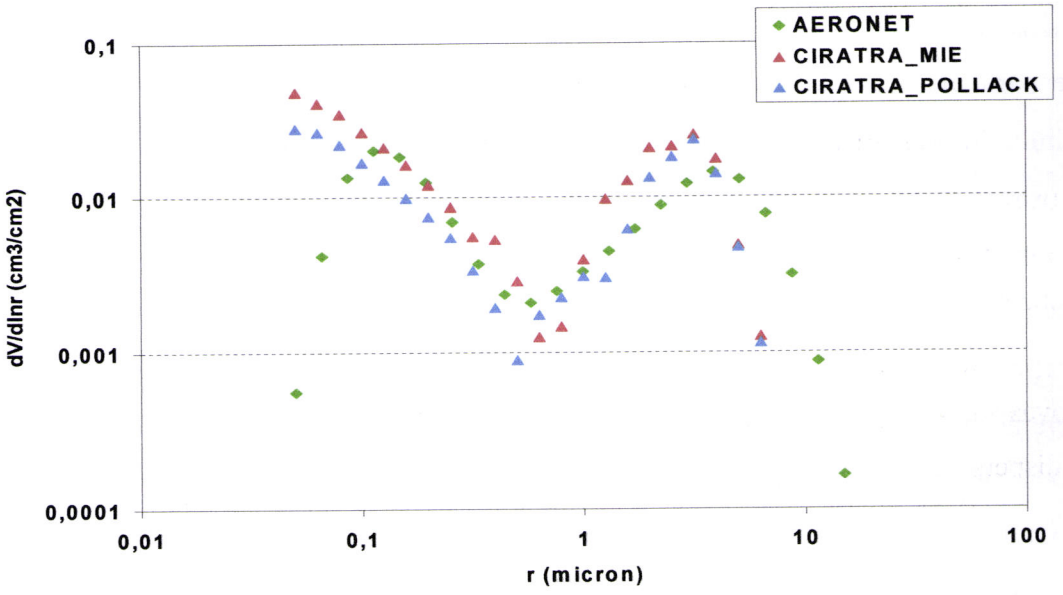

Fig.4.2 Distribuição colunar de volume dos aerossóis resultante da inversão com os programas CIRATRA e da AERONET (esférica 1.5) para o dia 1 de Fevereiro de 2005

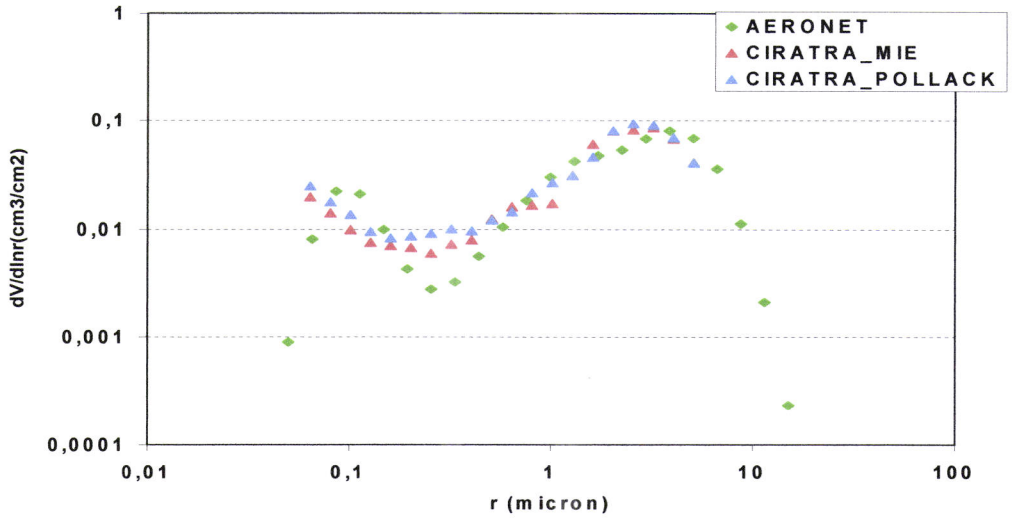

Fig.4.3 Distribuição colunar de volume dos aerossóis resultante da inversão com os programas CIRATRA e da AERONET (esférica 1.5) para o dia 25 de Maio de 2005

Nas Fig.4.2 e 4.3 estão representadas as distribuições de volume obtidas para, respectivamente, os dias 1 de Fevereiro e 25 de Maio de 2005 por inversão com o CIRATRA modificado (utilizando a teoria Mie e de Pollack e Cuzzi) e por inversão obtida pela AERONET com o modelo para partículas esféricas (nível 1.5) (http://aeronet/gsfc.nasa.gov/). A distribuição colunar de volume obtida com o CIRATRA modificado, para o dia 1 de Fevereiro de 2005, (Fig.4.2), mostra uma classe de partículas pequenas centradas para um comprimento de onda inferior a 0.05μm (limite inferior de inversão), 0.03μm, enquanto o programa de inversão da AERONET mostra este modo de partículas pequenas centrada a 0.08 μm. A maior diferença dos resultados da distribuição de dimensões entre os dois programas de inversão refere-se, especialmente, ao comportamento da distribuição de dimensões para a classe de partículas com raios inferiores a 0.08 μm. Para o modo das grandes partículas observa-se um ligeiro desfasamento entre os dois modelos. Também para o dia 25 de Maio de 2005, (Fig.4.3), caracterizado pela predominância de um modo de grandes partículas, é no modo das pequenas partículas que se encontram as maiores diferenças. No modo das grandes partículas observa-se um ligeiro desfasamento no raio correspondente à maior concentração das partículas.

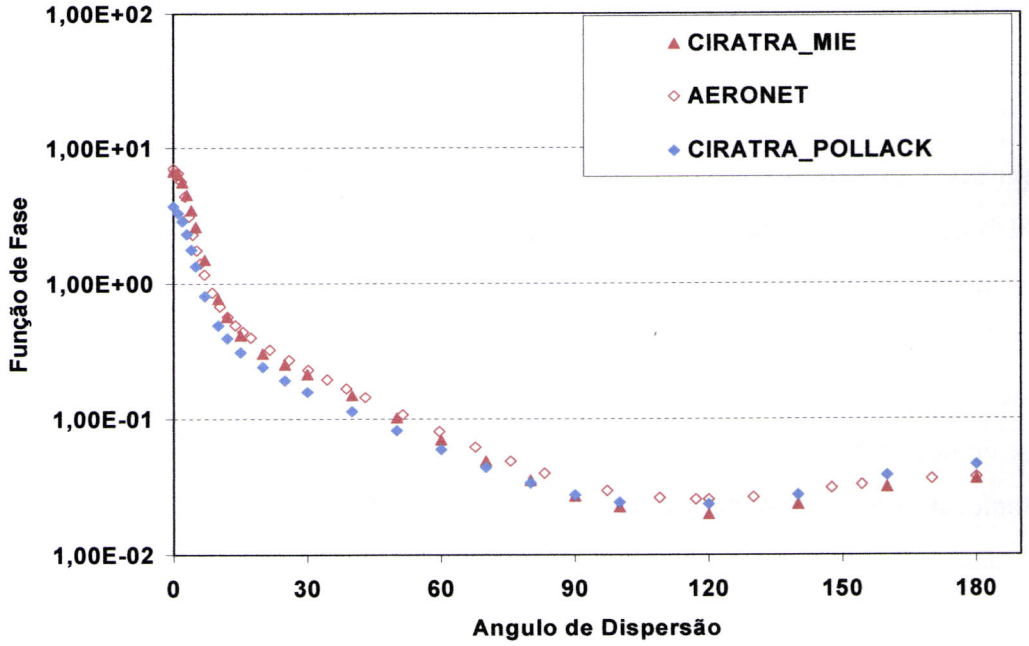

Fig.4.4 Função de fase dos aerossóis resultante da inversão com os programas CIRATRA e da AERONET (esférica 1.5) para o dia 1 de Fevereiro de 2005

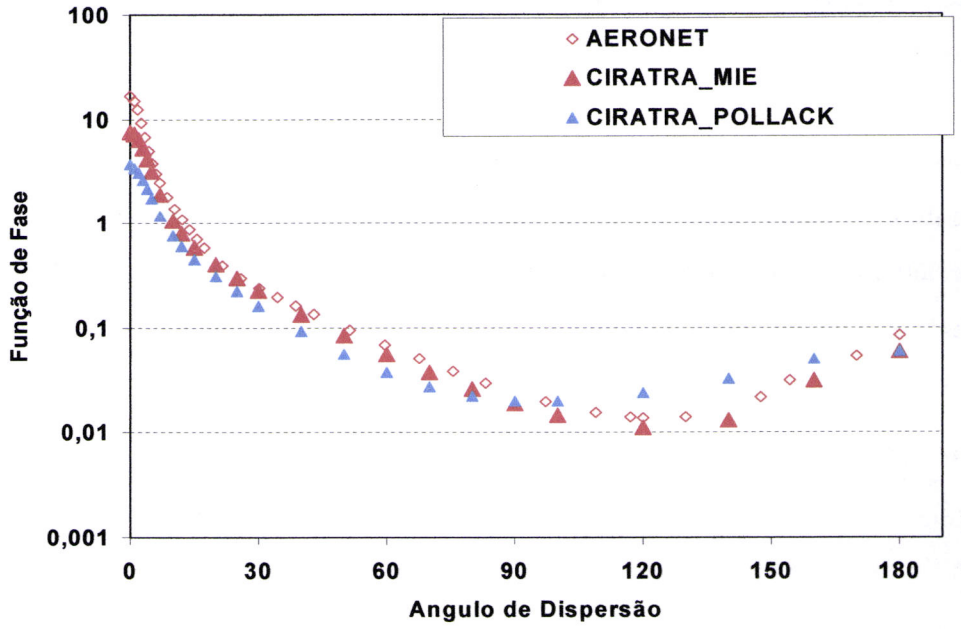

Fig.4.5 Função de fase dos aerossóis resultante da inversão com os programas CIRATRA e da AERONET (esférica 1.5) para o dia 25 de Maio de 2005

As Fig 4.4 e 4.5 mostram a comparação entre a função de fase obtida com o programa CIRATRA, utilizando quer a teoria de Mie quer a fórmula empírica de

Pollack e Cuzzi, e a obtida pela AERONET para o dia 1 de Fevereiro de 2005 e 25 Maio de 2005, respectivamente.

A comparação das funções de fase, para o dia 1 de Fevereiro de 2005, onde predominam as partículas pequenas, mostra um desvio médio para todos os ângulos (de 0° a 180°) de 10%. No entanto, se se considerar os ângulos entre 0° e 10° o desvio é maior, com um valor máximo de 20%. Para ângulos superiores a 90° o desvio é inferior a 5%. Não se observam grandes diferenças entre a função de fase obtida utilizando a teoria de Mie e a fórmula empírica de Pollack e Cuzzi, como seria expectável, dado tratar-se de uma população de aerossóis onde predominam as partículas mais pequenas. No entanto, o desvio em relação ao resultado da AERONET é menor, para pequenos ângulos de dispersão, quando se utiliza a teoria de Mie.

A comparação das funções de fase para o dia 25 de Maio de 2005, Fig.4.5, onde predominam as grandes partículas, mostra um desvio médio para todos os ângulos (de 0° a 180°) de 20%. Os maiores desvios, da ordem de 25%, observam-se para ângulos inferiores a 5° e, da ordem de 20%, para ângulos superiores a 140°. Para ângulos de dispersão entre os 5° e 20°, e entre 60° e 140°, o desvio máximo é de cerca de 5%, entre os 20° e 60° o desvio máximo é de 15%. Para este dia observam-se diferenças significativas entre a função de fase obtida utilizando a teoria de Mie e a fórmula empírica de Pollack e Cuzzi, especialmente entre os ângulos de dispersão 100° e 150°, gama de ângulos importantes para a observação por satélite, como seria expectável dado tratar-se de aerossóis do deserto onde o desvio da esfericidade é grande, particularmente para estes ângulos.

4.2.3.2 Sensibilidade do CIRATRA à Reflectância da Superfície

A contribuição da reflectância da superfície na radiância descendente, no plano do almucantar, e para o comprimento de onda dos 870nm, (usualmente utilizado para a inversão), foi estudada através de simulações com o código de transferência radiativa OS (Deuzé et al, 1989, Elias, T. et al, 2002), para uma situação sem aerossóis, para o ângulo solar zenital de 70° e para dois valores de reflectância da superfície, 0.0 (0%) e 0.4 (40%). Verifica-se que o efeito da reflectância da superfície na radiância

descendente dispersa medida à superfície é visível apenas a partir do ângulo de dispersão de 30°, (Elias, T et al, 2002).

A reflectância da superfície, especialmente sobre terra, onde os valores podem ser da ordem de 30%, ou mais, para o comprimento de onda dos 870 nm, aumenta a incerteza no cálculo da espessura óptica dos aerossóis a partir das observações de radiância solar descendente espectral à superfície, especialmente para valores de espessura óptica dos aerossóis inferiores a 0.3 (Devaux et al., 1998, T.Elias et al, 2003).

Estes efeitos da reflectância da superfície são importantes nos estudos de inversão das medidas da radiância e na caracterização de aerossóis sobre superfície, onde não se conhece o valor da sua reflectância, podendo o erro da sua estimativa ser grande.

Como, na realização deste trabalho, se utiliza o CIRATRA para a inversão das propriedades dos aerossóis a partir das observações à superfície e da radiância solar espectral descendente, fez-se um estudo de sensibilidade dos resultados à variação da reflectância da superfície. Este estudo é também importante para a obtenção das espessuras ópticas dos aerossóis por detecção remota em satélites com recurso a LUT (Look-Up-Tables), pois estas são construídas com base nas características microfísicas dos aerossóis obtidas com o CIRATRA.

Os dados utilizados na realização deste estudo de sensibilidade foram obtidos da estação de Cabo Verde (16.733N, 22.935W) da rede da AERONET. Este estudo de sensibilidade à reflectância da superfície foi realizado para aerossóis do deserto, por ser um dos tipos de aerossóis que têm grande influência no clima, pela não esfericidade, pela composição química e pelas dimensões das suas partículas. Este tipo de aerossol atinge com alguma frequência, especialmente no verão, as regiões do sul de Portugal. Os dados tratados referem-se à estação da Aeronet em Cabo Verde, por estas ilhas serem atingidas durante quase todo o ano por aerossóis do deserto do Sahara. A situação sinóptica mais característica nestas ilhas do Atlantico Norte, próximas do Continente Africano, é a de ventos dominantes de norte ou nordeste, transportando aerossóis minerais oriundos do deserto. Foram utilizados os dados do dia 20 de Março de 2002 caracterizado por aerossóis de origem de poeiras do deserto, com predomínio de partículas grandes. Num estudo inicial este aerossol foi caracterizado por: expoente de Angstrom (α) com o valor de 0.33 e parâmetro de turvação (β) de 0.285; índice de

refracção aos 870 nm de 1.45-0.02i e o albedo de dispersão simples, para os 870 nm, de 0.82. O albedo de dispersão simples, no caso dos aerossóis desérticos, tem uma variação com o comprimento de onda quase nula ou até ligeiramente positiva (Dubovik e tal, 2002), devido à predominância de partículas grandes. Estas condições foram fixadas e fez-se variar a reflectância da superfície entre 5% e 40%, para o comprimento de onda dos 870 nm, comparando-se os valores de duas propriedades dos aerossóis, (distribuição de dimensões dos aerossóis e função de fase), obtidas por inversão com o CIRATRA.

Os resultados podem ser divididos em duas classes:

- os referentes a alguns dos parâmetros que caracterizam o aerossol: distribuição de dimensões dos aerossóis e a sua função de fase;

- os que se referem ao erro do ajuste entre a radiância angular medida e calculada pelo modelo de Nakajima e Tanaka, (1988) (ver Fig.4.1) onde é importante o valor da reflectância da superfície.

Os resultados referentes à distribuição de dimensões das partículas obtidos para os diferentes valores de reflectância da superfície (Fig 4.6) não mostram diferenças significativas, inferiores a 5%.

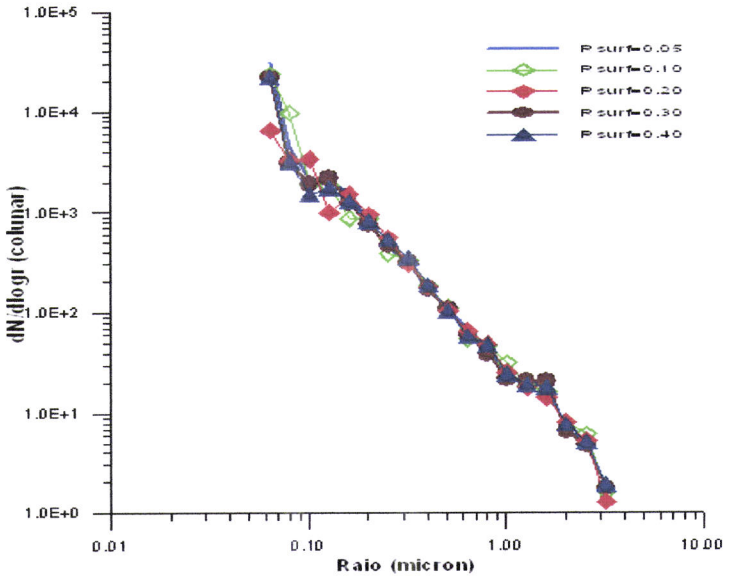

Fig 4.6 Distribuição de dimensões das partículas obtida por inversão considerando várias reflectâncias da superfície

A mesma situação é verificada na função de fase dos aerossóis que não exibe diferenças significativas com a variação da reflectância da superfície. Os maiores desvios ocorrem apenas para ângulos de dispersão superiores a 160° (Fig. 4.7).

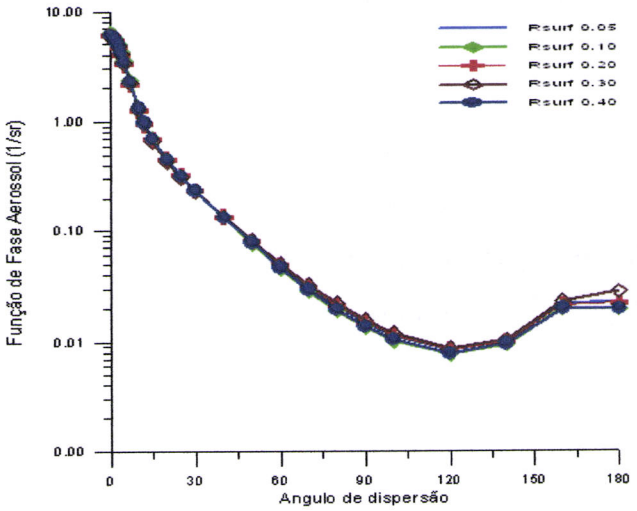

Fig 4.7- Função de Fase dos aerossóis normalizada calculada usando o modelo CIRATRA para os 870 nm e para diferentes reflectâncias da superfície

Isto deve-se à metodologia utilizada no CIRATRA, onde por um lado se utilizam os valores da radiância espectral dispersa normalizados e, por outro lado, para obter as propriedades dos aerossóis (distribuição de dimensões das partículas e função de fase) a inversão da radiância espectral dispersa faz-se nos pequenos ângulos azimutais do almucantar, na zona da aureola (0°-25°), onde os efeitos da reflectância da superfície não se fazem sentir de modo significativo, (Elias, T et al, 2002).

No entanto, os resultados referentes ao melhor ajuste entre a radiância angular espectral dispersa medida e calculada no plano almucantar, dado pelo erro médio quadrático, mostram diferenças significativas (Tabela 4.1). O erro médio quadrático é tanto menor quanto melhor o ajuste entre a radiância medida e calculada, isto é, quanto melhor a radiância calculada se aproxima da radiância medida, com base na distribuição de dimensões dos aerossóis, espessura óptica espectral e reflectância da superfície. No caso em estudo, supondo que se mantiveram constantes a distribuição de dimensões e a espessura óptica, alterou-se apenas a reflectância da superfície, reflectindo o menor erro médio quadrático uma melhor estimativa do seu valor.

Tabela 4.1

Erro Médio Quadrático para diferentes reflectâncias da superfície para o comprimento de onda de 870 nm

	ρ (%) 5	ρ (%) 10	ρ (%) 20	ρ (%) 30	ρ (%) 40
m	1.450 - 0.02i				
RMSD (A870)	12	13	10.5	9.5	8.3

ρ é a reflectância da superfície expressa em percentagem, RMSD é o erro médio quadrático da radiância angular espectral dispersa normalizada para o comprimento de onda 870nm (A870), e, m é o índice de refracção complexo dos aerossóis, utilizado na realização deste estudo. O melhor ajuste, para os 870 nm (RMSD=8.3%), verificou-se para valores de reflectância da superfície de 40%, o que para este comprimento de onda e sobre solo castanho claro (arenoso), como é o caso da Ilha do Sal, em Cabo Verde, é um valor expectável.

Este método de inversão das propriedades ópticas dos aerossóis tem, pois, a vantagem de não ser muito sensível à reflectância da superfície, não se verificando diferenças significativas para as propriedades físicas (distribuição de dimensões) e ópticas (função de fase) obtidas. As maiores diferenças ocorreram para ângulos superiores a 160°, fora da gama de ângulos usualmente utilizado em satélite (entre os 100° e os 120°). A maior desvantagem deste método deve-se ao facto de usar ângulos azimutais na zona da auréola (0°-25°) perdendo informação especialmente importante para as maiores partículas.

4.3. Influência da Reflectância da Superfície no Fluxo Radiativo Descendente e Ascendente de Pequeno Comprimento de Onda.

A reflectância da superfície, particularmente sobre terra, é de grande importância nas medições de radiância solar, quer por detecção remota à superfície (Elias, T et al, 2002), quer em satélite (ver 4.4.3.1 e 4.4.3.2.1). O aumento da incerteza no cálculo da espessura óptica dos aerossóis, por detecção remota à superfície, devido à incerteza do valor de albedo da superfície, deve-se ao facto da radiação solar reflectida

pela superfície passar por processos de dispersão múltipla na atmosfera, levando a um acréscimo da radiância descendente medida, como atrás foi referido. Os resultados da inversão das medidas ópticas dos aerossóis, espessura óptica espectral e radiância no plano do almucantar até aos 25°, utilizando o programa CIRATRA são pouco sensíveis à reflectância da superfície (ver 4.2.3.2). No entanto, a reflectância da superfície afecta essencialmente o erro de ajuste entre a radiância angular calculada e a medida à superfície (ver tabela 4.1).

Por outro lado, para a estimativa dos forçamentos radiativos directos de pequeno comprimento de onda, devido aos aerossóis, quer no topo da atmosfera, ΔF_{aer}^{TOA}, quer à superfície do globo, ΔF_{aer}^{SUP}, é de grande importância quantificar a influência da reflectância de superfície nos fluxos radiativos ascendente e descendente na banda espectral compreendida entre os 300nm e os 1020 nm. Para estudar a influência da reflectância da superfície nos fluxos radiativos ascendente e descendente, na banda dos 300nm a 1020nm, medido no topo da atmosfera e na superfície, fizeram-se várias simulações com o programa de transferência radiativa, considerando a dispersão múltipla, IMS (Intensity corrected Multiple Scattering) de Nakajima e Tanaka, (1988).

Estas simulações foram feitas considerando:

- A não existência de aerossóis
- A existência dum aerossol tipo do deserto, uniformemente distribuído na coluna atmosférica, caracterizado por um valor do expoente de Angstrom, $\alpha = 0.46$, pelo coeficente de Angstrom, $\beta = 0.26$, e, com a espessura óptica aos 550 nm de 0.35; considerou-se, neste caso, o índice de refracção de 1.475 para a parte real, e fez-se variar a parte imaginária de 0, (sem absorção), a 0.005i, valor aceitável de absorção para este tipo de aerossóis (Dubovik, O., et al, 2002)

A variação da reflectância da superfície foi calculada a partir de um solo claro, tipo arenoso, com valores a variar de zero para os comprimentos de onda abaixo dos

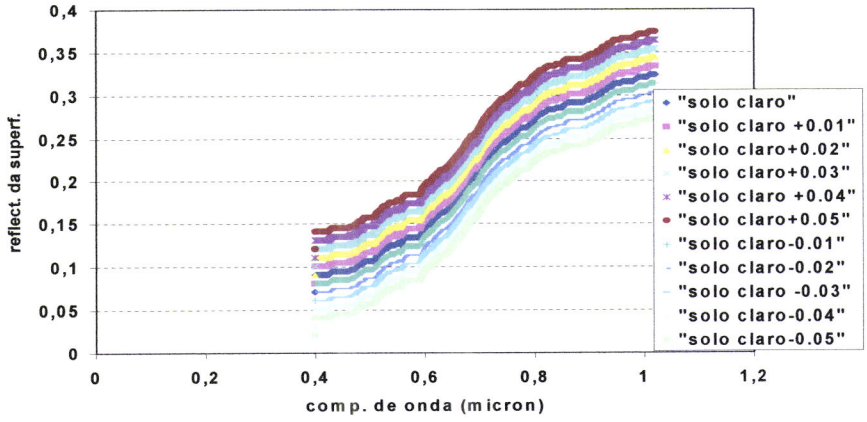

Fig.4.8 Reflectância da superfície dum solo claro, tipo arenoso, e da variações positivas e negativas de 0.01, 0.02, 0.03, 0.04 e 0.05

400nm e a aumentar até aos 32% aos 1020nm, fazendo variações, positivas e negativas, para cada comprimento de onda, de mais ou menos 0.01, 0.02, 0.03, 0.04 e 0.05, como se mostra na Fig. 4.8. A cor azul-escuro a meio corresponde ao solo considerado, "solo claro"; as cores rosa, amarelo, azul brilhante, roxo e castanho correspondem a variações positivas e as tonalidades de azul para baixo do azul-escuro a variações negativas.

O espectro de reflectância utilizado, dum solo arenoso claro, apresenta valores de reflectância de 30% para o comprimento de onda de 870 nm, sendo este um valor característico de reflectâncias sobre terra.

4.3.1. No Topo da Atmosfera

O fluxo ascendente no Topo da Atmosfera (TOA) varia significativamente para as diferentes reflectâncias da superfície, conforme pode ser visto na Fig.4.9.

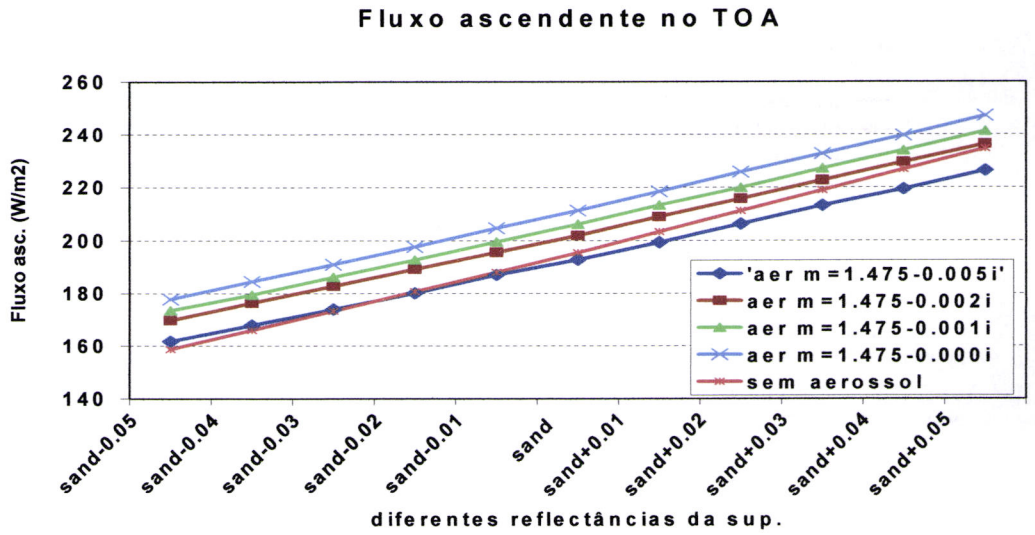

Fig.4.9 – Fluxo ascendente simulado para o Topo da Atmosfera (TOA) para diferentes reflectâncias da superfície e para uma atmosfera sem aerossóis e para atmosferas com aerossóis com diferentes valores de absorção

Calculando a diferença normalizada em relação à reflectância do solo claro ("sand") dada por:

$$\frac{Fl^{\uparrow}_{sand\pm x} - Fl^{\uparrow}_{sand}}{Fl^{\uparrow}_{sand}} \qquad \textbf{(eq.4. 2)}$$

Realça-se a diferença devido à variação na reflectância da superfície, onde $Fl^{\uparrow}_{sand\pm x}$ corresponde ao fluxo ascendente no topo da atmosfera para as reflectâncias de superfícies que variam positiva e negativamente em relação à reflectância do solo claro "sand". $Fl^{\uparrow}_{sand}$ corresponde ao fluxo ascendente no topo da atmosfera para o solo claro "sand". Assim, uma incerteza de 0.01 (+ ou – 0.01%) na estimativa da reflectância da superfície corresponde a uma variação relativa no fluxo ascendente no topo da atmosfera dada pela eq. 4.2 de aproximadamente 3%; a uma incerteza de 0.05 (+ ou – 0.05%) corresponde a uma variação relativa no fluxo ascendente respectivamente de -16 % / +17 % para uma atmosfera com aerossóis, e a uma variação relativa de -19%/+20%, para uma atmosfera sem aerossóis (Fig.4.10).

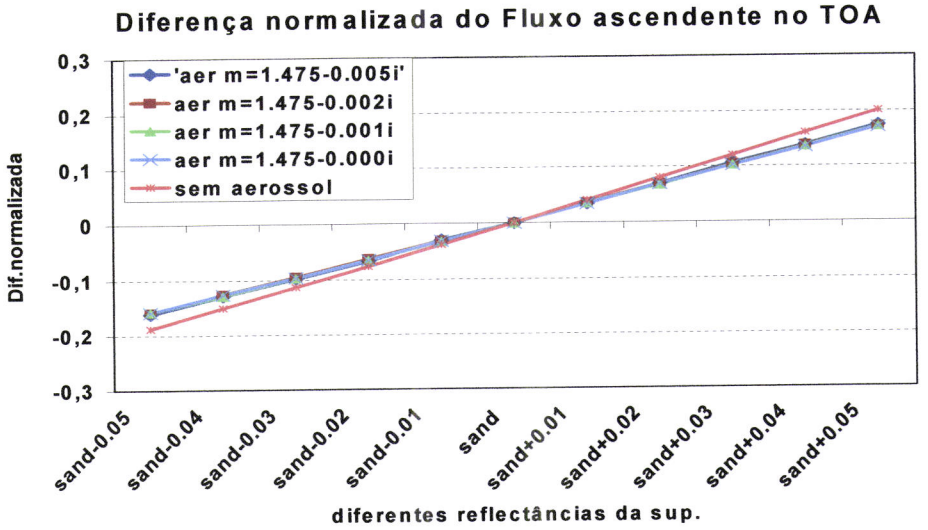

Fig.4.10 Diferença normalizada do fluxo ascendente simulado para o Topo da Atmosfera (TOA) para diferentes reflectâncias da superfície e para uma atmosfera sem aerossóis e para atmosferas com aerossóis com diferentes valores de absorção

A diferença entre o fluxo ascendente no topo da atmosfera com e sem aerossóis, $F_{aer}^{\uparrow}$ e $F_{sem}^{\uparrow}$, dá-nos o forçamento radiativo no TOA devido ao aerossol em estudo. Sendo ΔF_{aer}^{TOA} o forçamento radiativo instantâneo devido aos aerossóis definido por:

$$\Delta F_{aer}^{TOA} = (F_{aer}^{\uparrow})^{TOA} - (F_{sem}^{\uparrow})^{TOA} \quad \textbf{(eq.4. 3)}$$

Esta definição de forçamento radiativo indica que se ΔF_{aer}^{TOA} é negativo corresponde a um aquecimento e, se é positivo a influência dos aerossóis na atmosfera traduz-se num arrefecimento.

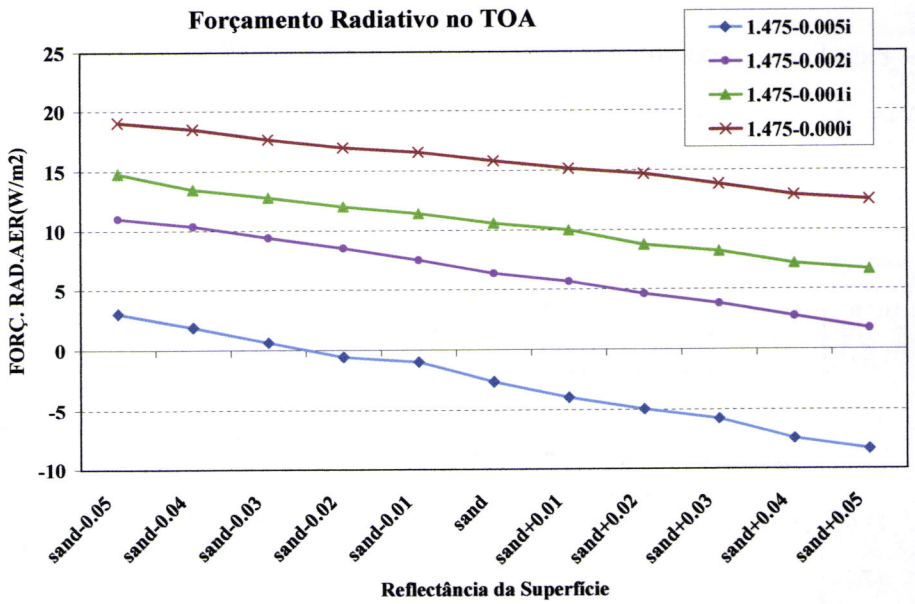

Fig.4.11 Forçamento radiativo no TOA, devido aos aerossóis, simulado para diferentes reflectâncias da superfície e para um aerossol do tipo desértico com a parte real do índice de refracção de 1.475 e para diferentes absorções.

A influência da variação da reflectância da superfície é grande na variação do forçamento radiativo dos aerossóis no topo da atmosfera, conforme pode ser visto na Fig.4.11, podendo mesmo verificar-se uma alteração no sinal do forçamento para o caso da situação de haver aerossóis com valores mais elevados de absorção (parte imaginária do índice de refracção de -0.005i).

A ordem de grandeza dos valores encontrados para o forçamento radiativo dos aerossóis no TOA, inferior ao encontrado para o forçamento à superfície, situa-se entre -5 e -10 Wm-2 para a situação de aerossóis bastante absorventes, tal como é referido por Horvath et al, 2002. Para outras situações de aerossóis menos absorventes, ou sem nenhuma absorção, a influência da reflectância da superfície no forçamento radiativo directo no TOA não é tão pronunciada, para a gama de variação da reflectância da superfície que foi aqui considerada (- 0.05 a + 0.05) onde os valores do forçamento são sempre positivos.

4.3.2. À Superfície

Estudo idêntico foi feito para o fluxo descendente e ascendente à superfície, conforme pode ser observado nas figuras Fig.4.12 e Fig.4.13

.

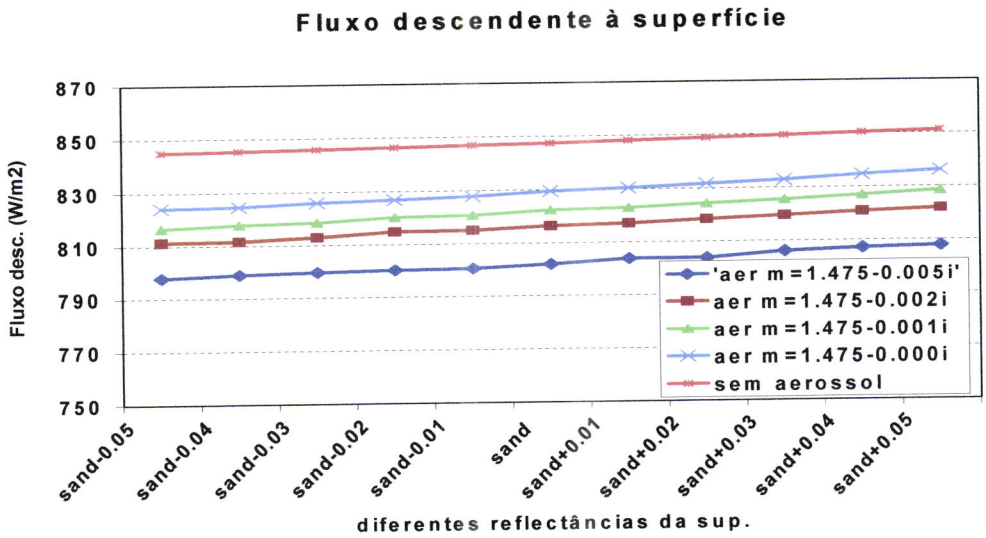

Fig.4.12 Fluxo descendente simulado para o nível da superfície para diferentes reflectâncias da superfície e para uma atmosfera sem aerossóis e para atmosferas com aerossóis com diferentes valores de absorção

Observa-se que a reflectância da superfície tem influência no fluxo descendente da radiação de pequeno comprimento de onda à superfície quer para a situação de uma atmosfera sem aerossóis quer com aerossóis com diferentes absorções. No entanto, verifica-se que a presença dos aerossóis faz aumentar o efeito da reflectância da superfície, notando-se um maior declive nas rectas representadas na Fig.4.12.

O efeito da reflectância da superfície sobre o fluxo radiativo ascendente à superfície é importante, quer para a situação da atmosfera sem aerossóis quer para a da atmosfera com aerossóis, conforme se pode constatar pelo aumento do declive das rectas representadas na Fig.4.13 relativamente às representadas na Fig.4.12. A presença de aerossóis não afecta significativamente o fluxo ascendente à superfície. Este resultado é esperado pois o fluxo ascendente é fortemente condicionado pela reflectância da superfície.

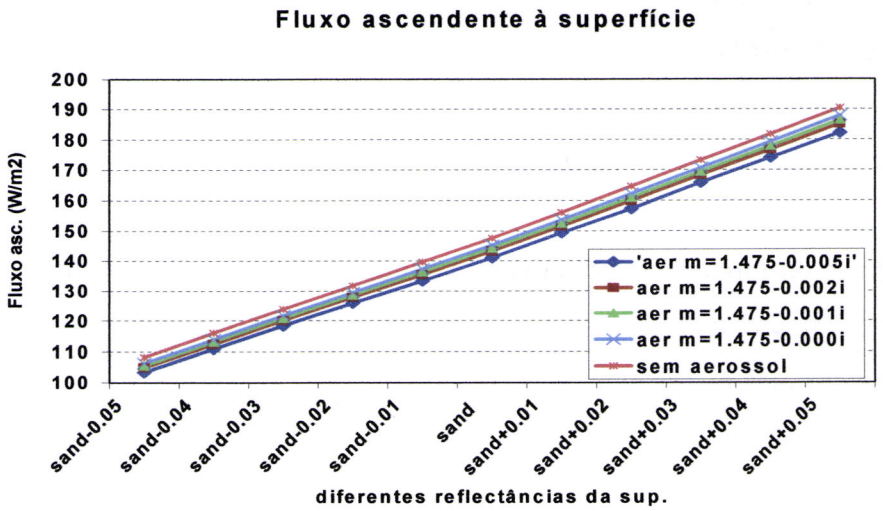

Fig.4.13 Fluxo ascendente simulado para o nível da superfície para diferentes reflectâncias da superfície e para uma atmosfera sem aerossóis e para atmosferas com aerossóis com diferentes valores de absorção

A diferença do fluxo descendente e ascendente `a superfície, com e sem aerossóis, respectivamente $F_{aer}^{\downarrow}$, $F_{aer}^{\uparrow}$, $F_{sem}^{\downarrow}$ $F_{sem}^{\uparrow}$ e dá-nos o forçamento radiativo directo de pequeno comprimento de onda à superfície devido aos aerossóis:

$$\Delta F_{aer}^{SUP} = (F_{aer}^{\downarrow} - F_{aer}^{\uparrow})^{SUP} - (F_{sem}^{\downarrow} - F_{sem}^{\uparrow})^{SUP} \quad \textbf{(eq.4. 4)}$$

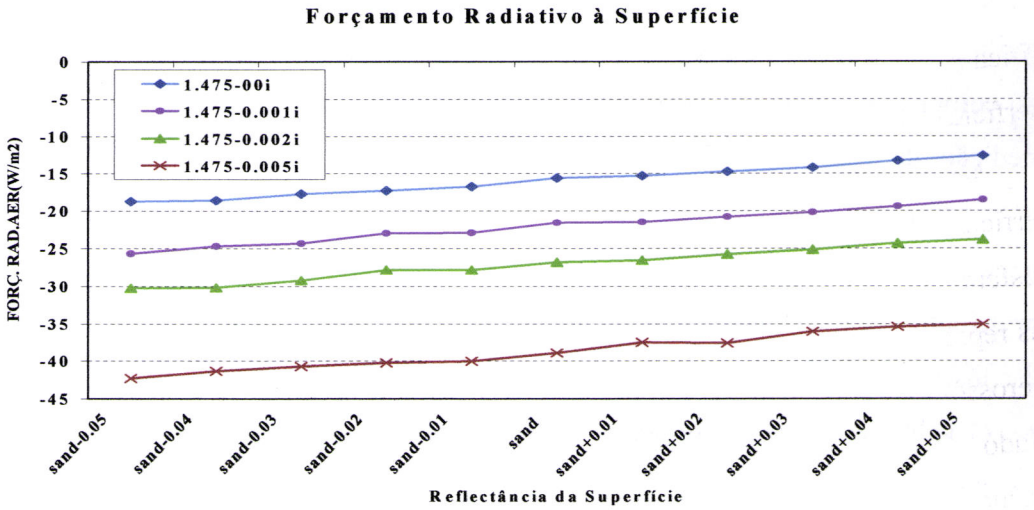

Fig 4.14 Forçamento radiativo devido aos aerossóis à superfície simulado para diferentes reflectâncias da superfície e para um aerossol do tipo desértico com a parte real do índice de refracção de 1.475 e para diferentes absorções.

O forçamento radiativo directo de pequeno comprimento de onda à superfície, para este tipo de aerossol e nas condições desta simulação, é sempre negativo conforme se vê na Fig.4.14, e, em termos absolutos superiores aos do forçamento radiativo obtido no topo da atmosfera, TOA. Este resultado está de acordo com outros estudos (Tegen et al, 1996).

Os valores do forçamento radiativo directo devido aos aerossóis obtidos para a superfície mostram um menor forçamento radiativo para o caso de aerossóis sem absorção, e para valores maiores de reflectância da superfície do que os aerossóis com absorção ou para menores valores da reflectância da superfície. A ordem de grandeza do forçamento radiativo dos aerossóis entre -20 e -40 Wm^{-2} aqui observado para um dia é também referido por Horvath et al, 2002.

Os valores do forçamento radiativo à superfície são, em termos absolutos, superiores aos do forçamento radiativo obtido no TOA

4.4 Métodos de Obtenção das Propriedades Ópticas dos Aerossóis

4.4.1 Observação Remota à Superfície

A medição da radiância solar directa, num dado comprimento de onda, permite, de uma forma simples, obter a espessura óptica dos aerossóis (eq.3.5) para esse comprimento de onda. Foram assim obtidas espessuras ópticas dos aerossóis para 10 (ou 4) comprimentos de onda, consoante o espectrorradiómetro de superfície utilizado. A medição da radiância solar dispersa no plano do almucantar, para 23 ângulos azimutais entre 3° e 180°, para o comprimento de onda de 870 nm, foi também utilizada no estudo dos aerossóis por detecção remota à superfície. Ambos estes dados, que irão servir de entrada no CIRATRA para se obter as propriedades dos aerossóis, têm que ser analisados:

- O valor da espessura óptica total inicialmente obtida da medição da radiância directa a partir da eq. 2.48 tem de ser corrigida para a dispersão de Rayleigh, para todos os comprimentos de onda, e para vários gases absorventes (ozono, para os comprimentos de onda 0.34μm, e entre os 0.48μm e 0.72μm, o vapor de

água, à volta do comprimentos de onda 1.02μm, e o dióxido de azoto entre os 0.34μm e os 0.55μm) de acordo com a eq. 2.50. Estas correcções conduzem a uma curva, do comprimento de onda versus espessura óptica dos aerossóis, alisada. Apenas as curvas espectrais alisadas, com um comportamento aproximado pela relação empírica de Angstrom, podem ser usadas para a inversão.

- A radiância solar dispersa medida no plano do almucantar deve ser analisada para a detecção de valores anómalos devidos a nebulosidade. Há vários filtros de detecção de nebulosidade utilizados na rede AERONET e adoptados como procedimentos a utilizar em medidas da radiância angular dispersa no plano de almucantar. Um dos filtros identifica variações rápidas, analisando a segunda derivada do logaritmo da espessura óptica em função do tempo (Smirnov et al, 2000). Um outro filtro corresponde ao teste de simetria da radiância dispersa medida no plano do almucantar no hemisfério direito e esquerdo (Smirnov et al, 2000).

Os resultados da inversão (distribuição de dimensões, função de fase dos aerossóis e índice de refracção complexo) obtidos pelo CIRATRA devem também ser analisados. Como se disse anteriormente, a escolha do índice de refracção faz-se, de forma automática, pelo menor valor do desvio médio quadrático (RMSD) entre a radiância solar medida e a calculada no plano do almucantar. No nosso trabalho considerou-se como resultado satisfatório de inversão o valor do RMSD inferior a 10%. Podem, no entanto, existir mais de um valor de RMSD inferior a 10%, e, neste caso, é importante analisar as diferenças de ajuste entre as radiâncias medidas e calculadas para os diferentes ângulos de dispersão, podendo não ser o menor valor de RMSD que melhor aproxima as duas radiâncias na gama de ângulos de dispersão que se pretende utilizar. Serão apresentados no capítulo V alguns casos de estudo que utilizam estas metodologias acima descritas.

4.4.2 Observação *"in situ"*

Para a caracterização dos aerossóis à superfície foram utilizadas observações "in situ"das seguintes propriedades ópticas: os coeficientes espectrais de dispersão,

$\sigma_{a,scat}(\lambda)$, para três comprimentos de onda - 450, 550 e 700 nm, medidos com o nefelómetro e os coeficientes de absorção, $\sigma_{a,abs}(\lambda)$, para os mesmos comprimentos de onda, calculados a partir de medidas do aetalómetro.

Para proceder à comparação/validação de algumas propriedades dos aerossóis (calculadas e medidas) à superfície foram também utilizados dados da distribuição de dimensões das partículas medida com um Twin Differential Mobility Particle Sizing (TDMPS) e com um Aerodynamic Particle Sizer (APS), para o mesmo local onde foram medidas as correspondentes propriedades ópticas já atrás referidas. Para assegurar que eram analisados os mesmos aerossóis utilizou-se a mesma cabeça de amostragem instalada à entrada do tubo de admissão de ar comum aos três instrumentos. Neste caso, tendo como dados iniciais as distribuições de dimensões dos aerossóis medidas com os instrumentos TDMPS e APS, aplicando a eq.2.24 para um determinado índice de refracção, e aplicando a teoria de Mie, calcularam-se os coeficientes de dispersão, $\sigma_{a,scat}(\lambda)$, relacionando-os com os coeficientes de dispersão medidos pelo nefelómetro. Serão apresentados no capítulo V alguns casos de estudo exemplificando a metodologia explicada por análise das observações *"in situ"*.

4.4.3 Observação Remota em Satélites.

4.4.3.1. Introdução

Alguns dos radiómetros colocados em satélites medem, na região solar do espectro, a radiação reflectida pelo sistema Terra- Atmosfera iluminado pelo Sol. Assim, o sinal recebido no sensor depende essencialmente da reflectância da superfície e da reflectância da atmosfera a qual é afectada pela absorção e dispersão dos gases e dos aerossóis nela presentes (Fig.4.15).

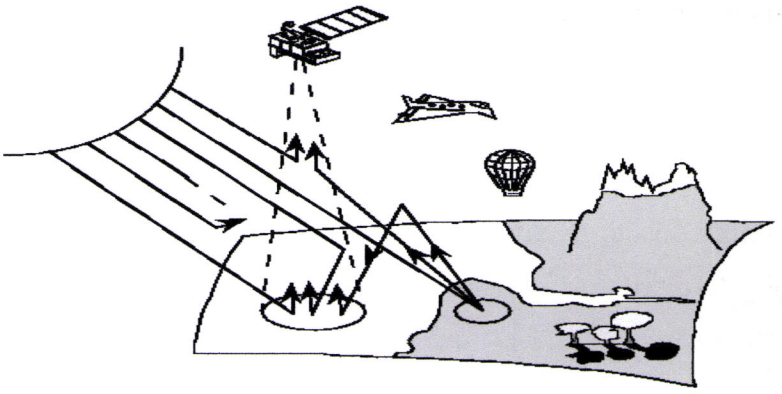

Fig.4.15 Representação dos processos de reflexão na superfície e dos processos atmosféricos da luz solar no trajecto até ao satélite (retirada do manual do modelo 6S)

A reflectância da superfície depende fortemente das características da superfície: no caso do oceano depende fortemente da concentração de fitoplâncton e do seu estado de agitação; no caso de terra depende fortemente do tipo de vegetação, das condições de "stress" da vegetação e do tipo de solo, como se pode ver na Fig.4.16.

Da radiação solar que chega ao satélite uma parte é referente à radiação solar que entra no topo da atmosfera e que é retro - dispersa pelos aerossóis na atmosfera para o espaço, não chegando a atingir a superfície e que não contem qualquer informação da superfície; outra parte é referente à radiação solar que é reflectida pela superfície, e que contem informação dessa superfície. Desta última, nem toda a radiação reflectida pela superfície chega directamente ao satélite, pois é absorvida e dispersa pelos aerossóis e pelos gases na atmosfera. A dispersão pode ser simples ou múltipla antes de atingir o satélite, podendo alguma da radiação reflectida pela superfície ser retro dispersa pelas partículas da atmosfera novamente para a superfície, onde volta a sofrer reflexão. Assim, a radiância medida por radiómetros ao nível de navegação dum satélite nos comprimentos de onda da região visível e infravermelho próximo do espectro de radiação é resultado de diferentes contribuições que devem ser retiradas da radiância medida no satélite de forma a poder obter-se informação sobre os aerossóis atmosféricos.

Analisando os espectros de reflectância representados na Fig.4.16 (oceano e terra), podemos facilmente verificar que a reflectância da superfície é grande sobre terra, especialmente se se usarem canais com bandas centradas em comprimentos de

onda acima dos 650 nm quando se pressupõe a terra coberta por vegetação verde, ou até para bandas centradas em comprimentos de onda menores para o caso da superfície da terra ser apenas solo (Fig.4.16.(b)). Sobre oceano a reflectância é menor, especialmente nas bandas centradas em comprimentos de onda maiores que 500nm, podendo atingir o valor máximo de cerca de 3% para o comprimento de onda inferior a 500 nm (Fig.4.16.(a)).

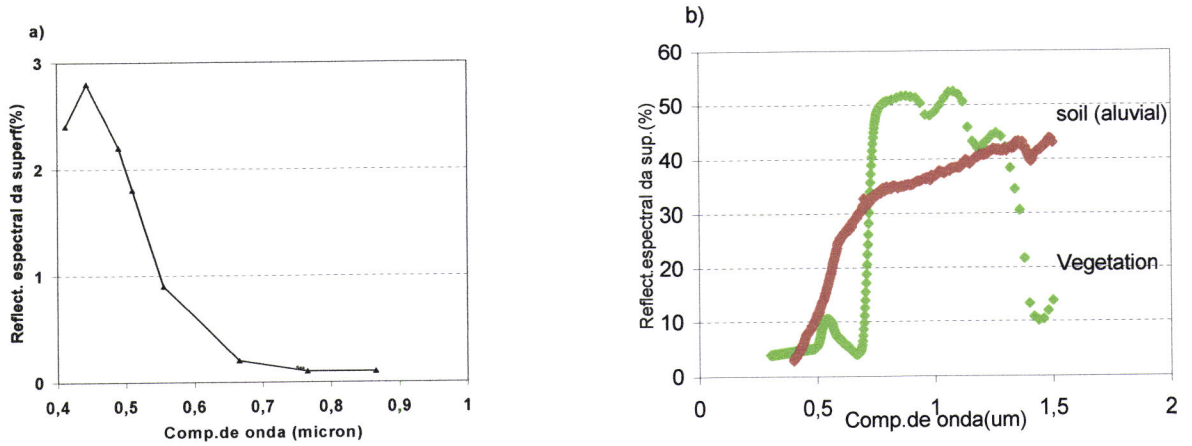

Fig.4.16.- Espectros de reflectância de superfície (a) do oceano e (b) de vegetação e solo nu

Como se disse, a reflectância medida por radiómetros transportados por satélite, (considera-se ser a radiância medida no topo da atmosfera (TOA)), é resultante de um conjunto de contribuições provenientes quer da superfície quer dos vários constituintes da atmosfera. As diferenças das propriedades ópticas da superfície, acima ilustradas, dificultam muito a análise da reflectância oriunda da atmosfera, ρ_{atm}, para a situação do satélite se encontrar sobre terra, dado que ρ_{atm} pode ser da mesma ordem de grandeza da oriunda da superfície no valor do sinal medido pelo satélite, particularmente nos comprimentos de onda do vísivel e infravermelho próximo, para os quais a dispersão dos aerossóis é também maior (ver 2.3.2.1.1 e 2.3.2.5).

Durante o trabalho desta tese foram utilizados, para a obtenção das propriedades dos aerossóis, os radiómetros SeaWIFS (Armilla, Espanha, campanha Veleta 2002) e MISR (campanha SAFARI 2000), cujas principais características se encontram

descritas em 3.2.2.2.1.1 e 3.2.2.2.1.2, respectivamente. A escolha do satélite SeaWIFS deveu-se principalmente ao facto de ser um radiómetro com várias bandas na região do vísivel (tem seis bandas abaixo dos 600 nm) e infravermelho próximo, com as características anteriormente descritas. Por outro lado, a obtenção dos dados do radiómetro são de fácil acesso. Os dados referentes ao ângulo de observação próximo de 0° (nadir) do radiómetro MISR, na campanha no Sul de África, foram utilizados, para a obtenção das propriedades dos aerossóis, por ser este um radiómetro com várias bandas na região vísivel e infravermelho próximo do espectro de radiação (três bandas abaixo dos 700 nm) e pela disponibilidade de dados para a altura da campanha.

4.4.3.2. Descrição do Método.

4.4.3.2.1. Introdução

Nos últimos anos têm sido desenvolvidos vários métodos para a obtenção das propriedades ópticas dos aerossóis recorrendo às radiâncias ou (reflectâncias) medidas com os radiómetros instalados nos satélites:

a) Método baseado na distribuição angular da reflectância: Martonchik and Diner (1992) desenvolveram um algoritmo para derivar as propriedades ópticas dos aerossóis, usando as observações multi-angulares do MISR (Multiangle Imaging SpectroRadiometer);

b) Método baseado na sensibilidade das propriedades microfísicas dos aerossóis à polarização da luz, especialmente para o raio efectivo e o índice de refracção (Herman, M.et al, 1997).

c) Método que usa a reflectância no topo da atmosfera num único comprimento de onda, dada pela equação (Kaufman et al, 1997; M.D.King et al, 1999):

$$\rho_{TOA}(\lambda) = \frac{\pi . L_{TOA}(\lambda)}{E_o(\lambda)} M_o \quad \textbf{(eq.4. 5)}$$

onde $\rho_{TOA}(\lambda)$ é a reflectância no Topo da Atmosfera (TOA) para um comprimento de onda λ, sendo calculada a partir da radiância espectral medida pelo satélite, no topo da atmosfera, $L_{TOA}(\lambda)$, considerada isotrópica, integrada no hemisfério e dividida pela

irradiância espectral solar extraterrestre que atinge o Topo da Atmosfera para o mesmo comprimento de onda, $E_0(\lambda)$, e M_o é a massa relativa de ar, determinada a partir da relação de Kasten and Young, (1989).

Por outro lado $\rho_{TOA}(\lambda)$ resulta da contribuição da reflectância da atmosfera, $\rho_{atm}(\lambda)$, devido aos gases e aos aerossóis e da reflectância da superfície, $\rho_{sup}(\lambda,\theta_o,\theta_s)$, que interage novamente com a atmosfera de acordo com a (eq.4.6), onde θ_o é o ângulo zenital de observação e θ_s o ângulo zenital solar. A fracção de radiância transmitida para a superfície que figura nessa equação, $T_d(\lambda)$, é reflectida para a atmosfera em função da reflectância da superfície, $\rho_{sup}(\lambda,\theta_o,\theta_s)$, retornando para a atmosfera com o valor $\rho_{sup}(\lambda,\theta_o,\theta_s)\,T_d(\lambda)$, e, chega ao topo da atmosfera, dependendo da transmitância na subida, $T_s(\lambda)$, ou seja, com o valor de $\rho_{sup}(\lambda,\theta_o,\theta_s)T_d(\lambda)T_s(\lambda)$. Assim a reflectância da atmosfera pode vir dada por:

$$\rho_{atm}(\lambda) = \rho_{TOA}(\lambda) - \rho_{\sup}(\lambda,\theta_o,\theta_s)T_dT_s \quad \textbf{(eq.4. 6)}$$

onde $\rho_{TOA}(\lambda)$ pode ser obtido pela eq.4.5.

Por outro lado se forem conhecidas as contribuições da atmosfera, $\rho_{atm}(\lambda)$, e da superfície, $\rho_{sup}(\lambda)$, que atingem o satélite é possível calcular a reflectância total que atinge o topo da atmosfera $\rho_{TOA}(\lambda)$, em função da geometria do sol,θ_s, do ponto de observação (satélite),θ_o,e de um parâmetro relacionado com a absorção da radiação de pequeno c.d.o. pelos aerossóis, o albedo de dispersão simples dos aerossóis. Assim para um dado local e sobre uma dada superfície este cálculo pode ser feito para diferentes espessuras ópticas dos aerossóis (AOT), ou seja, construidas as Look-up-Tables (LUT) conforme está ilustrado na Fig.4.17 para o comprimento de onda de 865 nm. A partir da construção das LUT para diversas superfícies, com diferentes reflectâncias, será possível utilizá-las para obter as espessuras ópticas dos aerossóis na coluna atmosférica a partir da radiância (reflectida) medida no satélite, $\rho_{TOA}(\lambda)$. A aplicação deste método apresenta menor incerteza na determinação da espessura óptica dos aerossóis sobre superfícies de baixa reflectância, onde a radiância (reflectância) medida no satélite aumenta quase linearmente com a espessura óptica dos aerossóis, (M.D.King et al, 1999), Fig 4.17.

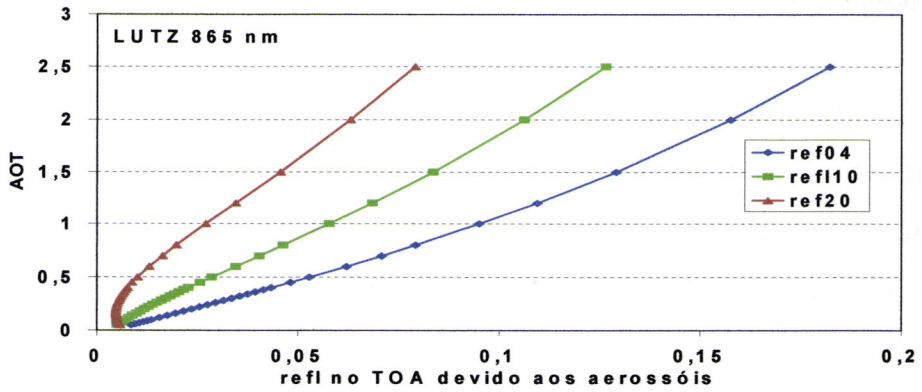

Fig 4.17- - Relação entre a reflectância no topo da atmosfera devida aos aerossós, ao nível do satélite, e a espessura óptica (AOT), para um aerossol marítimo com o albedo de dispersão simples, $\omega_0(870)=1$ e para reflectância de superfície de 4%, 10% e 20%. Os cálculos foram realizados com o código de transferência radiativa IMS de Nakajima et al, 1988, para um ângulo solar zenital 77°, solar azimutal 252°, ângulos de observação zenital 20° e azimutal, 188°.

Este método foi implementado no algoritmo de derivação dos parâmetros ópticos dos aerossóis usando o radiómetro AVHRR (no satélite NOAA) descrito por Stowe et al (1997).

d) Um outro método corresponde à aplicação do anterior algoritmo a dois ou mais canais para extrair não apenas informação da espessura óptica dos aerossóis, mas também da distribuição das dimensões dos aerossóis, a partir do expoente de Angstrom, α, (Durkee et al, 1991, Nakajima e Higurashi, 1997, 1998)

4.4.3.2.2. Metodologia Aplicada neste Trabalho

Um caso particular do método descrito anteriormente, que usa a reflectância no topo da atmosfera em dois ou mais canais, é o método utilizado neste trabalho para caracterizar os aerossóis a partir de observações de satélite. No nosso trabalho ao contrário dos métodos anteriores, onde as propriedades dos aerossóis são fornecidas pelos modelos, a construção das LUT parte dum conhecimento das propriedades "reais" dos aerossóis, ou seja, do expoente α de Angstrom, calculado a partir do comportamento espectral da AOT, obtida a partir de observação de radiância espectral à superfície (AERONET), da distribuição de dimensões, da função de fase e do índice de refracção complexo dos aerossóis.

No nosso caso, as LUT são construídas calculando a reflectância espectral devido aos aerossóis ao nível do satélite, $\rho_{aer}(\lambda)$, obtida da diferença da reflectância espectral da atmosfera, $\rho_{atm}(\lambda)$ e da reflectância espectral devida à dispersão Rayleigh, $\rho_{Ray}(\lambda, \theta, p, M_{obs}, M_s)$, em função da geometria de observação (M_{ob}) e do sol (M_s), do comprimento de onda (λ), do ângulo de dispersão θ, e pressão à superfície, p. Estes cálculos recorrem a um modelo de transferência radiativa, IMS (Nakajima e Tanaka, 1988), para o qual se fornecem as propriedades dos aerossóis obtidas por observação à superfície e a geometria do sol e do satélite, e considerando uma variação das espessuras ópticas espectrais dos aerossóis, entre 0 e 2.5. A relação entre a reflectância espectral devido aos aerossóis e as espessuras ópticas dos aerossóis depende do tipo de aerossol. Recorreu-se às observações de radiância descendente espectral, realizadas na região em estudo com o espectrorradiómetro da rede da AERONET, para determinar o "tipo" de aerossol e obter as suas características (distribuição de dimensões, n(r), função de fase, P_a, índice de refracção complexo m).

Este método é dividido em duas partes: uma, (A), referente à construção das LUT, apropriadas ao tipo de aerossol, e considerando a geometria do satélite e do sol; outra, (B), referente ao algoritmo a aplicar aos dados de radiância medidos no satélite, $L_{TOA}(\lambda)$, com os quais se calcula a reflectância espectral ao nível do satélite, $\rho_{TOA}(\lambda)$, de modo a utilizar-se as LUT construídas.

A) O método para a construção das LUT encontra-se esquematizado na Fig.4.18.

Após a obtenção das propriedades ópticas dos aerossóis (distribuição de dimensões, função de fase e índice de refracção complexo), recorrendo à medição da radiância solar espectral com espectrofotómetro da rede AERONET e ao código de inversão CIRATRA, aquelas são introduzidas no programa de transferência radiativa, IMS, de Nakajima e Tanaka, juntamente com os valores de reflectância espectral da superfície, $\rho_{surf}(\lambda)$ (ver secção 4.4.3.2.3), com os valores da geometria do sol e do satélite, para calcular a radiância espectral no topo da atmosfera, $L_{TOA}(\lambda)$, considerado o nível de navegação do satélite. Este procedimento é feito para diferentes espessuras ópticas do aerossol.

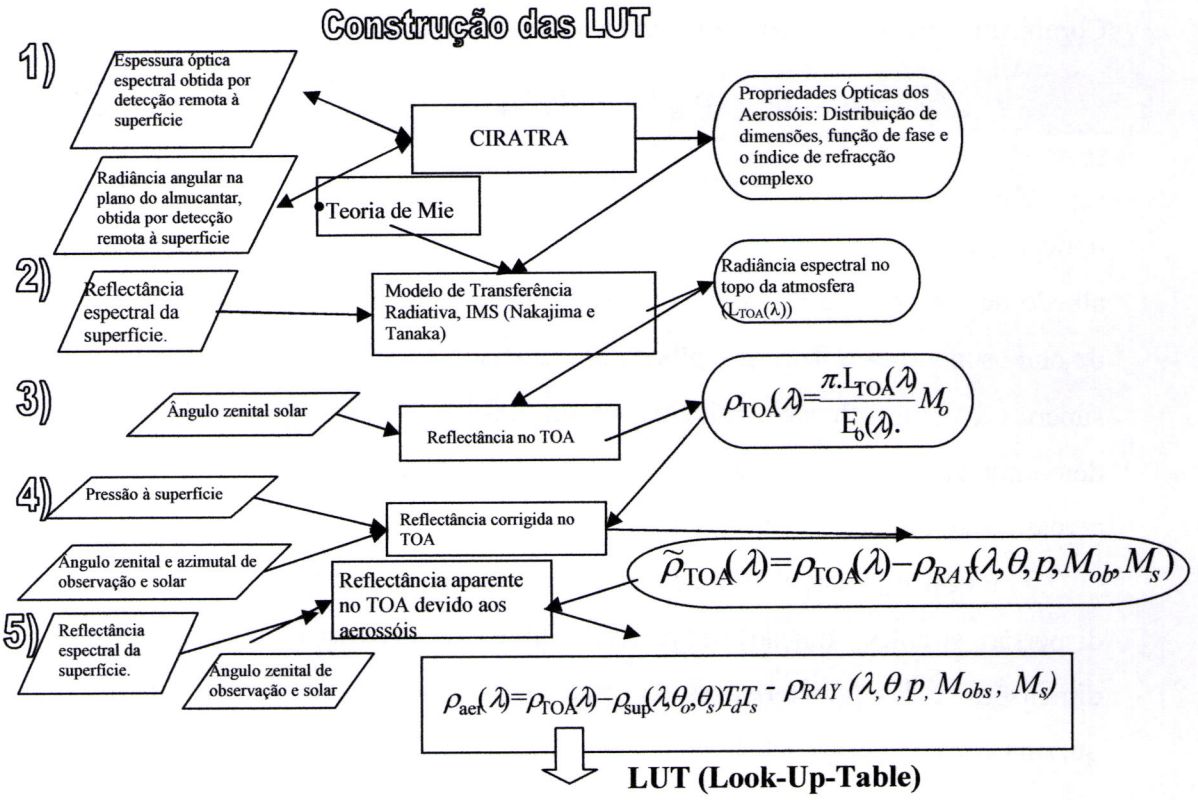

Fig 4.18 Esquema do método de construção das LUT (Look Up Table)

Utilizando a eq. 4.5 calcula-se a reflectância ao nível do topo da atmosfera $\rho_{TOA}(\lambda)$. Da eq.4.6, resolvida pelo modelo de transferência radiativa, obtém-se a reflectância da atmosfera, $\rho_{atm}(\lambda)$. Por outro lado, a reflectância da atmosfera resulta da dispersão dos aerossóis e das moléculas calculada através de:

$$\rho_{atm}(\lambda) = \rho_{Ray}(\lambda,\theta,p,M_{obs},M_s) + \rho_{aer}(\lambda) \quad \textbf{(eq.4. 7)}$$

onde $\rho_{Ray}(\lambda,\theta,p,M_{obs},M_s)$, é a reflectância devida à dispersão de Rayleigh, incluindo a dispersão múltipla, em função da geometria de observação (M_{ob}) e do sol (M_s), do comprimento de onda (λ), do ângulo de dispersão θ, e pressão à superfície, p, e, $\rho_{aer}(\lambda)$ é a reflectância que chega ao satélite devida aos aerossóis designada por reflectância aparente.

O termo $\rho_{Ray}(\lambda,\theta,p,M_{obs},M_s)$, é calculado por:

$$\rho_{Ray}(\lambda,\theta,p,M_{obs}M_s)=\pi\delta_{Ray}(\lambda)P_{Ray,\lambda}(\theta) \quad \textbf{(eq.4. 8)}$$

onde $\delta_{Ray}(\lambda)$ é a espessura óptica de Rayleigh (eq.2.31) e $P_{Ray,\lambda}(\theta)$ é a função de fase de Rayleigh (eq.2.30).

Combinando as eq.4.6 e eq.4.7 resulta a seguinte equação:

$$\rho_{aer}(\lambda) = \rho_{TOA}(\lambda) - \rho_{sup}(\lambda,\theta_o,\theta_s)T_dT_s - \rho_{RAY}(\lambda,\theta,p,M_{obs},M_s) \quad \textbf{(eq.4. 9)}$$

A relação entre a reflectância devida aos aerossóis, $\rho_{aer}(\lambda)$, e a sua espessura óptica, $\delta_{aer}(\lambda)$, depende do tipo de aerossóis, especialmente da sua função de fase e do albedo de dispersão simples, e da reflectância da superfície. Como para comprimentos de onda superiores a 0.4 μm o albedo de dispersão simples dos aerossóis é tipicamente superior a 0.9 a influência principal na reflectância dos aerossóis ao nível do TOA é determinada pela sua função de fase a qual está relacionada com o tipo ou tipos de aerossóis sobre a região seleccionada.

O termo $\rho_{surf}(\lambda,\theta_o,\theta_s)T_dT_s$, dependente das características dos aerossóis, albedo de dispersão simples, função de fase, do índice de refracção e da distribuição de dimensões, e das características da reflectância da superfície. O cálculo deste termo, quer na construção das LUT, para o tipo de aerossóis previamente observados sobre a região seleccionada, quer na aplicação aos dados de satélite, é aproximado por (Von Hoyningen-Huene, et al, 2003):

$$\rho_{surf}(\lambda,\theta_o,\theta_s)T_dT_s \approx \rho_{surf}(\lambda,\theta_o,\theta_s)T_{Ray}(\lambda,\theta_s)\omega_o(\lambda) \quad \textbf{(eq.4. 10)}$$

onde o termo $T_{Ray}(\lambda)$ é a transmissividade de Rayleigh na atmosfera para o ângulo de observação do satélite e $\omega_o(\lambda)$ é o albedo de dispersão simples dos aerossóis observados. A reflectância da superfície, $\rho_{surf}(\lambda,\theta_o,\theta_s)$, na direcção do satélite, é calculada através da relação $\rho_{surf}(\lambda)\cos(\theta_o)\cos(\theta_s)$, onde θ_o é o ângulo zenital de observação (satélite) e θ_s é o ângulo zenital solar.

As LUT são construídas de forma a que para cada valor de espessura óptica dos aerossóis se associe um valor de reflectância devida aos aerossóis ao nível do satélite, $\rho_{aer}(\lambda)$, para cada tipo de aerossóis, para cada valor espectral de reflectância da superfície, e para os comprimentos de onda das bandas do radiómetro a bordo do satélite. Assim recorrendo à eq.4.9 $\rho_{aer}(\lambda)$, é calculada para cada valor da espessura óptica num dado comprimento de onda e compreendido entre 0.0 e 2.5.

O termo $\rho_{TOA}(\lambda)$ é calculado recorrendo ao código de transferência radiativa IMS (Nakajima e Tanaka, 1988) e à eq. 4.4; $\rho_{Ray}(\lambda,\theta,p,M_{obs},M_s)$ é calculado conhecendo a pressão ao nível do solo e aplicando as eq.2.30, eq.2.31 e eq.4.8. Para o cálculo do

termo $\rho_{surf}(\lambda, \theta_o, \theta_s)T_dT_s$ é necessário conhecer a reflectância espectral da superfície, $\rho_{surf}(\lambda, \theta_o, \theta_s)$(ver secção seguinte), o albedo de dispersão simples dos aerossóis observados, $\omega_0(\lambda)$ e a transmissividade de Rayleigh na atmosfera para a geometria do satélite, T_{Ray}, (ver secção 2.3.2.5) de acordo com a (eq.4.10).

B) Nesta parte realiza-se a aplicação das LUT construídas anteriormente aos dados medidos pelo satélite para uma área seleccionada em estudo, isto é, comparam-se as LUT calculadas na parte A) com as reflectâncias espectrais calculadas a partir das radiâncias espectrais medidas pelo satélite, às quais se retiraram as reflectâncias de Rayleigh e da superfície, de acordo com a eq. 4.9. As radiâncias medidas no satélite, para as diferentes bandas de comprimentos de onda, são transformadas em reflectância ao nível do satélite $\rho_{TOA}(\lambda)$ aplicando a eq.4.5. A reflectância devido à dispersão de Rayleigh é calculada utilizando a eq.4.8. Para o cálculo da espessura óptica de Rayleigh, $\delta_{Ray}(\lambda)$, recorre-se à eq.2.31 sendo necessário ter informação da pressão atmosférica para cada local (pixel). Esta é obtida utilizando a equação barométrica e as altitudes z (m). Com este fim utilizou-se um modelo de elevação digital (DEM), o GTOPO30 (com uma resolução aproximada de 1km) desenvolvido por USGS (United States Geological Survey). O termo da reflectância da superfície é aproximado da mesma forma que na construção das LUT com um valor estimado para $\rho_{surf}(\lambda)$(ver 4.4.3.2.3).

Da comparação da LUT com os valores obtidos para o satélite são derivadas as espessuras ópticas dos aerossóis em estudo para os diferentes comprimentos de onda e os parâmetros de Angstrom. Os parâmetros de Angstrom, α e β são calculados segundo a lei de potência de Angstrom, utilizando um ajuste pelo método dos mínimos quadrados, das espessuras ópticas espectrais obtidas a partir das LUT.

4.4.3.2.3. Reflectância da Superfície

Para se obter a radiância que atinge o Topo da Atmosfera (TOA), ou o nível dos satélites, é imprescindível a estimativa da reflectância espectral, ou na banda espectral em que se pretende ter resultados, da superfície, $\rho_{surf}(\lambda)$. Vários métodos são propostos de forma a obter um valor estimado da reflectância da superfície suficientemente próximo do que seria hipoteticamente observado. Pode recorrer-se a uma base de dados

climatológica ou fazer-se a estimativa com base em dados de radiómetro instalado no satélite. Neste caso aparecem duas aproximações consoante as características do radiómetro:

- Kaufman et al, 1997, propôs a estimativa da reflectância da superfície nos canais 0.47 μm e 0.67 μm a partir da reflectância medida no infravermelho próximo (2.1 μm ou 3.8 μm), quando o satélite está sobre terra e com vegetação (baixa reflectância nos canais do visível). Isto é devido às características do espectro de reflectância da vegetação, que apresenta para os c.d.o. de 2.1 μm e 3.8 μm valores muito baixos, da mesma ordem de grandeza que para os c.d.o. 0.47 μm e 0.67 μm. Também se considera que a influência dos aerossóis na reflectância no topo da atmosfera na região infravermelho próximo do espectro de radiação é negligenciável. Assim, a reflectância da superfície para esta região do espectro pode ser encontrada corrigindo sómente a dispersão de Rayleigh (devido aos gases) e a absorção gasosa na atmosfera (Kaufman et al, 1997; Remer et al, 2005)
- von Hoyningen-Huene et al, 2003, propõe um método baseado no índice NDVI (Normalised Difference Vegetation Índex) calculado com os canais 6 e 8 respectivamente centrados em 0.67 μm e em 0.865 μm, do radiómetro SeaWIFS, em vez dos canais tradicionais usados na definição desse índice para o satélite NOAA Neste caso a reflectância da superfície, $\rho_{surf}(\lambda)$, seria estimada por:

$$\rho_{sup}(\lambda) = NDVI * \rho_{veg}(\lambda) + (1 - NDVI) * \rho_{solo}(\lambda) \quad \textbf{(eq.4. 11)}$$

onde $\rho_{veg}(\lambda)$ é a reflectância para o comprimento de onda λ duma superfície coberta por vegetação "típica" e $\rho_{solo}(\lambda)$ é a reflectância duma superfície coberta com um dado tipo de solo.

- von Hoyningen-Huene et al, 2003, no algorítmo aplicado ao radiómetro MERIS/ENVISAT, baseia a estimativa da reflectância da superfície em estudos de reflectância no TOA, na região azul do espectro solar, onde a maior parte dos tipos de superfícies apresentam muito baixa reflectividade e a dispersão da atmosfera contribui mais para o sinal observado.

Neste trabalho a reflectância da superfície foi estimada recorrendo a dois radiómetros em satélite, LANDSAT7 (Bugalho et al, 2001) e o MODIS (Silva, A., et al, 2003). Foram utilizados estes radiómetros principalmente devido à disponibilidade de dados sobre as regiões em estudo e ao facto de serem radiómetro com várias bandas na região vísivel do espectro. Neste caso, podem ser referidas duas metodologias:

- Com o LANDSAT7, foram usadas as reflectâncias da superfície nas várias bandas na região vísivel do espectro de radiação (0.45-0.52 μm, 0.52-0.60 μm e 0.63-0.69 μm, com 30 m de resolução espacial) numa área com vários tipos de solo (solo após queimada, solo nu e com vegetação). Foi assim estimada a reflectância da superfície para diferentes tipos de ocupação do solo na região em estudo. Os resultados destas estimativas da reflectância da superfície, obtida para os vários tipos de ocupação do solo, foram utilizados directamente no algoritmo de obtenção das propriedades ópticas dos aerossóis a partir das radiâncias do radiómetro MISR, para as bandas centradas em 0.446μm, 0.558μm e 0.672μm. Na verdade as bandas escolhidas do LANDSAT7 coincidiam, muito aproximadamente, com as bandas do MISR utilizadas.
- Com o MODIS, usou-se o método do NDVI proposto por von Hoyningen- Huene, eq.4.11, mas em que os valores da reflectância de vegetação, $\rho_{veg}(\lambda)$, e do solo, $\rho_{solo}(\lambda)$, foram ajustados iterativamente, de forma a se ter o valor de reflectância da superfície, $\rho_{surf}(\lambda)$, obtida pelos canais do MODIS, para o canal 1 (0.62-0.67μm) com resolução espacial de 250 m, e para o canal 4 (0.545-0.565μm) com resolução espacial de 500 m. Foi escolhida uma situação em que a atmosfera é considerada "limpa", isto é, com uma espessura óptica no comprimento de onda dos 550 nm igual ou inferior a 0.05. A correcção atmosférica foi feita aplicando o modelo 6S às propriedades dos aerossóis obtidas pelo CIRATRA a dados de radiância medidos com o radiómetro CIMEL. Foram calculadas médias espaciais do número de pixels do MODIS contidos num pixels do SeaWIFS (com resolução de 1,1Km por 1,1 Km), de forma a ter os valores de reflectância da superfície para os canais 1 e 4 do MODIS com a resolução de 1.1Km, idêntica à do SeaWIFS, radiómetro por nós também utilizado para obter as

propriedades ópticas dos aerossóis e com o qual se calcularam os valores do NDVI. Utilizaram-se os canais 6 e 8 e o índice NDVI calculado de acordo com a eq.4.12.

$$NDVI_{SeaWIFS} = \frac{ch\,8 - ch\,6}{ch\,8 + ch\,6} \quad \textbf{(eq 4. 12)}$$

O ajuste dos valores da reflectância de vegetação e de solo obtidos desta forma para os dois canais do MODIS, foram extrapolados para as curvas das reflectâncias de vegetação e solo para vários comprimentos de onda.

4.5. Identificação da Origem e Transporte dos Aerossóis Atmosféricos: Trajectórias

Para a caracterização das massas de ar e dos aerossóis que transportam, especialmente para conhecer a sua origem e as regiões que atravessam durante o seu deslocamento admitindo que os aerossóis não sofreram transformações durante o seu transporte, calculam-se trajectórias, usando modelos que dão a evolução no tempo da sua posição geográfica (latitude, longitude e altitude) de uma partícula. Podem calcular-se as retrotrajectórias, quando se pretende conhecer como os aerossóis se encontram numa determinada posição evoluíram anteriormente por um período de tempo a indicar. Do mesmo modo se podem calcular as trajectórias para o futuro, partindo da posição actual dos mesmos e calcular a sua evolução para o futuro, por um período de tempo a indicar. Enquanto as retrotrajectórias são calculadas com base em observações meteorológicas ou num modelo de análise que toma por base essas observações, as trajectórias para o futuro são calculadas com base nos resultados de modelos de previsão, se realizadas em tempo real.

Para o cálculo da posição geográfica duma partícula os modelos de trajectória usam a componente horizontal e vertical da advecção. Normalmente, o campo do movimento vertical faz parte dos dados meteorológicos de input, num sistema de coordenada vertical. Os modelos de trajectórias podem usar o campo do movimento vertical directamente, após recalcular os dados de input para um sistema de coordenadas comum. Quando o campo do movimento vertical não está nos dados meteorológicos de input, ou quando se pretende algumas condições específicas para as

simulações, os modelos de trajectória calculam internamente a velocidade vertical supondo o movimento da partícula numa superfície isobárica, isentrópica, isosigma ou isopícnica. A principal diferença entre um modelo usando o campo do movimento vertical e outro usando o movimento isentrópico aparece nas vizinhanças das superfícies frontais. Estas diferenças parecem ser desprezáveis para o cálculo de trajectórias de 48h, aumentando, no entanto, com o tempo. O modelo isobárico apresenta erros maiores que qualquer modelo tridimensional isentrópico quando a trajectória acontece num regime de circulação depressionário ou durante fenómenos de convecção, Martin et al, 1987. O modelo das trajectórias utilizado nas diferentes campanhas apresentadas neste trabalho foi o modelo HYSPLIT (Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory) desenvolvido pela NOAA e Australia's Bureau of Meteorology (Draxler and Hess, 1998) e bem documentado na página da internet http://www.arl.noaa.gov/ready/hysp_info.html.

CAPÍTULO V

Resultados e Discussão de Casos de Estudo

5.1. Introdução

Neste capítulo apresentam-se alguns casos de estudo dos aerossóis atmosféricos utilizando as duas diferentes metodologias anteriormente descritas: uma em que se faz o estudo dos aerossóis por observações à superfície, quer "in situ" quer por detecção remota, com o objectivo de conhecer as propriedades dos aerossóis atmosféricos na coluna atmosférica e numa camada mais próxima da superfície, e outra em que se faz o seu estudo por observação remota à superfície e em satélite, com o objectivo estender o conhecimento das propriedades dos aerossóis obtidas num local para uma região.

O modelo de inversão das propriedades ópticas dos aerossóis utilizado durante a realização deste trabalho foi o CIRATRA modificado, cuja descrição foi feita no capítulo anterior na secção 4.2.1. O modelo de transferência radiativa aplicado quer na inversão quer na construção das LUT, para a obtenção das propriedades dos aerossóis por detecção remota em satélite, foi o código IMS, (Intensity corrected Multiple Scattering) de Nakajima e Tanaka, 1988, como está também assinalado na mesma secção.

A conjugação da observação remota à superfície, referente a toda a coluna atmosférica, com a observação " in situ", num dado ponto da atmosfera, conduzindo ao estudo das propriedades, ópticas e físicas, dos aerossóis, exige uma interpretação que deve ser feita caso a caso, e, não de um modo generalizado. No caso do estudo dos aerossóis atmosféricos por observação à superfície foram utilizados dados de observação "in situ" para complementar os resultados obtidos com a observação remota à superfície, sendo necessário uma cuidadosa interpretação das trajectórias e dos perfis verticais da temperatura e da humidade relativa, assim como de outras observações meteorológicas (direcção e velocidade do vento). As observações tratadas nesta parte do trabalho foram obtidas durante a campanha ACE2 CLEARCOLUMN na região sudoeste de Portugal (Sagres e Foia). Os resultados são mostrados na secção 5.2.

A observação remota por satélite foi utilizada para a obter a caracterização de alguns tipos de aerossóis atmosféricos, como os aerossóis produzidos em fogos florestais, os referentes à poluição urbana/industrial e os aerossóis resultantes das areias do deserto, em algumas regiões onde se realizaram campanhas, como o caso do Sul de África (SAFARI 2000) e Armilla (Espanha, Veleta 2002). Para a utilização da detecção remota em satélite foi necessário a aplicação da metodologia para a estimativa da reflectância da superfície, descrita em 4.4.3.2.3, em que se utilizou o satélite LANDSAT7 na região do sul de África e o MODIS na região de Armilla. Os resultados são mostrados na sessão 5.3.1.

5.2. Propriedades de Aerossóis Obtidas a partir de Observações à Superfície.

5.2.1. Classificação de Diferentes Tipos de Aerossóis. Relação com as Massas de Ar em Portugal.

A análise dos dados obtidos de medições da espessura óptica dos aerossóis, realizadas em Foia, durante a campanha CLEARCOLUMN ACE-2 (Second Aerosol Characterization Experiment), mostrou que era possível o uso dos paramêtros de Angstrom para classificar o tipo de massa de ar, especialmente as massas de ar típicas, isto é, tipicamente marítima ou tipicamente continental (Bugalho, L. Silva, A.M., 1997).

Durante todo o período da campanha CLEARCOLUMN ACE2 foram derivados os parâmetros de Angstrom: expoente de Angstrom, α, para a banda de 340nm aos 1020nm, e coeficiente de turvação de Angstrom, β, para Foia (37.31°N, 08.6°W, 902m) e Sagres (37°N, 09°W, 50m), a partir das medições de espessura óptica dos aerossóis (A.Silva et al, 2002).

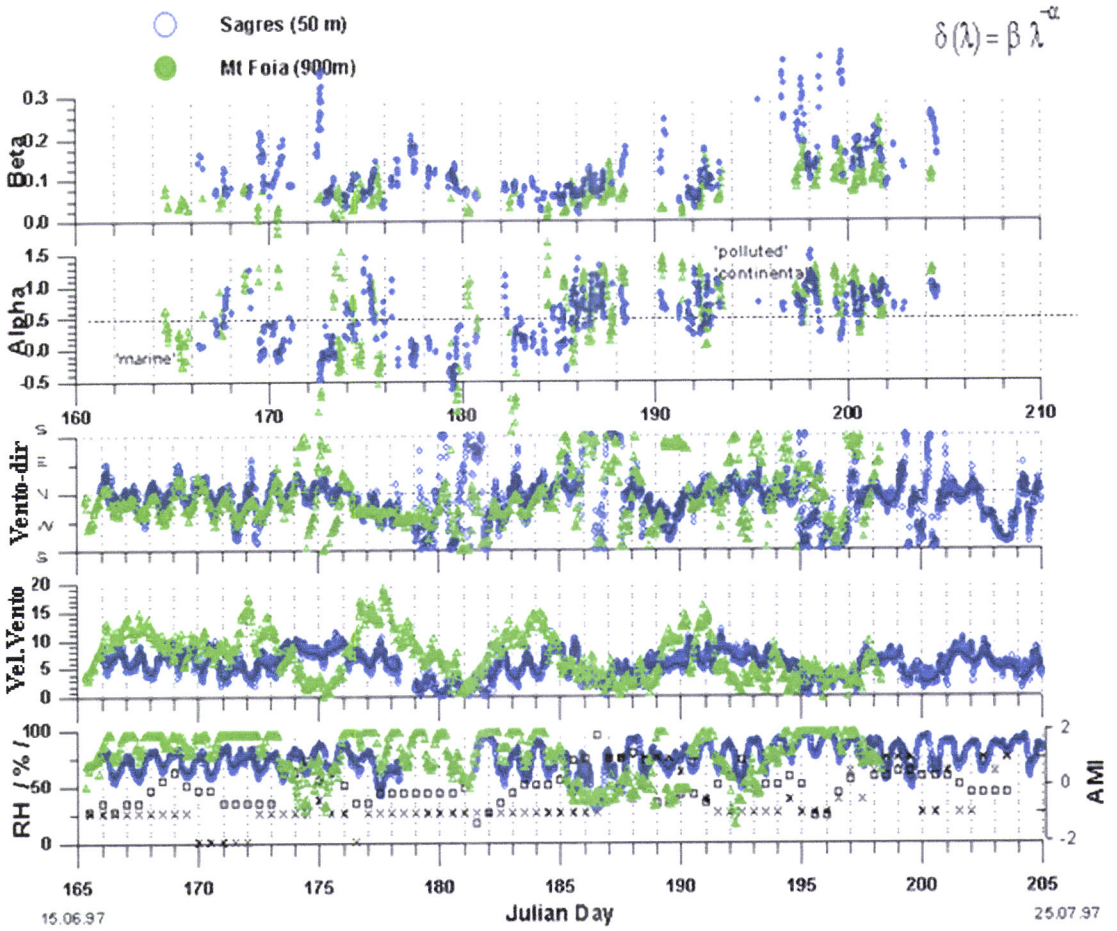

Fig 5.1 Variação dos parâmetros de Angstrom (alpha e beta), da velocidade e direcção do vento, da humidade relativa e de diferentes massas de ar durante a campanha ACE2 Clearcolumn, 1997

Na Fig 5.1. mostram-se os parâmetros de Angstrom, α e β, juntamente com os dados meteorológicos (direcção e velocidade do vento e humidade relativa), e um índice de massa de ar (AMI) baseado na origem e parte final da rectro-trajectória isentrópica para o nível médio do mar, para Sagres e Foia. Apenas se consideraram as trajectórias ao nível médio do mar pois a altitude de Sagres encontra-se, aproximadamente, ao nível do mar e, os outros níveis de pressão a que foram calculadas (850 hPa, 700 hPa e 500 hPa) ficavam acima de Foia. Os valores positivos do índice de massa de ar (AMI) correspondem a massa de ar continental e os negativos a ar marítimo. Assim: -2, corresponde a ar marítimo com origem próximo da costa da América do Norte; -1, corresponde a ar marítimo com origem no Atlântico Norte; -0.5, a ar marítimo com origem próximo da Península Ibérica; 0, a ar com origem local; 0.5,

a ar continental com origem na Península Ibérica; 1, ar continental com origem na Europa Central.

A análise da Fig.5.1 permite verificar que a espessura óptica espectral dos aerossóis obtida quer para Sagres quer para Foia é influenciada pela variação da direcção do vento que indicava ou a entrada de ar marítimo ou a entrada de vento continental. Esta influência pode ser detectada durante as horas da manhã (fim da manhã, em geral, com a entrada da brisa marítima) em que o vento roda de NE (Península Ibérica) para W/NW (oceano Atlântico) e onde ocorre aumento da espessura óptica dos aerossóis e diminuição do expoente de Angstrom, α, indicando a intrusão de mais aerossóis de maiores dimensões. Ao fim da tarde, ou durante o período nocturno, o processo é inverso: com a variação do vento de W/NW para E/NE aumenta o valor do expoente de Angstrom com o ar continental do interior da Península Ibérica e, em consequência, predominância de aerossóis de menores dimensões.

A Fig.5.2 dá alguns exemplos dos valores típicos da espessura óptica espectral dos aerossóis em Sagres (S-50) e em Fóia (S-900) para diferentes situações meteorológicas. A Fig.5.2.A) mostra dados de uma situação em que a camada limite marítima tinha o topo abaixo de Foia. Assim, as medições da espessura óptica espectral dos aerossóis realizadas em Sagres mostram um declive típico de aerossóis marítimos, declive quase nulo, enquanto as observações feitas em Foia mostram um declive acentuado, típico de aerossóis continentais. Para a coluna total, ao nível da superfície do mar, a contribuição dos aerossóis marítimos, da camada limite, é dominante.

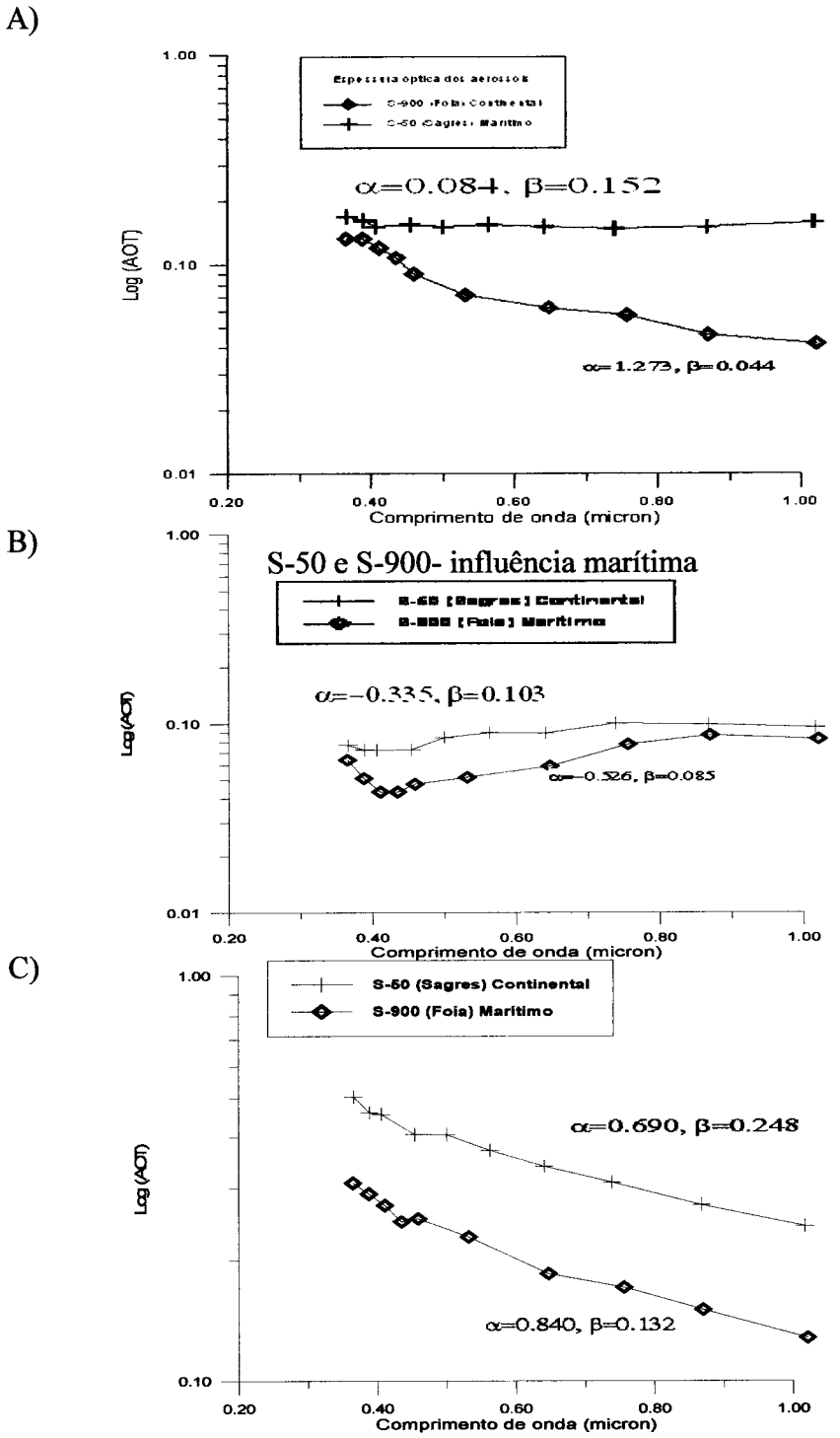

Fig.5.2 Exemplos da espessura óptica espectral dos aerossóis para diferentes situações meteorológicas em Sagres e Foia. A) para o dia 19 de Junho de 1997; B) para o dia 29 de Junho de 1997 e C) para o dia 17 de Julho de 1997

No segundo caso, Fig.5.2.B), quer em Sagres, quer em Foia, as características ópticas dos aerossóis observados são de aerossóis marítimos, em que o expoente de Angstrom, declive das espessuras ópticas espectrais, é praticamente nulo, mesmo negativo. Neste caso os dois lugares, estão numa mesma camada limite marítima que se estende até uma altitude acima de 2000m, conforme se pode confirmar na Fig.5.3, representando as sondagens de humidade relativa e temperatura. Neste caso, o efeito da camada limite marítima é dominante para toda a coluna atmosférica.

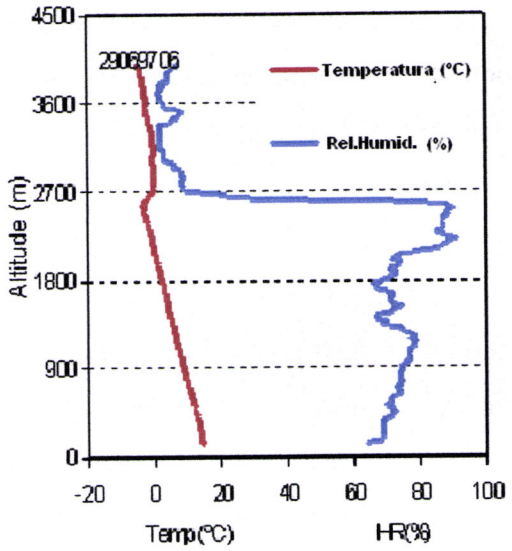

Fig.5.3 Sondagem realizada no dia 29 de Junho de 1997.

No caso da Fig.5.2.C) o efeito dominante na coluna atmosférica é devido aos aerossóis continentais, responsáveis pelo declive acentuado das espessuras ópticas espectrais, quer em Sagres quer em Foia.

Neste caso a espessura óptica correspondente à camada limite marítima pode apenas ser obtida pela diferença da espessura óptica nos dois lugares.

5.2.2. Comparação das Propriedades dos Aerossóis Obtidas Localmente e para a Coluna Atmosférica.

O expoente de Angstrom, α, foi calculado a partir da eq. 2.24 usando os valores de espessura óptica espectrais dos aerossóis de toda a coluna atmosférica obtidas a partir da radiância solar espectral directa medida com o espectrorradiómetro para a banda dos 340nm aos 1020nm, e, a partir da eq.3.2, utilizando os coeficientes de dispersão medidos com o nefelómetro nos três comprimentos de onda 450nm, 550nm e 700 nm e à altitude de aproximadamente 900m. Neste último caso o que se obtém são os coeficientes de dispersão dos aerossóis à superfície que podem ser considerados próximo dos coeficientes de extinção dos aerossóis, desprezando a absorção dos

mesmos. Esta aproximação não poderá ser generalizada para todos os tipos de aerossóis (p.ex. se houver junto do local de observação aerossóis de curto percurso que resultam de fogos florestais)

Para as situações em que a massa de ar continental tinha parte da sua trajectória sobre o mar, ou vice-versa, isto é massa de ar marítima com trajectória final sobre terra, (situação de mistura de massas de ar) os parâmetros de Angstrom não deverão ser o único parâmetro a explicar a origem dos aerossóis atmosféricos e as suas características ópticas É notório, em vários dias caracterizados por massas de ar continental, com aerossóis classificados como continentais, obter expoentes de Angstrom acima de 1.0, se calculados com as espessuras ópticas espectrais obtidas para a coluna atmosférica entre os 340nm e os 1020nm, ou mesmo acima de 2.0, se calculados a partir dos coeficientes de dispersão medidos como nefelómetro. Porém, observa-se que com a entrada da brisa marítima nas primeiras horas da tarde, e correspondente mudança na direcção do vento, os valores do expoente de Angstrom obtidos para a coluna atmosférica descem significativamente (ver Fig.5.4), ou seja, indiciando a presença de aerossóis marítimos, de maiores dimensões, não detectados em altitude na estação de Fóia (aproximadamente a 900m de altitude) onde a brisa marítima não se terá feito sentir de modo significativo.

Os valores dos dois expoentes de Angstrom obtidos pelas duas vias mostram comportamentos relativos semelhantes para a situação de ar continental (ver Fig.5.4) (Bugalho, L., e A.M. Silva, 1997), exceptuando a situação referente à entrada de brisa marítima. Para a situação de ar marítimo (ver Fig.5.5) os valores do expoente de Angstom apresentam maior variabilidade, especialmente os obtidos a partir da espessura óptica espectral dos aerossóis para toda a coluna atmosférica. Os valores obtidos a partir do nefelómetro, situado a 900m de altitude, não só não reflectem a existência de aerossóis marítimos (de maiores dimensões) uma vez que os expoentes de Angstrom se situam entre 1 e 1.5, ao contrário dos obtidos na coluna atmosférica cujo valor está perto de 0, como se mantêm aproximadamente constante ao longo do dia. O facto dos valores do expoente de Angstrom obtidos com o nefelómetro serem superiores aos obtidos com o espectrofotómetro tem a ver com a diferente situação de humidade em que se encontram os aerossóis na coluna atmosférica e no nefelómetro. Na coluna os aerossóis apresentam uma humidade relativa do ar de aproximadamente

60-70%, enquanto no nefelómetro (em Fóia) a humidade relativa era mantida a cerca de 20-30% resultando portando em aerossóis com dimensões mais reduzidas das que teriam em ambiente natural com humidade relativa superior.Já a variabilidade dos expoentes de Angstrom obtidos para a coluna ao longo do dia (em contraste com a reduzida variabilidade observada à superfície) poderá ter a ver com oscilações na velocidade da massa de ar de origem marítima que era "observável" na coluna mas não "in situ".

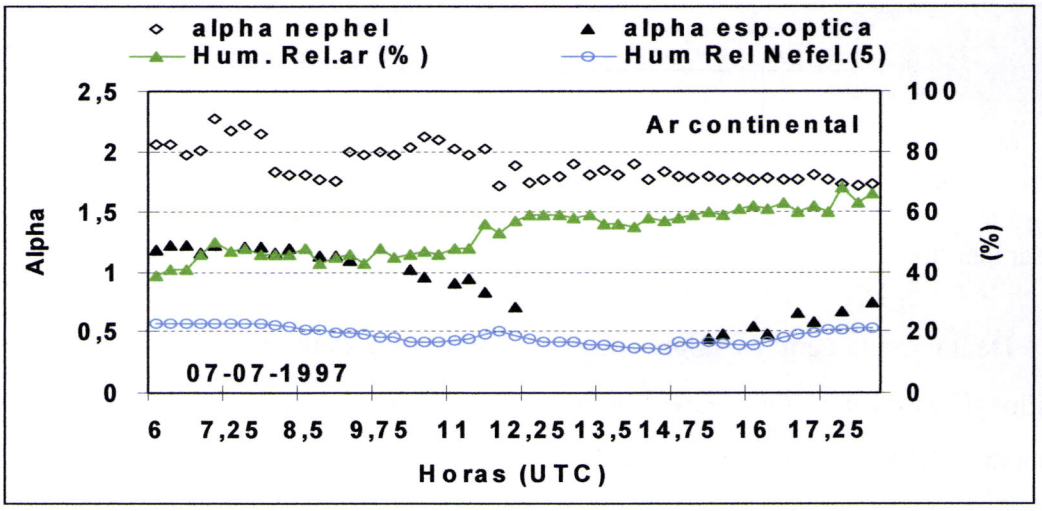

Fig.5.4 Expoente de Angstrom calculado por dois diferentes métodos: a partir dos coeficientes de dispersão e a partir da espessura óptica dos aerossóis, para uma massa de ar continental, mas com brisa marítima nas primeiras horas da tarde.

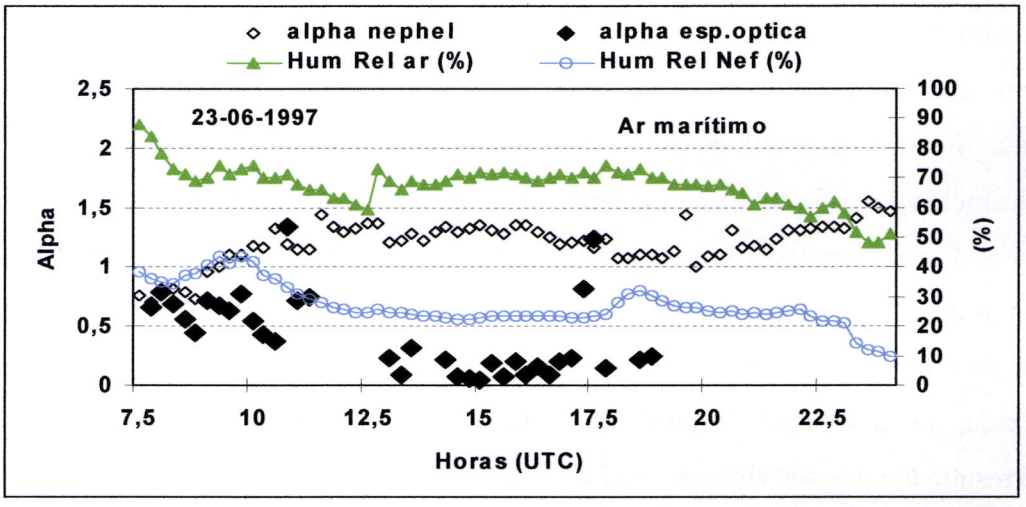

Fig.5.5: Expoente de Angstrom calculado por dois diferentes métodos: a partir dos coeficientes de dispersão e calculado a partir da espessura óptica dos aerossóis, para uma massa de ar marítimo.

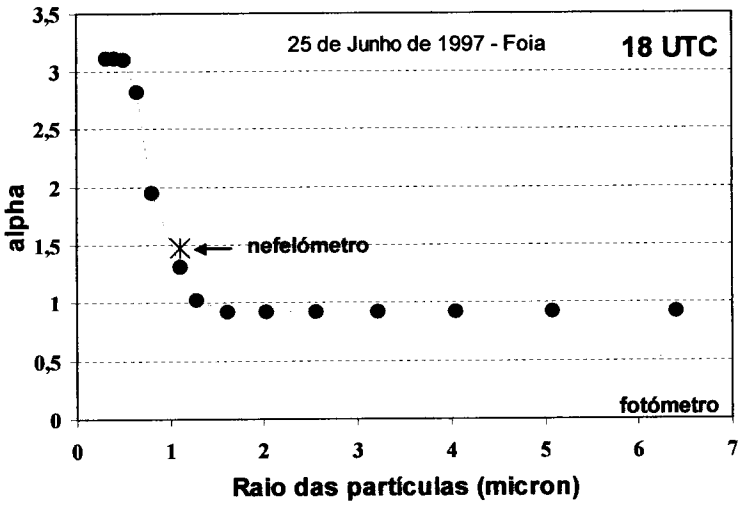

Fig.5.6 – Resultados do estudo do 'cut-off' para o dia 25 de Junho de 1997, em Foia, dia de ar marítimo

De um modo geral os valores do expoente de Angstrom, α, na coluna atmosférica obtidos da espessura óptica espectral dos aerossóis são sistematicamente inferiores aos expoentes de Angstrom à superfície obtidos dos valores dos coeficientes espectrais de dispersão. As razões para este facto podem ser diversas, entre as quais a humidade relativa do ar, confome mencionado. Para além desta razão (abordada mais à frente nesta secção) há outras razões que se relacionam com captação dos aerossóis para o instrumento à superfície (nefelómetro) e que não é feita quando se oberva a coluna atmosférica. Na verdade a amostragem de ar feita pelo nefelómetro, e a partir da qual se obtem os coeficientes de dispersão, passa por uma cabeça de amostragem instalada à entrada do tubo de admissão de ar com cerca de 30 m de altura do instrumento que teoricamente deixaria entrar partículas com raios inferiores a 5μm, mas que, na prática, não era o que acontecia (os aerossóis maiores, isto é, mais dispersores, não deveriam penetrar até à câmara de amostragem, ficando retidos na tubagem). Foi determinado o valor de corte do diametro dos aerossóis admitidos na cabeça de amostragem PM10 utilizada, numa situação de predomínio de aerossóis marítimos (maiores dimensões) cujo resultado pode ser visto na Fig.5.6.

Com o objectivo de determinar os valores de corte dos diâmetros de admissão do ar no nefelómetro foi realizado um estudo para dias em que a camada de mistura, marítima, coincidia com a camada de aerossóis, estendendo-se desde o nível médio do

mar até a uma altitude acima de Foia. Este estudo consistiu em determinar as distribuições de dimensões dos aerossóis por inversão das medidas de radiância espectral directa com o modelo CIRATRA. Com base na distribuição de dimensões das partículas, obtida da inversão, e do índice de refracção complexo obtido pelo CIRATRA, calcularam-se os coeficientes de extinção para diferentes comprimentos de onda, recorrendo à teoria de Mie, (eq. 2.20), e o expoente de Angstrom correspondente. Após estes cálculos procedeu-se à eliminação progressiva de classes de dimensões das partículas até ao ponto em que os expoentes de Angstrom obtidos com as duas séries de observações: espectrorradiómetro, correspondente a toda a coluna, e nefelómetro, correspondente à amostragem de ar à superfície, coincidiam, (Fig.5.6). Esta análise foi efectuada para as condições meteorológicas de ar marítimo, considerando-se negligênciável a absorção pelas partículas, isto é, considerando-se o coeficiente de absorção próximo de zero.

Desta comparação concluiu-se que na cabeça de amostragem e tubagem usada para a amostragem de ar do nefelómetro ocorria a perda das grandes partículas, com diâmetros superiores a cerca de 2 μm.

Um outro facto que pode explicar a diferença dos parâmetros de Angstrom obtidos para a superfície e para a coluna atmosférica é a humidade relativa do ar nas duas situações: no nefelómetro a humidade relativa do ar era muito mais baixa que a do ar ambiente (Fig.5.4 e 5.5), em consequência do aquecimento sentido na câmara de amostragem pela existência da lâmpada no seu interior, pelo que não se faria sentir o efeito do crescimento higroscópico dos aerossóis e, em consequência os aerossóis seriam de menores dimensões dentro da câmara de amostragem.

Considerando que os perfis de humidade relativa do ar estão bem correlacionados com a concentração de aerossóis na atmosfera (Ansmann, A. et al, 1992; Wulfmeyer, V. et al, 2000), as sondagens realizadas podem indicar a altitude das camadas de aerossóis (Bugalho, L. et al, 1999).

Um outro aspecto a analisar, e que contribui para a discrepância dos valores dos parâmetros de Angstrom à superfície e na coluna atmosférica, é que a amostragem de ar para o nefelómetro é feita a uma determinada altitude que, por vezes, não correspondia ao nível das camadas de aerossóis existentes, observadas quando se tiram medidas da espessura óptica da coluna atmosférica. Isto é, nalguns dias, a camada de aerossóis

encontrava-se acima do nível em que eram retiradas as amostras de ar, no nosso caso a cerca de 902m, sendo nesse nível o ar muito limpo e seco, especialmente no dia 07 de Julho de 1997 (Fig.5.4 e 5.7 A) e B)).

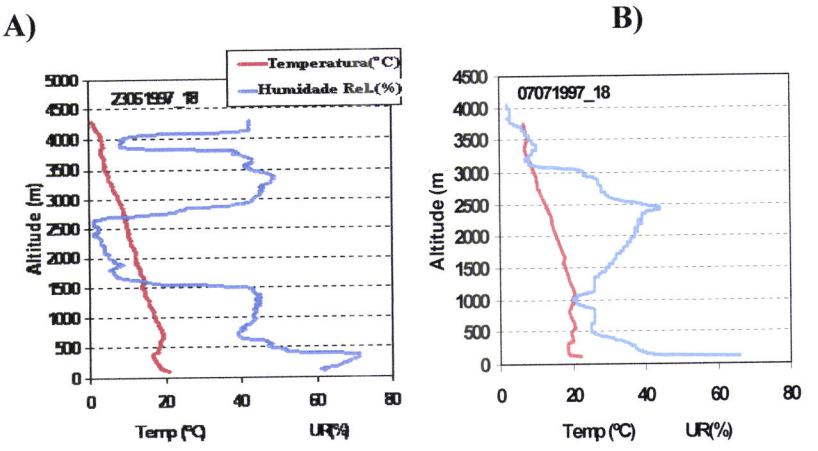

Fig.5.7- Sondagem de temperatura e humidade relativa do dia.A) 7 de Julho de 1997 às 18UTC, e B) 23 de Junho 1997 às 18h,em Sagres, e onde pelo perfil da humidade relativa se infere uma camada muito limpa ao nível de Foia (902m de altitude)

5.3. Propriedades Ópticas dos Aerossóis Obtidas por Observação Remota por Satélite.

5.3.1. Estimativa da Reflectância da Superfície

Quando se pretende obter as propriedades ópticas dos aerossóis a partir de dados de radiómetros colocados em satélite sobre o oceano a reflectância da superfície apresenta valores muito baixos, especialmente para os canais de comprimento de onda acima dos 600 nm. Quando se pretende realizar o mesmo estudo sobre terra coloca-se o problema de estimar a reflectância da superfície visto esta apresentar valores elevados, especialmente para comprimentos de onda superiores a 600nm, (ver Fig 4.9 b), e da mesma ordem de grandeza da reflectância da atmosfera.

Neste sentido durante os estudos realizados para esta tese foram feitas estimativas da reflectância da superfície sobre terra usando dois satélites de grande resolução espacial: o LANDSAT 7, com correcção atmosférica, e o radiómetro MODIS

cuja correcção atmosférica foi feita para um dia de céu limpo, sem nebulosidade e com uma concentração extremamente baixa de aerossóis, isto é, quase "limpo" de aerossóis. A utilização de dados destes dois satélites, como auxiliares na estimativa da reflectância da superfície, esteve relacionada com a disponibilidade de imagens, com as suas características espectrais, e com as resoluções espaciais (30m para o LANDSAT7 e 250m/500m para o MODIS). A metodologia aplicada foi descrita em 4.4.3.2.3.

No caso de estudo na região de Skukuza (25.0ºS, 31.6ºE), no sul de África, a reflectância da superfície foi estimada recorrendo aos dados do canal 1 (0.45 - 0.52 μm), canal 2 (0.52 - 0.60 μm) e canal 3 (0.63 - 0.69 μm) do satélite LANDSAT 7, com 30 m de resolução espacial. O radiómetro utilizado para determinar as propriedades dos aerossóis na coluna atmosférica foi o MISR, onde se usaram os canais 0.446 μm, 0.558 μm, 0.672μm. Na imagem do LANDSAT7 foram escolhidas zonas, em redor de Sukuza, com cerca de 10 por 10 pixeis, com a maior uniformidade possível, isto é, em que os valores de reflectância para cada um dos três canais do LANDSAT7 apresentem pequenas variações, para cada um dos diferentes tipos de cobertura do solo (vegetação, solo nu e solo ardido) de forma a obter-se um valor para cada um dos tipos de ocupação do solo referidos. São apresentados na tabela 5.1 os resultados da reflectância da superfície em cada um dos canais anteriormente indicados e os correspondentes desvios padrões calculados sobre os 100 pixeis (áreas de 10 por 10 pixeis) para cada um dos tipos de cobertura do solo (vegetação, solo nu e solo ardido).

Tabela 5.1

Reflectâncias da superfície na região de Sukuza estimadas a partir de imagens LANDSAT7

	Ch.1(0.45-0.52 μm)	Ch2(0.52 - 0.60 μm)	Ch 3(0.63 - 0.69 μm
Solo nu	12%±2%	11%±3%	14%±3%
Vegetação	10%±2%	8%±2%	7%±1%
Solo ardido+solo nu	11%±3%	10%±3%	11%±3%

Os valores obtidos estão de acordo com os valores encontrados na literatura para diferentes tipos de vegetação e solos nus (http://speclab.cr.usgs.gov/spectral.lib06/, http://rst.gsfc.nasa.gov/Sect3/, Daughtry, C.S.T et al, 2000)

No caso de estudo na região de Armilla (37.136 N, 3.633W, 695m), sul de Espanha, a estimativa da reflectância da superfície foi realizada recorrendo às imagens do radiómetro MODIS. Para este fim usaram-se, numa pequena área junto de Armilla, as radiâncias medidas em duas diferentes bandas espectrais, banda 1, 620 -670 nm, com a resolução espacial de 250m e, banda 4, 545 – 565 nm, com uma resolução espacial de 500m. Estas foram corrigidas da reflectância da atmosfera (gases e aerossóis), que foi calculada usando o modelo de transferência radiativa 6S, admitindo um perfil atmosférico de latitudes médias no Verão, em que as propriedades dos aerossóis foram obtidas a partir das radiâncias medidas à superfície com o espectrofotómetro CIMEL e da aplicação do CIRATRA. Consideraram-se as radiâncias medidas às 10:46 UTC, com uma diferença de cerca de uma hora em relação à passagem do satélite (11:45UTC), para dias "quase limpo de aerossóis" e sem nebulosidade. Os dias seleccionados foram 14 e 15 de Julho de 2002, durante a campanha de Veleta 2002, onde a espessura óptica para o comprimento de onda 550 nm foi de 0.05. Dado que a espessura óptica para o comprimento de onda de 1000 nm apresentou o valor de 0.02, indica que a baixa quantidade de serossóis que se observou à hora de passagem do satélite eram do tipo continental rural (o valor do expoente de Angstrom foi de 1.38) e a atmosfera pode considerar-se "limpa".

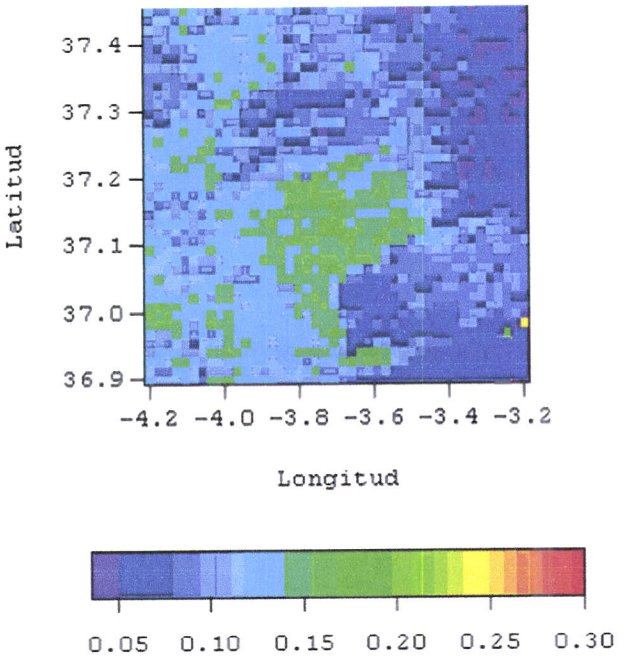

Fig.5.8 Reflectância da superfície para a banda 4 (545-565nm) do MODIS, interpolado para uma resolução espacial de 1.1 por 1.1 km e para o dia 15 de Julho de 2002 durante a campanha Veleta2002

O ajuste dos valores da reflectância de vegetação, $\rho_{veg}(\lambda)$, e de solo, $\rho_{solo}(\lambda)$, recorrendo à metodologia apresentada (4.4.3.2.3), obtidos para os dois canais utilizados do MODIS, reduzidos para a mesma resolução espacial de 1.1 km, foram extrapolados para as curvas das reflectâncias de vegetação e solo para vários comprimentos de onda, correspondentes aos canais do SeaWIFS (ver 3.2.2.2.1.1). Na Fig.5.8 está representada a reflectância da

superfície, para a resolução de 1.1 km, do canal 4 (545-565 nm) do MODIS.

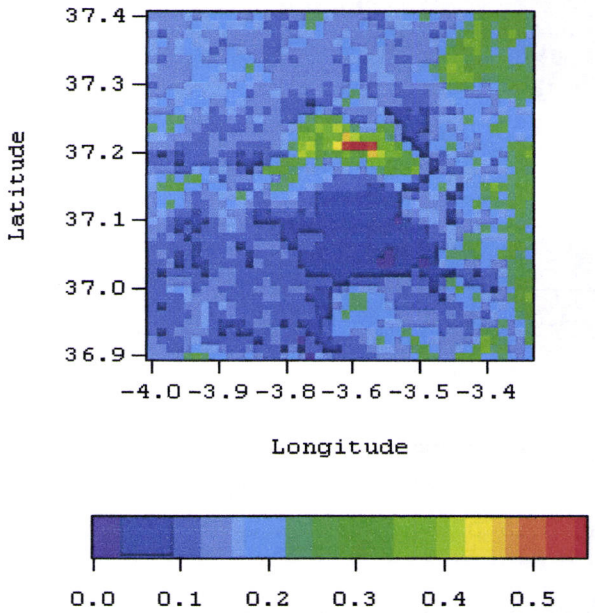

Fig.5.9 – NDVI calculado com os canais 6 e 8 do SeaWIFS, para o dia 15 de Julho de 2002 durante a campanha Veleta 2002

Os valores de reflectância de vegetação, ρ_{veg} (λ), e do solo, ρ_{solo} (λ), obtidos foram depois utilizados para a estimativa da reflectância da superfície aplicada à radiância que chega ao topo da atmosfera (TOA) medida pelo SeaWIFS, utilizando a eq.4.11. Os valores de NDVI são calculados pela eq.4.12. Na Fig.5.9, está representado o NDVI para a região em estudo e para o dia 15 de Julho de 2002. Na Fig.5.10 está representado o resultado dete método para a banda 5 do SeaWIFS (545-565 nm) e para o dia 15 de Julho

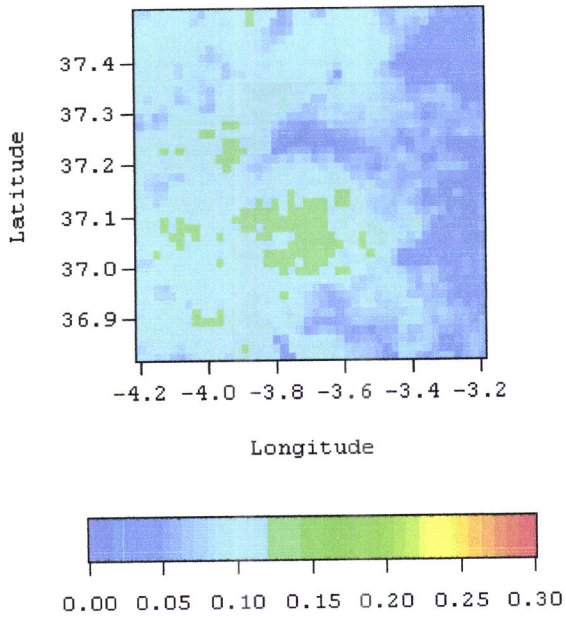

Fig.5.10 - Reflectância da superfície para a banda 5 (545-565nm) do SeaWIFS, utilizando a eq.4.11 e para o dia 15 de Julho de 2002

No caso em estudo, isto é, para a região de Armilla, o melhor ajuste encontrado para a reflectância da vegetação e do solo, para uma cobertura de vegetação com NDVI de 0.20, está apresentado na tabela 5.2.

Tabela 5.2

Melhor ajuste da reflectância da superfície para dois canais do SeaWIFS

Canal	NDVI	Vegetação	Solo	SeaWIFS	MODIS
		ρ_{veg}	ρ_{soil}	ρ_{sur}	ρ_{sur}
555nm	0.20	**0.03**	**0.14**	0.12	0.11
670 nm	0.20	**0.05**	**0.17**	0.15	0.13

Os valores obtidos, $\rho_{veg}(\lambda=550nm, \lambda=670nm)$ e $\rho_{soil}(\lambda=550nm, \lambda=670nm)$, são consistentes com os valores encontrados na literatura para o mesmo tipo de solo e de

vegetação do local (Daughtry, C.S.T et al, 2000, http://speclab.cr.usgs.gov/spectral.lib06/, http://rst.gsfc.nasa.gov/Sect3/).

5.3.2. Estimativa das Propriedades Ópticas de Aerossóis sobre Terra

Foi aplicado o método descrito no capítulo 4, (ponto 4.4.3.2), para se estimarem as propriedades ópticas dos aerossóis sobre terra. As propriedades ópticas estimadas foram: a espessura óptica para vários comprimentos de onda, o expoente de Angstrom, a distribuição de dimensões, o índice de refracção complexo e a função de fase dos aerossóis. Foram seleccionados alguns casos de estudo, que abrangeram uma diversidade de fontes e origens de aerossóis: aerossóis de longo percurso, produzidos pelas queimadas de grande escala, e pela poluição industrial, que chegaram ao local de observação no Sul de África (Skukuza e Inhaca) ou ainda pelo deserto do Sahara que chegaram a Armilla, no sul de Espanha (Granada). Por outro lado, foram ainda caracterizados aerossóis de curto percurso produzidos pela poluição industrial urbana ou os naturais gerados localmente pela acção do vento sobre a superfície do solo, que atingiram o local de obsevação no sul de Espanha, Armilla.

5.3.2.1. Aerossóis de Longo Curso.

5.3.2.1.1. Aerossóis Resultantes de Queimadas e Poluição Industrial/Urbana na Região do Sul de África

No âmbito do projecto SAFARI 2000 foram obtidas as propriedades ópticas dos aerossóis sobre terra na região do Sul de África. Assim foram construídas as Look- Up -Tables, LUT, para aplicação aos dados de radiância do satélite MISR nos comprimentos de onda, 0.446 μm, 0.558 μm, 0.672μm, e na posição do nadir, a partir de dados de espessura óptica e de radiância no plano do almucantar das estações da AERONET em Inhaca (26.0ºS, 32.9º E), ilha situada próximo de Maputo, Moçambique, banhada pelo oceano Indico, e em Skukuza (25.0ºS,31.6ºE), no norte da África do Sul. Escolheu-se o dia 31 de Agosto de 2000, por notícias de fogos em dias anteriores nas regiões do interior de África. Na Fig.5.11 podem se ver as retro-

trajectórias de 48h calculadas em três altitudes diferentes, e, referentes a Inhaca e a Skukuza. Em ambas as localizações e para todas as altitudes os aerossóis observados têm origem no interior de África. A reflectância da superfície foi obtida segundo a metodologia descrita em 4.4.3.2.1 a partir de dados do satélite LANDSAT7.

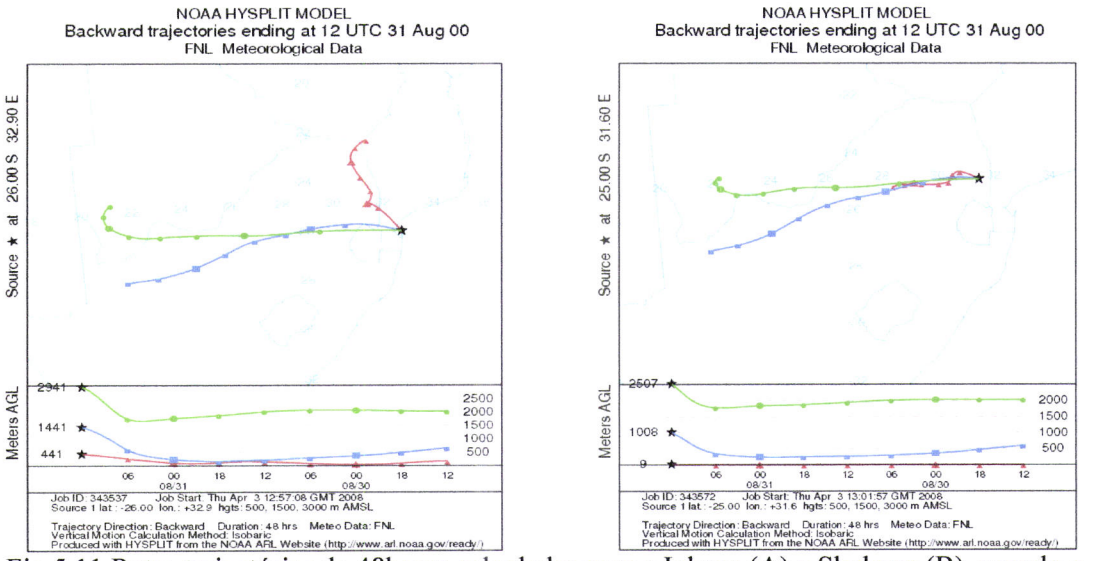

Fig 5.11 Retro trajectórias de 48horas calculadas para a Inhaca (A) e Skukuza (B), usando o modelo HYSPLIT (Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory), http://www.arl.noaa.gov/ready/HYSPLIT

Os valores do expoente de Angstrom, α, calculados para a banda 380nm/1020nm, foram superiores a 1.2 para ambos os locais (Inhaca entre 1.32 e 1.42 e Skukuza entre 1.51 e 1.62), conforme tabela 5.3; o coeficiente de turvação, β, foi da ordem dos 0.2 para ambos os locais (0.2 para a Inhaca e de 0.16 para Skukuza), e a espessura óptica para os 440 nm superior a 0.55, tabela 5.3.

Tabela 5.3

Espessura óptica e parâmetros de Angstrom para Inhaca e Skukuza (31 de Agosto de 2000)

AERONET	Inhaca	Skukuza
δ (440nm)	0.61	0.59
δ (670nm)	0.34	0.30
δ (870nm)	0.24	0.20
α	1.36	1.59
β	0.2	0.16

Estes valores estão na gama dos obtidos para os aerossóis resultantes de queima de biomassa (Dubovik et al, 2002, Elias et al, 2006). O expoente de Angstrom, para aerossóis resultantes da queima de biomassa, tem uma grande variação, com valores superiores a 1.2 e inferiores a 2.2, consoante a região (Dubovik et al, 2002). Estes valores podem ser também encontrados em aerossóis continentais poluídos (industriais/urbano).

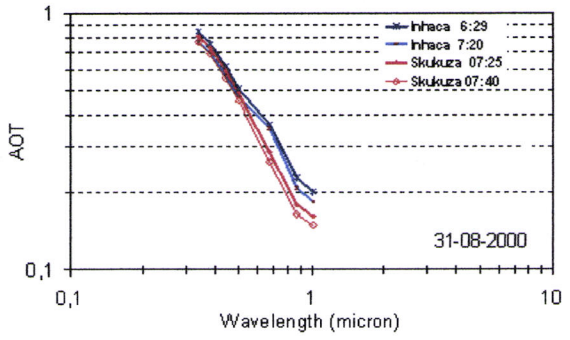

Fig.5.12 Espessura óptica espectral dos aerossóis para Inhaca e Sukuza, dia 31 de Agosto 2000

Recorrendo ao código CIRATRA modificado, e de acordo com a metodologia explicada em 4.2.2, calculou-se o índice de refracção complexo cujo valor foi de 1.4-0.01i para Inhaca e de 1.375-0.01i para Skukuza. O albedo de dispersão simples

calculado para os 870 nm foi de 0.86 e 0.90, respectivamente para Inhaca e Skukuza. Como é sabido, os aerossóis resultantes da queima de biomassa apresentam concentrações elevadas de partículas de carbono, absorventes, produzidas por combustão, sendo, no entanto, muito variável consoante as diferentes origens e, possívelmente, a sua idade, (Dubovik et al, 2002). Assim, encontram-se valores para o albedo de dispersão simples aos 870nm que podem variar entre 0.80 a 0.91 (Dubovik et al, 2002), o que engloba os valores por nós obtidos deste parâmetro óptico dos aerossóis.

Com o mesmo código foi também calculada a função de fase dos aerossóis (Fig.5.13) e a distribuição de dimensões e de volume das partículas (Fig.5.14) para a Inhaca e Skukuza. Nesta última observa-se um modo de acumulação com valores do raio modal entre 0.13-0.17μm característico de aerossóis com partículas pequenas de fumos resultantes de fogos (Holben et al, 2001).

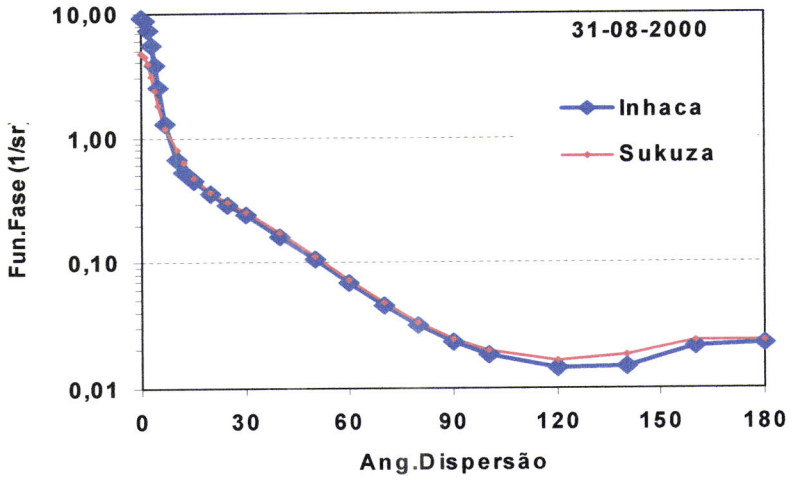

Fig.5.13 Função de fase dos aerossóis para a Inhaca e Skukuza para o dia 31 de Agosto de 2000

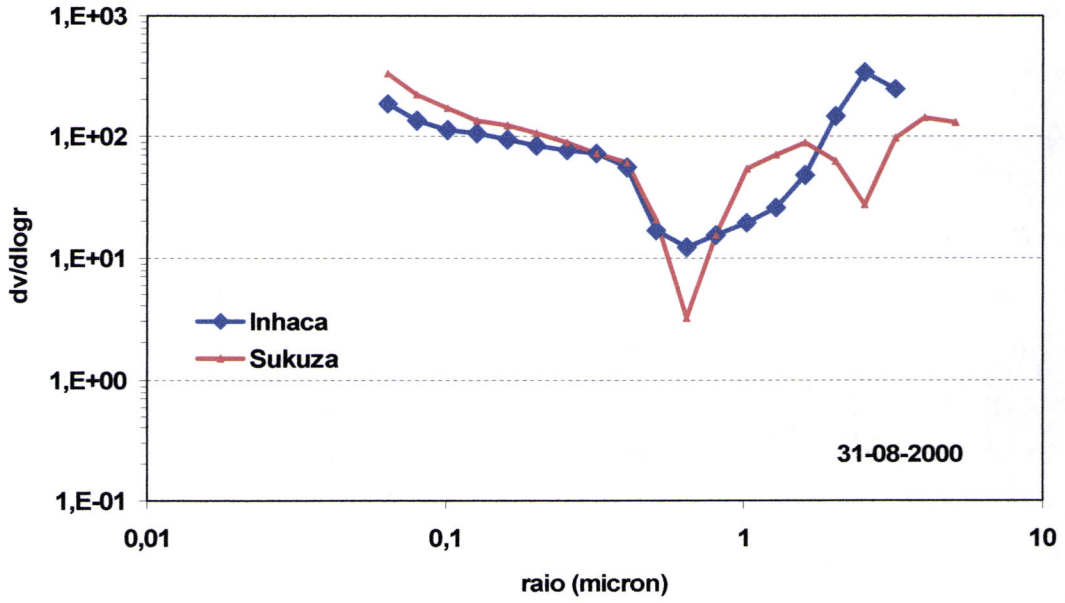

Fig.5.14 - Distribuição opticamente equivalente de volume dos aerossóis para a Inhaca e Sukuza para o dia 31 de Agosto de 2000

Assim, desta análise realizada podemos dizer que os aerossóis observados eram do tipo continental, onde os valores de absorção indiciam ter origem urbano/industriais e/ou biomassa queimada. A análise de trajectórias mostra que as massas de ar atravessam algumas regiões industriais da África do Sul e regiões do interior onde ocorreram queimadas.

Utilizando as propriedades dos aerossóis obtidas a partir das observações da AERONET (Inhaca e Skukuza), atrás representadas (ver Fig.5.12) e, aplicando o método descrito em 4.4.3.2, calcularam-se as Look-Up-Tables construídas para as radiâncias medidas no nadir nos canais visiveis (446 nm, 558 nm e 672nm) do radómetro MISR, representadas nas Fig.5.15 A) (Inhaca) e Fig.5.15 B) (Sukuza), onde se admitiu uma reflectância da superfície de 10%, próximo dos valores esperados para a região. Note-se que este valor de reflectância da superfície e que figura na Tabela 5.1 deve ser o mais próximo possível do esperado, ou seja, correspondente à situação de solo ardido mais solo nu, o que parece indicado para o fim da época seca na região. Note-se também que este valor da reflectância da superfície, utilizado na construção das LUT, foi sendo alterado durante os cálculos, por um processo iterativo de

comparação das espessuras ópticas observadas à superfície (AERONET) e as derivadas do satélite até um erro inferior a 10%.

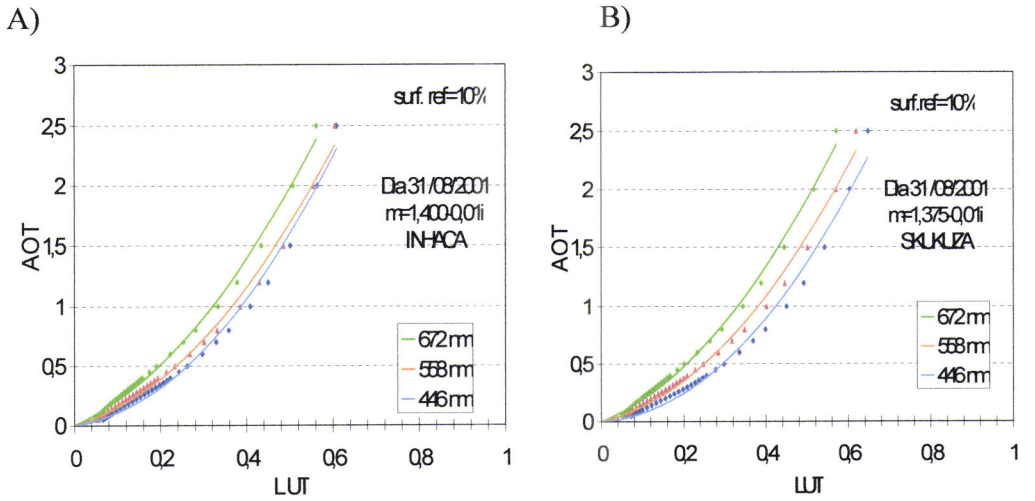

Fig.5.15 – LUT (Look Up Table) para a A) Inhaca e B) Skukuza, usando a reflectancia de superfície de 10%

Este cálculo constítuiu o primeiro passo na derivação das propriedades ópticas dos aerossóis. Na tabela 5.4 encontram se os resultados finais da reflectância da superfície para os diferentes canais, que correspondem a um composito de solo e vegetação, correspondendo a savana para a época seca no Sul de África e que estão dentro dos valores estimados a partir do LANDSAT e apresentados na Tabela 5.1 para a mesma região.

Tabela 5.4

Valores Finais de Reflectância da Superfície

Canais	1 (446 nm)	2 (558 nm)	3(672 nm)
Reflectância Fin.da Sup.	12%	10%	13%

A partir das LUT para região entre Sukuza e Inhaca e dos valores de reflectância obtidos do radiómetro MISR para os mesmos comprimentos de onda, obtiveram-se os

valores das espessuras ópticas espectrais dos aerossóis nos comprimentos de onda 446, 558 e 672 nm e os correspondentes parâmetros de Angstrom, apresentados respectivamente nas tabelas 5.5 e 5.6. Nas mesmas tabelas estão também os correspondentes valores obtidos da AERONET nestes locais. Esta comparação não serve de validação, mas dá uma estimativa de erro com que se podem obter os parâmetros dos aerossóis, (δ_λ, α e β), utilizando este método.

Tabela 5.5

Comparação das espessuras ópticas AERONET/MISR

	(INHACA)			(SKUKUZA)		
	AOT (446nm)	AOT (558nm)	AOT (672 nm)	AOT (446nm)	AOT (558nm)	AOT (672nm)
AERONET	0.58	0.44	0.34	0.60	0.39	0.30
MISR	0.57	0.41	0.33	0.57	0.39	0.30

Tabela 5.6

Comparação dos parâmetros de Angstrom AERONET/MISR

	(INHACA)		(SKUKUZA)	
	Alpha	Beta	Alpha	Beta
AERONET	1.36	0.20	1.59	0.16
MISR	1.37	0.19	1.56	0.16

Para uma melhor estimativa de erro das espessuras ópticas dos aerossóis obtidas anteriormente a partir das radiâncias do radiómetro MISR recorreu-se ao cálculo dos valores das espessuras ópticas dos aerossóis por integração vertical dos coeficientes de dispersão medidos com um nefelómetro (ver 3.2.1.1) a bordo de um avião durante a campanha SAFARI 2000 (ver 3.3.2), cujos valores foram divididos pelo albedo de dispersão simples para o comprimento de onda 870nm, tendo em conta a eq.2.27. Esta comparação das espessuras ópticas obtidas por vias diferentes foi feita para o comprimento de onda dos 450nm, apesar de se ter apenas disponível o albedo de dispersão simples aos 870nm. Os voos foram realizados de forma a obter medições em perfis verticais apenas no

seio da camada de aerossóis. A integração vertical dos coeficientes de dispersão apresentada na eq. 5.1 admitiu que a altitude inferior da camada de aerossóis zmin não é a superfície, mas um valor diferente de 0, que variou de acordo com o voo:

$$\delta_{aer}^{dif}(\lambda) = \int_{z_{min}}^{z_{max}} \tau_{\lambda,aer}^{d}(z)\,dz \qquad \textbf{(eq.5. 1)}$$

No caso presente a integração vertical foi realizada entre as altitudes zmin= 340 m e zmax=3550 m para o local de latitude -22.73 e longitude 31.85, chamado ponto 1; entre as altitudes zmin=177m e zmax=3000 m para o local de latitude 22.66, long=32.35, aqui designado por ponto 2, e, entre as altitudes zmin=350m e zmax=2600m no local com latitude -22.04 e longitude 33.0, designado aqui por ponto 3. Na Fig 5.16 apresentam-se os valores dos perfis verticais dos coeficientes de dispersão medidos com o nefelómetro durantes os voos nos três locais.

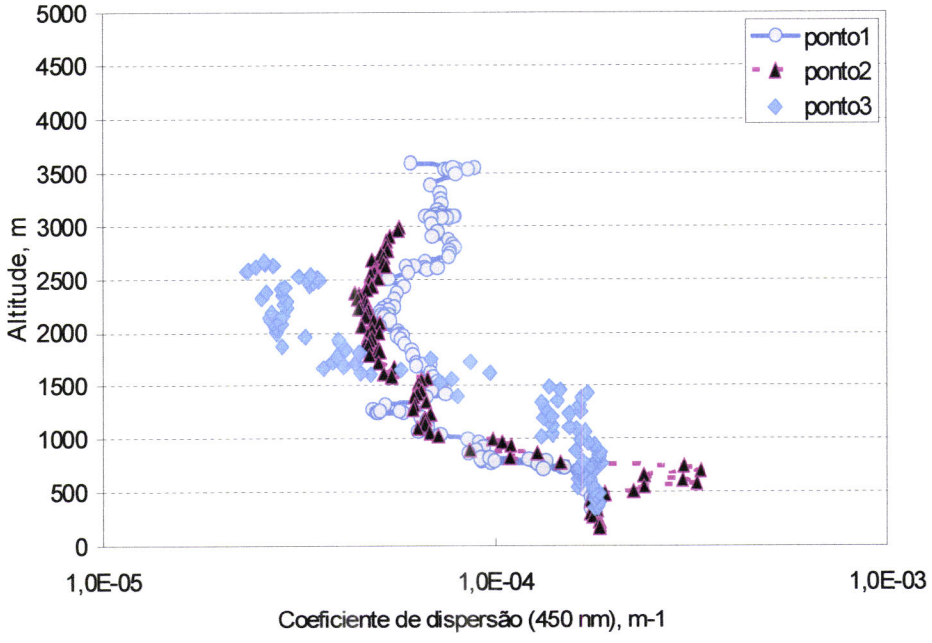

Fig.5.16 Perfil vertical dos coeficientes de dispersão medidos por nefelómetro a bordo de um avião em três locais diferentes, ponto1 (latitude -22.73 e longitude 31.85), ponto 2 (latitude-22.66 e longitude 32.35) e ponto 3 (latitude -22.04 e longitude 33.0)

Da equação 5.1 obteve-se uma estimativa dos valores de espessura óptica dos aerossóis devida apenas à dispersão no comprimento de onda de 450 nm. Para calcular as espessuras ópticas dos aerossóis em cada um destes locais recorreu-se à eq.2.27 onde o albedo de dispersão simples ω_0 foi obtido para o comprimento de onda de 870nm (e não aos 450nm), comparando os valores das espessuras ópticas dos aerossóis da AERONET com as obtidas com o CIRATRA. Assim $\delta_{aer}(450nm) = \delta^{dif}_{aer(\mathbf{neph.})}(450\ nm)\ /\omega_{o(0.87)}$. Este valor de $\delta_{aer}(450nm)$ foi finalmente comparado com a espessura óptica dos aerossóis obtida com o satélite para o comprimento de onda 446 nm, extrapolado para os 450 nm, usando a lei de Angstrom. Os resultados desta comparação encontram-se na tabela 5.7 (Bugalho, L. et al, 2001)

Tabela 5.7

Espessura óptica para o λ = 450 nm para três diferentes locais e comparação com os valores calculados com o nefelómetro

	$\delta_a(450\ nm) = \delta_{sc,a(\mathbf{neph.})}(450nm)/\omega_{o(0.87)}$	$\delta_a(450nm)$ **MISR**
lat=-22.73,long=31.85	0.29	0.37
lat=-22.66,long=32.35	0.33	0.29
lat=-22.04,long=33.0	0.38	0.33

As diferenças entre as espessuras ópticas obtidas com o integral dos coeficientes de dispersão na camada de aerossóis e com os dados de radiância do radiómetro MISR no nadir podem ser devidas à integração vertical dos coeficientes de dispersão começarem a uma altitude diferente da superfície; ao facto de se considerar o albedo de dispersão simples para o comprimento de onda dos 870 nm, obtido com o CIRATRA e não para os 450 nm, apesar de vários estudos indicarem uma pequena variaçãodo albedo de dispersão simples para aerossóis resultante de fogo (Eck, T. et al, 1998, Dubovik et al, 2002), ou ainda à suposição dum albedo de dispersão simples uniforme para toda a região, o que pode não ser real.

Como conclusão podemos dizer que a obtenção dos parâmetros dos aerossóis, relevantes do ponto de vista de clima, como a espessura óptica espectral, a função de fase, a distribuição de dimensões, e o índice complexo de refracção que foram obtidos para os

aerossóis de longo curso que atingiram a região da África do Sul, podem ser estimados sobre terra a partir de dados no nadir do radiómetro MISR, sendo compatíveis com os obtidos com outros métodos de observação (à superfície com a rede AERONET e com os resultados do perfil vertical dos coeficientes de dispersão medidos com nefelómetro a bordo de um avião, desde que conhecido o albedo de dispersão simples)

5.3.2.1.2. Aerossóis do Deserto na Região de Armilla, Sul de Espanha.

Durante a campanha Veleta 2002, na região de Armilla (37.136N, 3.633W e com 695m de altitude), sul de Espanha foram feitas observações da radiância solar directa e das realizadas no plano almucantar, com o radiómetro CIMEL (ver 3.3.3). No dia 18 de Julho de 2002 foram observados nesta região aerossóis de origem do deserto do Sahara. Na Fig 5.17 pode observar-se para este dia (curva a castanho) o valor do expoente de Angstrom de 0.46, calculado para o intervalo de comprimento de onda 440nm/1020nm, e a espessura óptica aos 440 nm cujo valor é superior a 0.3, conforme Fig. 5.18.

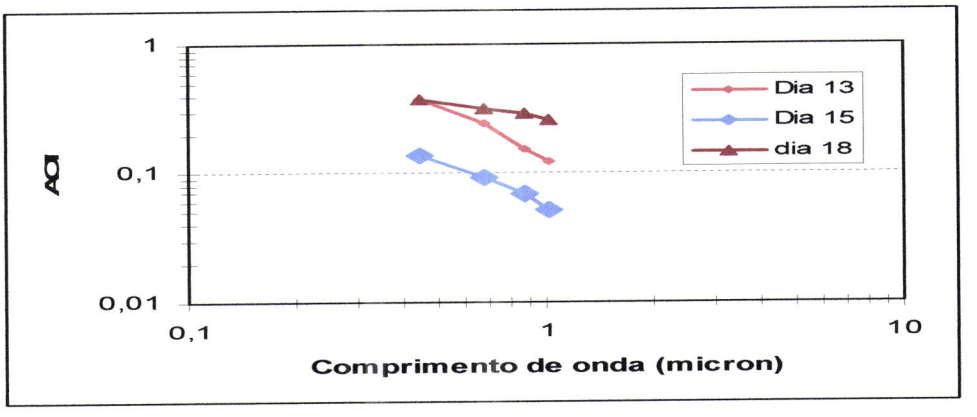

Fig.5.17 Espessura óptica espectral para os dias 13, 15 e 18 de Julho de 2002 em Armilla

Sendo o valor do expoente de Angstrom inferior a 0.5 e a espessura óptica aos 440 nm superior a 0.3 indica tratar-se de aerossóis caracterizados por apresentarem um modo de partículas grandes dominante, ou seja de aerossóis do deserto, (Dubovik et al, 2002). O valor do índice de refracção obtido por inversão utilizando o CIRATRA, foi de 1.45-0.001i, o que está dentro da gama de valores para este tipo de aerossol (Tanré, D.,et al, 2001; Dubovik et al, 2002).

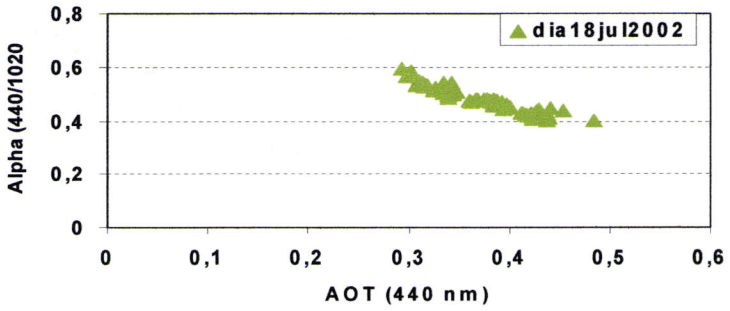

Fig.5.18 - Espessura óptica aos 440nm e o valor do coeficiente de Angstrom (alpha) para o dia 18 de Julho de 2002 em Armilla

O estudo das retrotrajectórias de 48h, para os níveis dos 1500m e 3000m de altitude, mostra que estes aerossóis tiveram origem em regiões do Norte de África, Fig 5.19

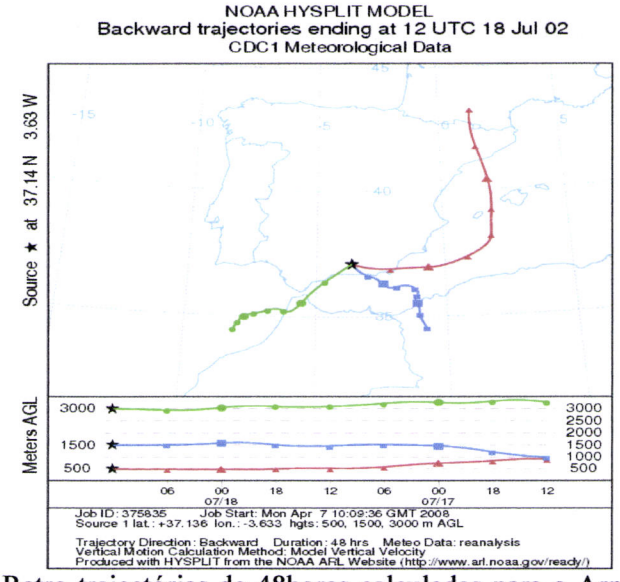

Fig 5.19 -Retro trajectórias de 48horas calculadas para a Armilla para o dia 18 de Julho de 2002, usando o modelo HYSPLIT (Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory), http://www.arl.noaa.gov/ready/HYSPLIT

Na distribuição de volume, opticamente equivalente, dos aerossóis, obtida pelo CIRATRA, por inversão dos dados de radiância directa e no plano do almucantar medidos para este dia, observa-se na Fig.5.20, que o modo de partículas grandes é dominante, o que é característica dos aerossóis de poeiras do deserto.

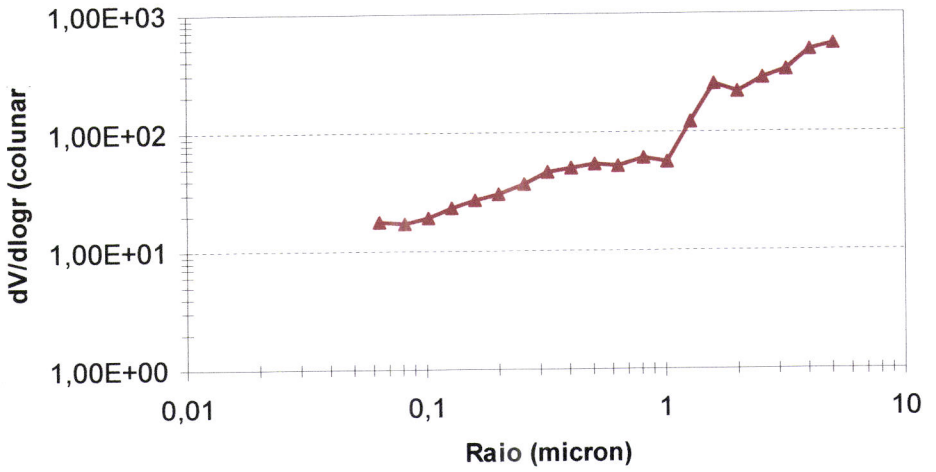

Fig.5.20 - Distribuição de volume opticamente equivalente dos aerossóis observado no dia 18 de Julho de 2002 em Armilla

A partir das LUT construídas sobre a região de Armilla e da aplicação da metodologia descrita em 4.4.3.2.2. ao radiómetro SeaWIFS (a bordo de satélite) foram obtidos os valores de espessura óptica espectral bem como os parâmetros de Angstrom para este dia, caracterizado por aerossóis do deserto. Os resultados de espessura óptica para os comprimentos de onda 443 nm e 558 nm, assim como o valor dos parâmetros de Angstrom (α,β), obtidos com o radiómetro SeawIFS foram comparados, para a localização de Armilla e para a hora de passagem do satélite, com as espessuras ópticas nos mesmos comprimentos de onda obtidas a partir de observação remota à superfície efectuada com CIMEL. O resultado está representado na tabela 5.8.

Tabela 5.8

Comparação para Armilla, entre as espessuras ópticas aos 443 e 555nm e os coeficientes de Angstrom obtidos a partir de satélite e de observações à superfície(CIMEL) para 18 de Julho de 2002 (aerossóis do deserto)

SeaWIFS				Por medição com CIMEL				
α	β	**AOT 443** (nm)	**AOT 555** (nm)	**Ref.Index**	α	β	**AOT 443** (nm)	**AOT 555** (nm)
0.51	0.23	0.33	0.29	1.45 -0.001i	0.51	0.23	0.34	0.30

Os valores do expoente de Angstrom obtidos com os dados do radiómetro SeaWIFS para o dia 18 de Julho, numa situação de aerossóis do deserto, são em toda a região à volta de Armilla bastante baixos, inferiores a 0.5, conforme pode ser comprovado pela análise da Fig.5.21. A espessura óptica aos 555nm, obtida por satélite mostra valores da ordem dos 0.25 ou

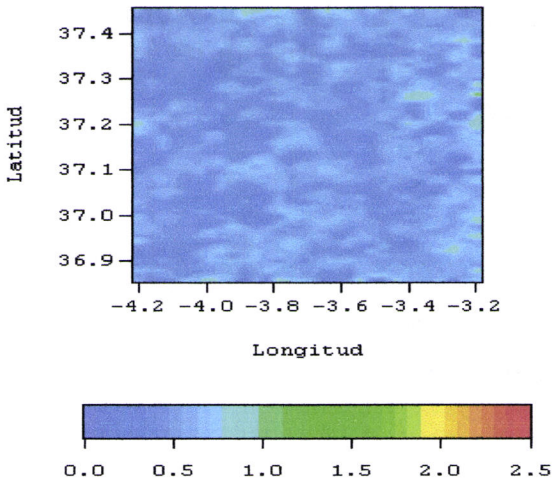

Fig.5.21 – Expoente de Angstrom obtido para o dia 18 de Julho de 2002, numa situação de aerossóis do deserto, na região de Armilla

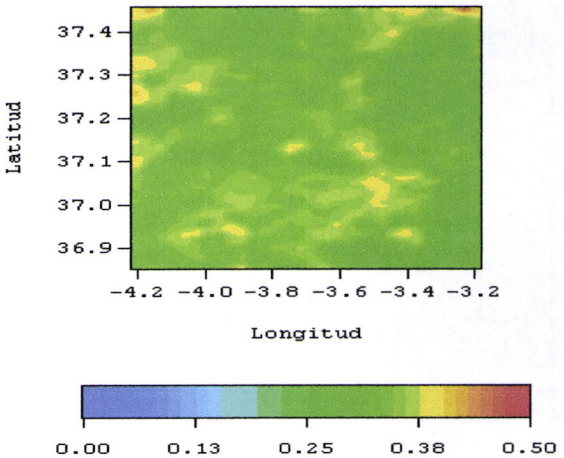

Fig.5.22 – Espessura óptica aos 555nm obtida com o radiómetro SeaWIFS no dia 18 de Julho de 2002, na região de Armilla, num episódio de aerossol desértico.

superiores em quase a mesma região conforme pode ser comprovado pela análise da Fig.5.22.

5.3.2.2. Aerossóis de Curto Percurso: Aerossóis Continental Poluído (Poluição Urbana Local) na Região de Armilla

Durante a campanha Veleta 2002, na região de Armilla (37.136N, 3.633W e com 695m de altitude), sul de Espanha, foram observados aerossóis do tipo continental poluído, no dia 13 de Julho, e do tipo continental limpo, no dia 15 de Julho. conforme pode ser visto na Fig 5.17. Os valores do expoente de Angstrom obtidos na gama espectral 440-1020nm, correspondentes a estas duas situações, são respectivamente de 1.35 e 1,14 e as espessuras ópticas dos aerossóis para o comprimento de onda de 440nm foram, no dia 13 de Julho,em geral, superiores a 0.2 enquanto que para o dia 15 de Julho se situaram entre 0.1 e 0.2, conforme pode ser visto na Fig. 5.23. De acordo com a Fig.5.24 A) as retrotrajectórias de 48 horas em todas as altitudes (superfície,

1500m e 3000m) indicam para o dia 13 de Julho a origem dos aerossóis na região do Atlântico com passagem por várias regiões do interior da Peninsula Ibérica, enquanto que na Fig.5.24 B) referente ao dia 15 de Julho a origem dos aerossóis em todas as altitudes é o norte da Europa, ou local (a 500m).

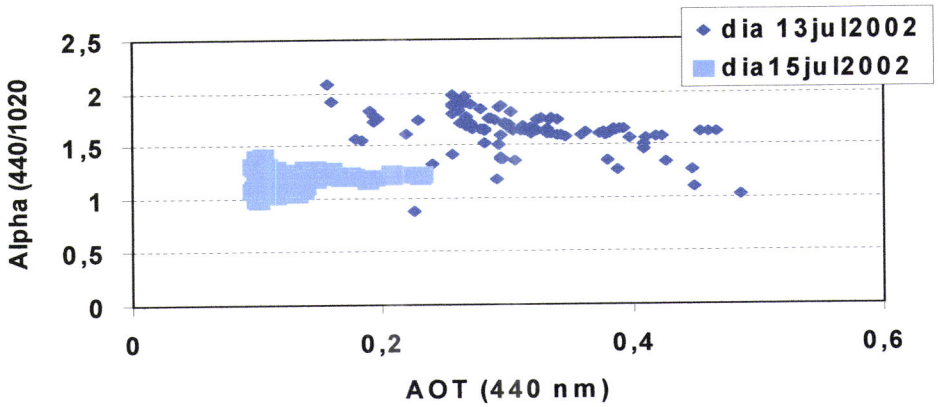

Fig.5.23 Espessura Óptica aos 440nm e o valor do coeficiente de Angstrom (alpha) para os dias 13 e 15 de Julho de 2002 em Armilla

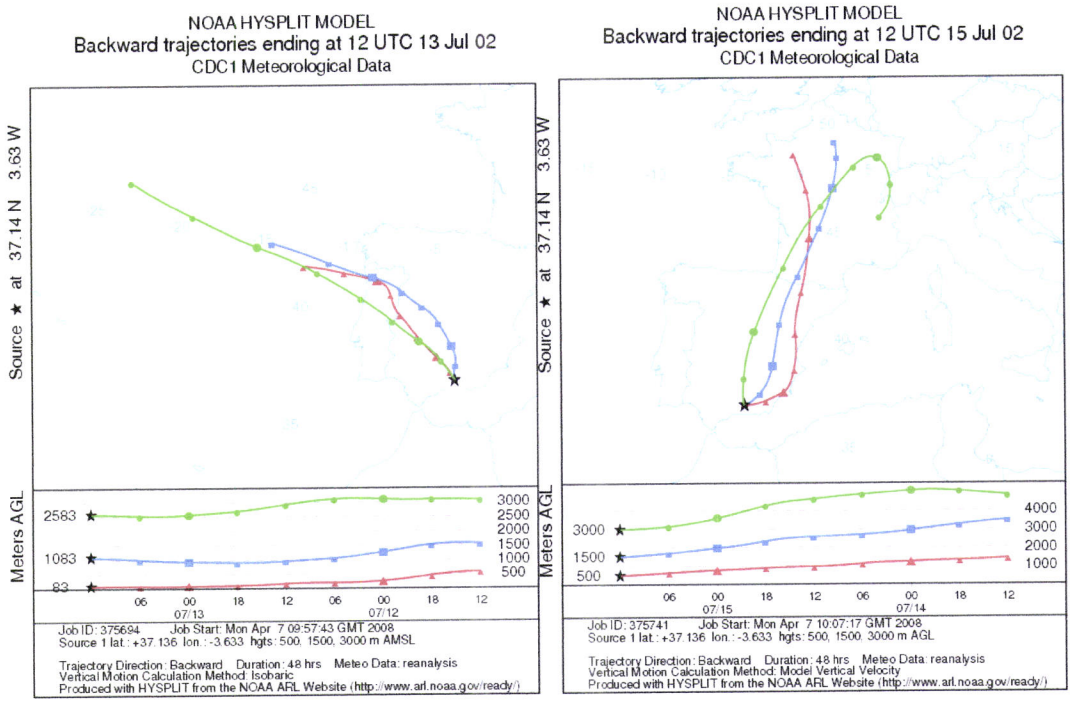

Fig. 5.24 -Retro trajectórias de 48horas calculadas para a Armilla para o dia 13 de Julho de 2002 (A), dia 15 de Julho de 2002 (B), usando o modelo HYSPLIT (Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory), http://www.arl.noaa.gov/ready/HYSPLIT

Na distribuição dos volumes dos aerossóis, ópticamente equivalente, (Fig.5.25), obtida pela inversão dos dados de radiância directa e no plano do almucantar medidos durante a campanha, observa-se que nestes dias é dominante o modo de pequenas partículas, especialmente no dia 13 de Julho dominada por poluição continental.

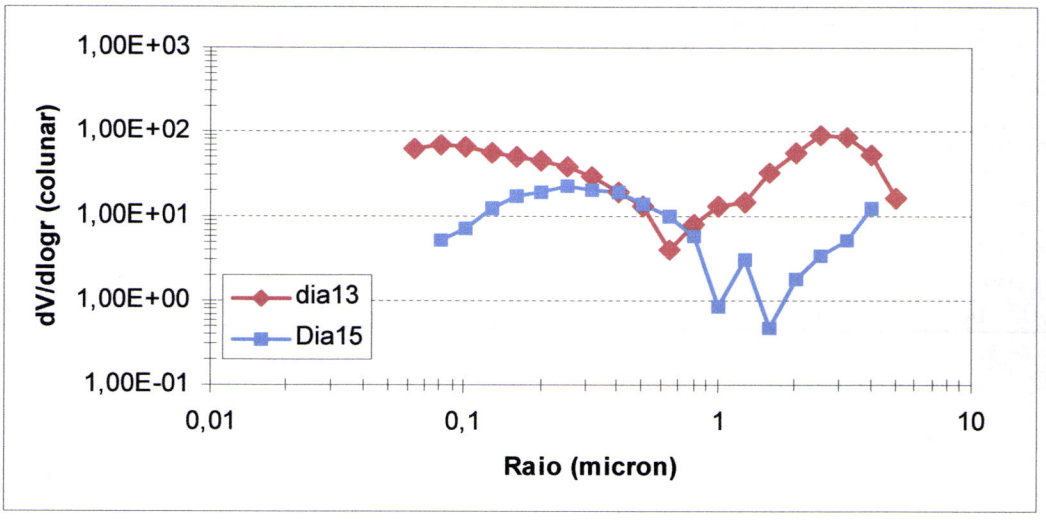

Fig 5.25 Distribuição de volume opticamente equivalente dos aerossóis observado nos dias 13 e 15 de Julho de 2002 em Armilla

As propriedades ópticas dos aerossóis continentais mostram uma significativa variabilidade, dependendo da combinação entre factores naturais e antropogénicos que influênciaram a formação do aerossol, assim como as condições da sua evolução e transporte, (Dubovik et al, 2002).

A partir das LUT construídas sobre a região de Armilla e da aplicação da metodologia descrita em 4.4.3.2.2. ao radiómetro SeaWIFS (a bordo de satélite) foram obtidos os valores de espessura óptica espectral dos aerossóis nos comprimentos de onda 443 nm e 558 nm bem como os parâmetros de Angstrom para estes dias. Ambos os parâmtros (δ_{443}, δ_{555}, α e β) foram comparados, para a região de Armilla, para a mesma hora de passagem do satélite e para cada um dos dias indicados, com os correspondentes parâmetros obtidos das observações efectuadas com CIMEL. Os resultados estão apresentados na tabela 5.9.

Tabela 5.9

Comparação para Armilla, entre as espessuras ópticas aos 443 e 555nm e os coeficientes de Angstrom obtidos a partir de satélite e de observações à superfície(CIMEL) para os dias 13 e 15 de Julho de 2002

	SeaWIFS				Por medição com CIMEL				
	α	β	**AOT 443** (nm)	**AOT 555** (nm)	**Ref.Index**	α	β	**AOT 443** (nm)	**AOT 555** (nm)
Continental Poll (13/07/2002)	1.08	0.11	0.26	0.21	1.60 -0.01i	1.35	0.08	0.24	0.19
Continental clean (15/07/2002)	0.99	0.09	0.13	0.11	1.52 +0.00i	1.14	0.05	0.13	0.10

Os valores do expoente de Angstrom obtidos com os dados do radiómetro SeaWIFS para o dia 15 de Julho, caracterizado por aerossóis do tipo continental limpo, são em toda a região da ordem de 0.7 a 1.3 conforme pode ser comprovado pela análise da Fig.5.26. A espessura óptica aos 555nm, obtida por satélite mostra valores da ordem dos 0.10 a 0.25 em quase toda a região conforme pode ser comprovado pela análise da Fig.5.27.

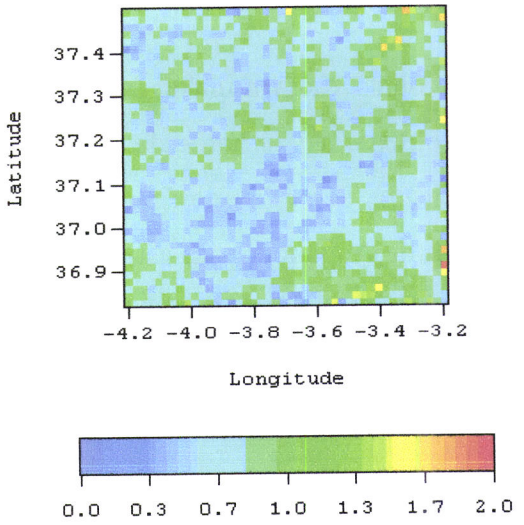

Fig.5.26 – Expoente de Angstrom obtido para o dia 15 de Julho de 2002, numa situação de aerossóis de aerossóis continental limpo, na região de Armilla

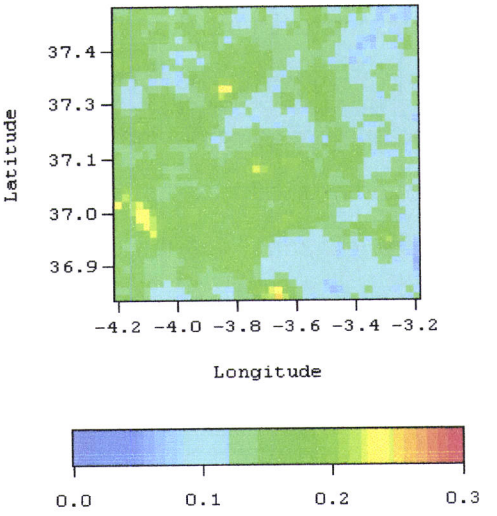

Fig.5.27 – Espessura óptica aos 555nm obtida com o radiómetro SeaWIFS no dia 15 de Julho de 2002, na região de Armilla.

CAPÍTULO VI

Conclusões e Trabalho Futuro

6.1 Conclusões

Os aerossóis, presentes na atmosfera em grande variedade de dimensões e de composição química, têm um importante papel no clima e na qualidade do ar, devido às suas interações com a radiação solar e de grande comprimento de onda, e à sua participação em reacções químicas, nos processos de formação, desenvolvimento e tempo de vida das nuvens e na modificação do albedo das nuvens. De notar que, apesar do maior conhecimento que hoje existe sobre aerossóis atmosféricos, continuam ainda a representar uma das maiores incertezas nos estudos de alterações climáticas (IPCC 2007).

Os aerossóis atmosféricos são de entre os componentes da atmosfera os mais díficeis de monitorizar devido à sua grande variabilidade espacial, temporal, e, à grande variedade de composições quimicas, dimensões e formas. As utilizações de diferentes métodos e plataformas de observação ("in situ" e detecção remota à superfície e em satélites) complementam-se e tornam possível uma melhor caracterização das propriedades físicas dos aerossóis atmosféricos numa determinada região, assegurando assim uma mais adequada resposta às necessidades de introdução desta informação nos modelos (melhores parametrizações à escala regional) e redução das incertezas dos seus impactos sobre o clima.

Durante esta tese foram utilizados diferentes métodos de observação, mostrando-se a sua complementaridade e abordando os problemas da interpretação dos resultados (ver 5.2 e 5.3). Estes estudos devem ser completados ainda com interpretação das condições sinópticas que afectam a região e, particularmente, recorrendo ao estudo de trajectórias, (ver 5.3.2).

Os objectivos da investigação que conduziram a esta tese foram os seguintes:

1) Obtenção das propriedades ópticas e físicas dos aerossóis atmosféricos sobre terra designadamente da espessura óptica, do índice de refracção, da distribuição de

dimensões, da função de fase e do albedo de dispersão simples, combinando a observação remota de superfície e de satélite, e recorrendo aos modelos de inversão CIRATRA e de transferência radiativa IMS (Nakajima e Tanaka, 1988).

2) A utilização de diferentes métodos de observação dos aerossóis atmosféricos de modo a permitir a sua caracterização num local e contribuir para melhores parametrizações à escala regional.

3) O estudo da influência da reflectância da superfície nos fluxos ascendente e descendente da radiação solar, para aerossóis de poeiras do deserto, e o impacto no balanço de radiação solar, quer à superfície quer no topo da atmosfera.

O primeiro objectivo, considerado como principal, enquadra-se na preocupação de caracterizar os aerossóis atmosféricos sobre terra, recorrendo a dados de satélite.

O código de inversão CIRATRA, originalmente desenvolvido por Von Hoyningen-Huene foi objecto de grandes alterações durante esta tese porforma a obterem-se as propriedades físicas e químicas dos aerossóis atmosféricos a partir das suas propriedades ópticas, ou seja, as propriedades dos aerossóis, opticamente equivalentes, na coluna atmosférica. As alterações introduzidas permitiram uma maior versatibilidade na utilização do modelo e a possibilidade de obter o índice de refracção complexo. Mostrou - se ser possível aplicar, com facilidade, este modelo com as alterações introduzidas, permitindo uma simples adaptação aos objectivos. Os resultados de diversas inversões com o CIRATRA modificado mostraram ser comparáveis com os resultdos obtidos a partir de outros modelos de inversão (ver 4.2.3.1). Uma das grandes vantagens do programa CIRATRA, não afectada pelas alterações introduzidas, é o facto dos efeitos do erro de estimativa da reflectância da superfície não se fazerem sentir, significativamente, nos resultados da inversão. Este facto deve-se a que o CIRATRA utiliza os valores da radiância espectral dispersa normalizados e, que a inversão destes valores, para obter as propriedades dos aerossóis (distribuição de dimensões das partículas e função de fase), se faz nos pequenos ângulos azimutais do almucantar, na zona da auréola (0°-25°), onde os efeitos da reflectância da superfície não se fazem sentir de modo significativo, (Elias, T et al, 2002).

No caso desta tese, contrariamente ao que é regra noutros métodos, parte-se do conhecimento do "tipo" e características dos aerossóis sobre um local, por observação remota à superfície. Esta informação é, posteriormente, utilizada para, a partir dos dados de satélite, obter o "tipo" e as caracerísticas dos aerossóis numa região, que inclua o local de observação à superfície.

Os valores obtidos das espessuras ópticas e dos parâmetros de Angstrom, obtidos com a aplicação da metodogia utilizada neste trabalho, quer para os aerossóis de longo curso, originados em queimadas ou na poluição industrial na região da África do Sul, ou os originados no deserto do Sahara, quer para os aerossóis de curto percurso, são comparáveis com os valores da rede AERONET para os mesmos comprimentos de onda e nos mesmos píxeis.

A aplicação desta metodologia para a obtenção das propriedades ópticas dos aerossóis numa região utilizando dados de satélites implicou a estimativa com incerteza reduzida da reflectância da superfície. Nos trabalhos desenvolvidos durante esta tese utilizaram-se duas metodologias diferentes, consoante a disponibilidade de dados para as regiões em estudo. A aplicação destas metodologias conduziu a resultados da reflectância da superfície que estão de acordo com os encontrados na literatura para os mesmos tipos de ocupação dos solos observados.

O segundo objectivo enquadra-se na necessidade dum melhor conhecimento das propriedades ópticas e físicas dos aerossóis atmosféricos num local. Este conhecimento contribui para um melhor acompanhamento dos aerossóis atmosféricos num local. O recurso às rectrotrajectórias revelou-se de grande utilidade para confirmar as origens e percursos das massas de ar que transportam os aerossóis, identificados localmente por observação das propriedades "in situ" ou por detecção remota de superfície em toda a coluna atmosférica, conforme foi apresentado na secção5.2.

A utilização destes diferentes métodos de observação, conjuntamente com a análise de trajectórias e das sondagens aerológicas, permitiu identificar, para além do tipo de aerossóis, a existência de mais de uma camada. Na verdade, a análise dos dados dos aerossóis atmosféricos obtidos para a coluna atmosférica (a partir de detecção remota de superfície) não permite identificar a existência de uma ou mais camadas de aerossóis. No entanto recorrendo a outros métodos de observação, como seja a medição dos coeficientes de dispersão com o nefelómetro, a diferentes altitudes foi possível

identificar vários "tipos de aerossóis" na mesma coluna atmosférica. A interpretação dos dados deve ser ainda acompanhada da análise de trajectórias para várias altitudes, da análise das condições meteorológicas locais e das características da região. Este facto aponta para a conclusão de que a monitorização dos aerossóis num local é possível, mas díficil de automatização, exigindo interpretação dos dados de observação.

O último objectivo deste trabalho está relacionado com a utilização do programa CIRATRA e do código de transferência radiativa IMS de Nakajima e Tanaka, 1988, para o estudo da influência de diferentes reflectâncias do solo no forçamento radiativo devido aos aerossóis do deserto, uma vez que estes são abundantes tanto ao nível global (Penner et al, 2001) como também ao nível regional (Belo, N., 2004).

O estudo do forçamento radiativo, para o espectro da radiação solar, devido aos aerossóis do deserto mostrou ser em geral positivo, indicando portanto arrefecimento no Topo da Atmosfera (TOA), mas dependente da reflectância da superfície e da absorção do aerossol. Para os casos em que a reflectância da superfície era mais elevada e a absorção do aerossol ligeiramente maior (parte imaginária do índice de refracção de -0.005) obtiveram-se valores negativos desse forçamento radiativo, ou seja, indicando aquecimento no topo da atmosfera. No que respeita ao forçamento radiativo, no espectro de radiação solar, devido aos aerossóis e à superfície os valores encontrados foram sempre negativos, para a gama de reflectâncias da superfície analisasadas e independente das propriedades dos aerossóis.

Como comentário final pode afirmar-se que as alterações introduzidas no código CIRATRA permitiram uma melhor caracterização dos aerossóis e mais fácil aplicação a diferentes estudos de aerossóis; os métodos de observação remota de superfície e de observação local "*in situ*" tornaram possível a caracterização dos aerossóis num local e na coluna atmosférica; a utilização da combinação da observação remota de superfície e de satélite e a metodologia de análise seguida permitiram extrapolar as características dos aerossóis para uma região em torno do local de observação.

6.2 Trabalho Futuro

Uma das limitações da aplicação do CIRATRA é a necessidade de previamente obter uma base de dados de aplicação da teoria de Mie para diferentes índices de refracção complexo. Desta forma a pesquisa do índice de refracção é feita de forma discreta, em que a gama e o passo da variação da parte real e imaginária do índice de refracção são escolhidos antes da aplicação do código. No futuro serão de incluir as subroutinas de Mie para que esta gama de variação seja mais versátil.

Numa região determinada, onde se pretenda acompanhar as variações das características dos aerossóis atmosféricos, poder-se-á preparar, no futuro, as LUT, de forma a serem aplicadas duma forma mais automática, desde que se conheça a climatologia dos aerossóis atmosférico, nessa região, relacionanda com as massas de ar, e, as variações anuais da reflectância da superfície. A maioria dos aerossóis atmosféricos tem origem junto da superfície, e as massas de ar passam a conter as partículas dos aerossóis das regiões de origem ou que atravessam, e, esta associação deve ser estudada para cada região. Assim, é possível associar a um tipo de massa de ar os tipos de aerossóis característicos.

REFERÊNCIAS

Alados-Arboledas, L., F.J.Olmo, A.Alcantara, H. Lyamani, J. Lorente, A. Martinez-Lozano, V. Cachorro, A. Labajo, B. De la Morena, A. Diaz, M. Pujadas, H. Horvath, A.M.Silva, G. Pavese, **2004** – " Veleta 2002 Field Campaign: a General Overview" – Óptica Pura Y Aplicada, 37, pag 3271-3276

Anderson, T.L., and J.A. Ogren, **1998**, "Determining aerosol radiatve properties using the TSI 3563 integrating nephelometer", Aerosol Sci. Technol., 29, 57-69.

Anderson, T.L., D.S. Covert, S.F. Marshall, M. L. Laucks, R.J. Charlson, A.P. Waggoner, J.A. Ogren, R. Caldow, R. Holm, F. Quant, G. Sem, A. Wiedensohler, N.A. Ahlquist, and T.S. Bates, **1996**, "Performance characteristics of a high-sensitivity, three-wavelength, total scatter/backscatter nephelometer", J. Atmos. Oceanic Technol., 13, 967-986.

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

Andreae, M.O., et al, **1994**,- Biomass Burning in the Global Environment: First results from the IGAC/BIBEX field campaign STARE/TRACE-A/SAFARI-92. In Global Atmospheric Biospheric Chemistry, ed. G. Prinn,pp83-101, Plenum, New York.

Angstrom, A., **1929**, –"On the Atmospheric Transmission of Sun Radiation and on Dust in the air" – Geogr. Ann., 11, 156-166.

Ansmann, A., M. Riebesell, U.Wandinger, C.Weitkamp, E.Voss, W. Lahmann and W.Michaelis, **1992** – "Combined Raman Elastic – Backscatter LIDAR for Vertical Profiling of Moisture, Aerosol Extinction, Backscatter and LIDAR Ratio" – Applied Physics B: Lasers and Optics, Vol.55, N°1, 18-28

Bassett, J.R., G.W. Zhiyong, Lin, **1993**, "Breaking global temperature records after M.Pinatubo" Climate Change, 25, 179-184

Belo, Nuno, **2004** - "Caracterização dos aerossóis à superfície na região de Évora" Licenciatura em Ciências Geofísicas- ramo Meteorologia, Faculdade de Ciências, Universidade de Lisboa, Dezembro de 2004, 118pp.

Bergin, M.H., Schwartz, S.E., Halthore, R.N., Ogren, J.A., Hlavka, D.L., **2000**, "Comparison of aerosol optical depth inferred from surface measurements with that determined by Sun – photometry for cloud-free conditions at a continental US site" – Journal of Geophysical Research, 105, 6807-6816

Bingen, C., D. Fussen, and F. Vanhellemont, 2004, "A global climatology of stratospheric aerosol size distribution parameters derived from SAGE II data over the period 1984–2000: 1. Methodology and climatological observations", Journal of Geophysical Research, 109, D06201, doi:10.1029/2003JD003518.

Bodhaine, B.A, N.Wood, E.Dutton and J.Slusser, **1999**, "On Rayleigh optical depth calculations" – J. Atmos. Oceanic Technol., 16, 1854-1861.

Bodhaine, B.A, **1995**, – "Aerosol Absorption Measurements at Barrow, Mauna Loa and the South Pole" – Journal of Geophysical Research, Vol 100, No.D5, 8967-8975.

Bodhaine,B.A.,**1979**, "Measurement of the Rayleigh scattering properties of some gases with a nepfelometer" Appl. Opt.,18,121-125

Bohren, C.F., and D.R. Huffman, **1983**: "Absorption and Scattering of Light by Small Particles" (Wiley-Interscience, New York).

Brenguier, J.L., Chuang, P.Y., Fouquart, Y., Johnson, D.W., Parol, F., Pawpowska, H., Pelon, J., Schuller, L., Schroder, F. and Snider, J., **2000** – An overview of the ACE2 Cloudycolumn closure experiment"- Tellus, 52B, 815-827

Boucher, Olivier, **1998** – "On Aerosol Direct Shortwave Forcing and the Henyey-Greenstein Phase Function", J. of the Atmosph. Sciences, Vol. 55, pag. 125-134

Bower, B.K.N. T.W. Choularton, M.W. Gallagher, K.M. Beswick, M.J. Flynn, A.G. Allen, B.M. Davison, J.D. James, L. Robertson, R.M. Harrison, C.N. Hewitt, J.N. Cape, G.G. McFadyen, C. Milford, M.A. Sutton, B.G. Martinsson, G. Frank, E. Swietlicki, J. Zhou, O.H. Berg, B. Mentes, G. Papaspiropoulos, H.C. Hansson, C. Leck, M. Kulmala, P. Aalto, M. Vakeva, A. Berner, M. Bizjak, S. Fuzzi, P. Laj, M.C. Facchini, G. Orsi, L. Ricci, M. Nielsen, B.J. Allan, H. Coe, G. McFiggans, J.M. C. Plane, J.L. Collett, K.F. Moore, D.E. Sherman, **2000**, "ACE-2 HILLCLOUD. An overview of the ACE-2 ground-based cloud experiment", Tellus, 52B, 750-778.

Bugalho, L. A.M. Silva, T. Elias, S. Piketh, **2001**, "Aerosol optical thickness retrieval from MISR satellite during a biomass burning episode in SAFARI2000", Journal of Aerosol Science, Vol. 32, Suppl.1, Proceedings of European Aerosol Conference, Leipzig, S415-S416.

Bugalho, L., W. von Hoyningen-Huene, A.M. Silva, J. Heintzenberg, S.Henning, S.Philippin, **1999**, "Comparison of Volumetric Physico-Chemical Properties between two Different Sites during ACE-2 CLEARCOLUMN" – Proceedings of 6Th Scientific Conference of the International Global Atmospheric Chemistry Project, September 13-17, Bologna.

Bugalho, L. A.M.Silva ,**1997**, – "Air Masses and the Origin of Aerosols Reaching the Southern West Coast of Portugal during Summer" – Visual Air Quality: Aerosols and Global Radiation Balance Conference Proceedings, Vol.I pag 1161, Setembro de 1997

Bugalho, L. e F. Espírito Santo, **1996**, "Influência de erupções vulcânicas na temperatura do ar em Portugal Continental. Caso da erupção da Ilha do Fogo" – Proceedings do Simpósio Internacional " A erupção vulcânica de 1995 na Ilha do Fogo, Cabo Verde". Fundação Gulbenkian, Portugal, pag 293-307, Setembro de 1996.

Carrico, C. M. ; Rood, M. J. ; Ogre, J. A., **1998** – "Aerosol light scattering properties at Cape Grim, Tasmania, during the First Aerosol Characterization Experiment (ACE 1)", Journal Geophysical Research, 1998, vol.103, D13, pag 16565-16574

Carvalho, R., **1998** - "Características das massas de ar em Portugal Continental- Texto revisto de uma memória elaborada no Serviço Meteorológico Nacional em 1954"- Publicação Interna do I.M., 1998

Charlson, R.J., T.L.Anderson, H.Rodhe, **1999**, "Direct climate forcing by anthropogenic aerosols: Quantifying the link between atmospheric sulfate and radiation", Contr.Atmos.Phys., 72, 79-94

Chylek, P., and J. Wong, **1995**, "Effect of absobing aerosols on global radiation budget", Geophys. Res. Lett., 22, 929– 931.

Collins, D. R., et al., **2000**, "In situ aerosol size distributions and clear column radiative closure during ACE-2", Tellus, Ser. B, 52, 498–525.

Covert, D.S., and J.Heintzenberg, **1993**, - "Size distribution and Chemical properties of aerosol at NY Alesund, Svalbard" Atmos. Environ., 27A, 2989-2997.

Curcio, J.A., **1961**, "Evaluation of atmospheric aerosol particle size distribution from scattering measurements in the visible and infrared", Journal Opt. Soc. Amer., 51, 548-551

Cutten, D.R., **1974** – Rayleigh scattering coefficients for dry air carbon dioxide and Freon-12 .Appl.Opt.,13, 468- 469.

d'Almeida, G. A., P. Koepke, and E. P. Shettle, **1991**, "Atmospheric Aerosol:Global Climatology and Radiative Characteristics", A. Deepak, Hampton,Va..

d'Almeida, G., **1987**, "On the variability of desert aerosol radiative characteristics," J. Geophys. Res. 92, 3017--3026.

Daughtry, C.S.T., C.L.Walthall, M.S.Kim, E.Brown de Colstoun and J.E.McMurtrey, **2000**, - "Estimating Corn Leaf Chlorophyll Concentration from Leaf and Canopy Reflectance", Remote Sensing of Environment, 74, pag 229-239

Deepak,A. and Gerber,H.E.,Eds.,**1983** "Report of the experts meeting on aerosolsand their climatic effects." WCP-55,107 pp. (Available from World Meteorological Organization, Case Postale No.5, CH – 1211 Geneve, Switzerland

Deirmendjian, D. **1969** – "Electromagnetic Scattering on Spherical Polydispersions", Elsevier, New York

Deuzé, J. L., M. Herman, R. Santer, **1989**, "Fourier Series Expansion of the Transfer Equation in the Atmosphere-Ocean System", J. Quant. Spectrosc.Radiat. Transfer, 41, 483-494.

Devaux, C., A. Vermeulen, J.L. Deuzé, P. Dubuisson, M. Herman and R.Santer, **1998**, "Retrieval of aerosol single scattering albedo from ground-based measurements: Application to observational data", J. Geophy. Res., 103, 8753-8761.

Draxler, R.R. and G.D. Hess, **1998** – "An overview of the HYSPLIT_4 modelling system for trajectories, dispersion and deposition", Aust. Met. Mag., 47, 295-308.

Dubovik, O., B.N. Holben, T.F. Eck, A. Smirnov, Y.J. Kaufman, M.D.King, D.Tanré and I.Slutsker, **2002**, "Variability of Absorption and Optical Properties of Key Aerosol Types Observed in Worldwide Locations", J.Atmos. Sci., 59, 590-608.

Dubovik, O. and M.D. King, **2000** - "A flexivel inversion algorithm for retrieval of aerosol optical properties from sun and sky radiance measurements", J. Geophys. Res., 105, D16, 20673-20696

Dubovik, O. A.Smirnov, B.N.Holben, M.D.King, Y.J. Kaufman, T.F. Eck and I. Slutsker, **2000**, "Accuracy assessment of aerosol optical properties retrieval from AERONET sun and sky radiance measurements", J. Geophys. Res., 105, 9791- 9806.

Durkee, P.A., F. Pfeil, E. Frost and R.Shema, **1991** – "Global Analysis of Aerosol Particle Characteristics", Atmosph. Environment. 25A, 2457-2471

Eck, T., B.N.Holben, I.Slutsker and A.Setzer, 1998 – " Measurements of Irradiance Attenuation and Estimation of Aerosol Single Scattering Albedo for Biomass Burning Aerosols in Amazonia"- J. Geophys. Res., Vol.103, No D24, 31865-31878

Elias, T., A.M.Silva, N.Belo, S.Pereira, P.Formenti, G.Helas and F.Wagner, **2006**, "Aerosol extinction in a remote continental region of the Iberian Península during summer", J.Geophys. Res., 111, D14204, doi:10.1029/2005JD006610

Elias, Thierry, Ana Maria Silva, Mouhaydine Tlemcani., **2002**, "Estimation of the Total Uncertainty of Sky-Radiance Measurements in Field Experimental Conditions: Implications for the Aerosol Single-Scattering Albedo". Applied Optics 41:24, 5059

Elias, T., A.M.Silva, S. Piketh, L.Bugalho, **2001**, "Aerosol single scattering albedo retrieved from combination of ground-based and in-situ optical measurements during SAFARI2000", Journal of Aerosol Science, Vol. 32, Suppl.1, Proceedings of European Aerosol Conference, Leipzig, S43-S44.

Estellés, V., M.P.Utrillas, J.L. Gómez-Amo, R. Pedrós, J.A. Martinez-Lozano, **2004** – "Aerosol Size Distributions and Air Mass Trajectories over a Mediterranean Coastal Site", International Journal of Remote Sensing, Vol. 25, pag 39-50

Fenn, R.W., Clough,S.A., Gallery,W.O. et al, **1985**, "Optical and infrared properties of the atmosphere, Handbook of Geophys. 18(9): 18-25.

Fouquart, Y., **1987**. "Radiative transfer in climate modeling. NATO Advanced Study Institute on Physically-Based Modeling and Simulation of Climate and Climate Changes", Erice, Sicily, 11-23 May 1986, M.E. Schlesinger, Ed., 223-283.

Garstang, M., P. D. Tyson, R. Swap, M. Edwards, P. Kållberg, and J.A. Lindesay, **1996,** "Horizontal and vertical transport of air over southern Africa", J. Geophys. Res., 101, 23721-23736.

Gueymard, C., **1995**, "SMARTS2, a simple model of the atmospheric radiative transfer of sunshine: Algorithms and performance assessment", FSEC-PF-270-95, Florida Solar Energy Center, 78 pp.

Hansen, J. and L.Travis, **1974**, " Light scattering in planetary atmospheres", Space Sci.Rev., 16, 527-610

Haywood, J., V. Ramaswamy, and B. Soden, **1999**: Tropospheric aerosol climate forcing in clear-sky satellite observations over the oceans, Science, 283, 1299-1303.

Haywood, J.M. and K.P. Shine, **1995**: The effect of anthropogenic sulphate and soot aerosol on the clear sky planetary radiation budget. Geophys. Res. Lett., 22, 603-606.
Haywood, J., and V. Ramaswamy, 1998: Global sensitivity studies of the direct radiative forcing due to anthropogenic sulphate and black carbon aerosols. J. Geophys. Res., 103, 6043-6058.

Heintzenberg, J., R.J. Charlson, A.D.Clarke, C.Liousse, V.Ramaswamy, K.P.Shine, M. Wendisch and G.Helas, **1997** - "Measurements and modeling of aerosol single scattering albedo: progress, problem and prospects" Beitr. Phys. Atmosph., 70, 249-263.

Heintzenberg, J., Robert J. Charlson, **1996** – "Design and Applications of the Integrating Nephelometer: A Review", Journal of Atmospheric and Oceanic Technology, Vol. 13, October.

Heintzenberg, J., Heinz Muller, Heinrich Quenzel and Edith Thomalla, **1981**, - "Information content of optical data with respect to aerosol properties: numerical studies with a randomized minimization-search-technique inversion algorithm" – Applied Optics – Vol.20. Nº 8, pag 1308-1315

Herman, M., J.L. Deuze, C.Devaux, P.Golub, F.M. Breon, D.Tanré, **1997**, "Remote sensing of aerosols over land surfaces including polarization measurements and application to POLDER measurements", J. Geophy. Res., 102, 17039-17049.

Hess,M., P.Koepke, and I. Schult, **1998** "Optical Properties of Aerosols and Clouds: the Software Package OPAC, B. Am. Met.Soc.,79, 831-844

Hinds, W., **1999,** "Aerosol Technology: Properties, behaviour and measurement of airborne particles" 2nd ed. New York, NY: Wiley Interscience

Hobbs, P.V., Bowdle, D.A. and Radke, L.F., **1985**, "Particles in the lower troposphere over the high plains of the United States. 1. Size distributions, elemental compositions, and morphologies" J. Climate Appl. Meteorol., 24, 1344- 1356

Holben, B.N., T.F. Eck, I. Slutsker, D. Tanré, J.P. Buis, A. Setzer, E. Vermote, J.A. Reagan, Y.J. Kaufman, T. Nakajima, F. Lavenu, I. Jankowiak and A. Smirnov, **1998**, - "AERONET—A federated instrument network and data archive for aerosol characterization". Remote Sens. Environ, **66**, 1–16

Hoppel, W. A., J. W. Fitzgerald, G. M. Frick, and R. E. Larson, **1990**:"Aerosol size distributions and optical properties found in the marine boundary layer over the Atlantic Ocean". J. Geophys. Res., **95**, 3659–3686

Horvath, H., L.A.Arboledas, F.J.Olmo, O.Jovanovié, M.Gangl, W.Kaller, C.Sanchez, H.Sauerzopf and S.Seidl, **2002**, "Optical characteristics of the aerosol in Spain and Austria and its effect on radiative forcing", J. Geophys. Res., **107**, NO D19, 4386, doi:10.1029/2001JD001472

Husar, R.B., J.M.Prospero and L.L.Stowe, **1997**: "Characterization of tropospheric aerosols over the oceans with the NOAA Advanced Very High Resolution Radiometer optical thickness operational product" Journal of Geophys. Res. 102, 16889-16909

HYSPLIT 4 (HYbrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory) Model, 1997. Web address: http://www.ready.noaa.gov/ready/open/hysplit4.html

IPCC, Intergovernmental Panel on Climate Change, **2007**: "The Physical Science Basis", Ch 2, Changes in atmospheric constituents and in radiative forcing", Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change.

Jacob, D.J., Andreae, M.O., Bigg, E.K., Duce, R.A., Fung, I.,Hidy, G.M., Legrand, M.,Prospero, J.M., Raes, F., Warren, S.G., Wiedensohler, A., **1995**, "Group Report: What Factors Influence Atmospheric aerosols, How have they Changed in the Past, and How might they Change in the Future "– Aerosol Forcing of Climate – Edited by R.J. Charlson and J. Heintzenberg, Published 1995 John Wiley & Sons, Ltd

Jaenicke, R., **1993,** "Tropospheric aerosols in Aerosol-Cloud-Climate Interactions", edited by P.V. Hobbs, Academic Press, San Diego, CA; pp1-31.

Junge, C.E., C. W. Chagnon and J,E.Manson, **1961** – " A world-wide Stratospheric Aerosol Layer" – Science, Vol.133, pag 1478-1479, Maio 1961

Junge, C.E., **1963** – "Air Chemistry and Radioactivity" – Academic Press, 382pp

Kasten, F. and A.T. Young, **1989**, "Revised optical air mass tables and approximation formula", Appl.Opt., 28, 4735-4738, 1989

Kasten, F.,**1965**, "A New Table and Approximation Formula for the Relative Optical Air Mass", 1965, Cold Regions Research and Engineering Laboratory, Hanover,N.H., U.S.A.

Kaufman, Y.J., D.Tanré, L.A.Remer, E.F.Vermote, A.Chu, and B.N.Holben, **1997**, "Operational remote sensing of tropospheric aerosol over land from EOS moderate-resolution imaging spectroradiometer" J.Geophys.Res., 102, 17051-17067

Kaufman, Y.J., A. Gitelson, A. Karnieli, E.Ganor, R.S. Fraser, T. Nakajima, S. Mattoo, and B.N Holben, **1994**,. "Size Distribution and Scattering Phase Function of Aerosol Particles Retrieved from Sky-Brightness Measurements", J.Geophys. Res.,99, 10341-10356.

King, M.D., D.M. Byrne, B.M. Herman and J.A. Reagan, **1978**, "Aerosol Size Distributions Obtained by Inversion of Spectral Optical Depth Measurements", J. of the Am. Sci., Vol.35, N°11, 2153-2167

King, M.D., Y.J. Kaufman, D. Tanré and T.Nakajima, **1999**, "Remote Sensing of Tropospheric Aerosols from Space: Past, Present and Future", Bull. Am.Meteo. Soc.

Knutson, E.O. and K.T. Whitby, **1975** – "Aerosol Classification by Electric Mobility: Apparatus, Theory and Applications", Journal of Aerosol Science, 6, 443-451

Kokhanovsky, A.A., F.M.Breon, A. Cacciari, E.Carboni, D.Diner, W.Di Nicolantonio, R.G.Grainger, W.M.F.Grey, R. Holler, K.H.Lee, Z.Li, P.R.J.North, A.M.Sayer, G.E.Thomas, W.von Hoyningen-Huene, **2007**, "Aerosol remote sensing over land: a comparison of satellite retrievals using different algorithms and instruments" Atmospheric Res., 85, 372- 394

Lacaux, J.P., Brustet, J.M.,Delmas,R. Menaut, J.C.,Abbadie,L., Bonsang,B., Cachier,H., Baudet,J., Andreae, M.O. and Helas, G., **1996**,. Biomass Burning in the tropical savannas of Ivory Coast: An overview of the field experiment Fire of Savannas (FOS/DECAFE). J. Atmos. Chem., 22, 195-216

Lacis, A., J. Hansen, and M. Sato, **1992**: Climate forcing by stratospheric aerosols. Geophys. Res. Lett., **19**, 1607-1610, doi:10.1029/92GL01620.

Lenoble,J., **1993**,"Atmospheric Radiative Transfer", A. Deepak Publishing, Hampton, 532pp.

Leon, J.F., P.Chazette, J.Pelon, F. Dulac, H. Ramdriamiarisoa, C.Flamant, G. Cautenet, **2001**, "Aerosol radiative heating of the atmosphere", Journal of Aerosol Science, Vol. 32, Suppl.1, Proceedings of European Aerosol Conference, S49-S50.

Li Liu, Michael I. Mishchenko, Joop W. Hovenier, Hester Volten and Olga Munoz, **2003**, –"Scattering matrix of quartz aerosols: comparison and synthesis of laboratory and Lorenz-Mie results" – Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer – Vol 79-80, pp. 911-920

Meador, W.E., W.R. Weaver, 1980, "Two Stream Approximations to Radiative Transfer in Planetary Atmospheres: a Unified Description of Existing Methods and a New Improvement", J. Atmos. Sci, 37, pp 630-643.

Mishchenko, M.I., G.Videen, V.Babenko, N.Khlebtsov, T.Wriedt, **2004** – "T-matrix Theory of Electromagnetic Scattering by Particles and its Applications: a Comprehensive Reference Database" – J. of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 88, pag 357-406.

Mishchenko, M.I., Hovenier JW, Travis LD Editors, **2000**, "Light scattering by nonspherical particles: theory, measurements and applications". San Diego. Academic press

Nakajima, T. and A. Higurashi, **1998**: "A use of two-channel radiances for an aerosol characterization from space", Geophys. Res. Lett., 25, 3815-3818

Nakajima, T. and A. Higurashi, **1997**: "AVHRR remote sensing of aerosol optical properties in the Persian Gulf region, the Summer of 1991". Journal Geophys. Res., 102 (D14), 16 935–16 946

Nakajima, T., G. Tonna, R. Rao, Y. Kaufman and B. Holben, **1996** – "Use of Sky Brightness Measurements from Ground for remote Sensing of Particulate Polydispersions" – Applied Optics, Vol. 35, pag 2672-2686

Nakajima, T., Tanaka, M., **1988**, "Algorithms for radiative intensity calculations in moderately thick atmospheres using a truncation approximation." Journal of Quant. Spectrosc. & Radtiave Transfer , 40, pag.51-69.

Nakajima, T., M Tanaka, T Yamauchi, **1983** – "Retrieval of the optical properties of aerosols from aureole and extinction data" - Applied Optics, Vol. 22, pag. 2951-2959

Olmo, F.J., A. Quirantes, A. Alcántara, H. Lyamani, L. Alados-Arboledas, **2006**, "Preliminary results of a non-spherical aerosol method for the retrieval of atmospheric aerosol optical properties", Journal of Quant. Spectrosc. & Radtiave Transfer, 100, 305-314

Penner, J. et al, **2001**, "Aerosols:Their direct and indirect effects in Climate Change, 2001: Scientific Basis, Contribution of Working Group I to the Third Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change" Edited by J.Houghton et al, pp 289-348, Cambridge Univers. Press, New York, 2001

Pollack, J.B. and J.N.Cuzzi, **1980**, "Scattering by nonspherical particles of size comparable to the wavelength: a semiempirical theory and its application to tropospheric aerosols, J.Atmos. Sci., 37, 868-881

Posse, P. and W. von Hoyningen-Huene, **1995** – "Information about scattering properties and particle characteristics of a stratiform cloud at Helgoland by remote optical measurements", Beitr. Phys. Atm. 68, pag. 359-366

Pruppacher,H.R., and Klett, J.D., **1980**, "Microphysics of Cloud and Precipitation", D. Reidel, Dordrecht, The Netherlands

Raes, F., T. Bates, F. McGovern and M.van Liedekerke, **2000** – "The 2nd Aerosol Characterization Experiment (ACE 2): general overview and main results" – Tellus, 2000, 52B, pag 111-125

Reid, J. S. and P. V. Hobbs, **1998**: Physical and optical properties of smoke from individual biomass fires in Brazil. J. Geophys. Res., 103, 32013-32031.

Reid, J.S., P.V. Hobbs, C. Liousse, J. V. Martins, R.E. Weiss, and T.F. Eck, **1998**, "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.

Reid, J.S., P.V. Hobbs, R.J. Ferek, D.R. Blake, J.V. Martins, M.R. Dunlap and C. Liousse, **1998:** Physical, chemical, and optical properties of regional hazes dominated by smoke in Brazil. J. Geophys. Res., **103**, 32,059-32,080.

Remer, L.A. et al **1998** "Biomass Burning Aerosol Size Distribution and Modeled Optical Properties, JGR, 103, 31879-31891

Remer, L.A., Y.J. Kaufman, D.Tanré, **2005,** " The MODIS aerosol algorithm, products and validation", J.Atmos.Sci., 62, 947-973

Russell, P. B., J.Redemann, B.Schmid, R. W.Bergstrom, J. M.Livingston D. M.McIntosh and S. A.Ramirez, S.Hartley, P. V.Hobbs, P. K.Quinn, C. M.Carrico, M. J.Rood, E.Öström, K. J.Noone, W.von Hoyningen-Huene, L.Remer, **2002**, "Comparison of Aerosol Single Scattering Albedos Derived by Diverse Techniques in Two North Atlantic Experiments" J.Atmos.Sci., Vol.59, 609-619

Russell, P. B., and J. Heintzenberg, **2000**: An overview of the ACE-2 clear sky column closure experiment (CLEARCOLUMN). Tellus, 52B, 463-483.

Russell, P. B., P. V. Hobbs, and L. L. Stowe, **1999** – "Aerosol properties and radiative effects in the United States East Coast haze plume: An overview of the Tropospheric Aerosol Radiative Forcing Observational Experiment (TARFOX)", J. Geophys. Res., 104(D2), 2213–2222.

Russell, P.B., J. M. Livingston, E. G. Dutton, R. F. Pueschel, J. A. Reagan, T. E. DeFoor, M. A. Box, D. Allen, P. Pilewskie, B. M. Herman, S. A. Kinne, D. J. Hofmann, **1993** – "Pinatubo and Pre-Pinatubo Optical Depth Spectra: Mauna Loa Measurements, Comparisons, Inferred Particle Size Distributions, Radiative Effects and Relationship to Lidar Data", J. Geophys. Res., 98(D12), 22,969–22,985.

Santos, D., Costa, M. J., and A. M. Silva, **2008**, "Direct SW aerosol radiative forcing over Portugal", Atmos. Chem. Phys., 8, 5771-5786.

Sato, M., J.E. Hansen, M.P. McCormick, and J.B. Pollack, **1993**, "Stratospheric aerosol optical depths, 1850-1990". J. Geophys. Res., **98**, 22987-22994, doi:10.1029/93JD02553.

Seinfeld, J.H., Pandis S.N., **1998** "Atmospheric Chemistry and Physics" John Wiley & Sons, Inc.,ISBN 0-471-17816_0

Sheridan, P. J., D. J. Delene, and J. A. Ogren, **2001** – "Four Years of Continuous Surface Aerosol Measurements from the Department of Energy's Atmospheric Radiation Measurement Program Southern Great Plains Cloud and Radiation Testbed site", J. Geophys. Res., 106(D18), 20,735–20,747.

Shettle, E.P., and R. Fenn, **1975** – "Models of the atmospheric aerosols and their optical properties" – Proceedings of the AGARD Conference, nº 183, AGARD – CP - 183

Shettle, E.P., and R. Fenn, **1979** – "Models for the Aerosols for the Lower Atmosphere and the Effects of Humidity Variations on their Optical Properties", AFGL-TR-79-0214 Environmental Research Papers N° 676

Silva, A.,L.Bugalho, J.Costa, W.von Hoyningen-Huene, T.Schmidt, J. Heintzenberg, S. Henning, **2002**, "Aerosol optical properties from columnar data during second Aerosol Characterization Experiment on the south coast of Portugal – Journal of Geophysical Research, Vol.107, NO.D22, 4642,doi:10.1029/2002JD002196.

Silva, A.M., M.L.Bugalho, M.J.Costa, T.Elias, D.Bortoli, P.Formenti, L.Alados-Arboledas, J.Lorente, V.Cachorro, H.Horvath, J.A. Martinez-Lozano, A.Labajo, B. de la Morena, F.J.Exposito, M.Pujadas, **2003**, "Retrieval of surface albedo and aerosol optical properties from satellite data at Armilla, Spain, during Veleta 2002 campaign", Journal of Aerosol Science, Proceedings of European Aerosol Conference, Madrid, 1135-1136.

Sloane, C.S., **1983** – "Optical Properties of Aerosols- Comparison of Measurements with Model Calculations" – Atmospheric Environment, 17, pag 409-416

Smirnov, A. B.N. Holben, T.F. Eck, O.Dubovick, I. Slutsker, **2000**, "Cloud-screening and quality control algorithms for the AERONET database"- Rem. Sensing of the Environ., Vol.73, 337-349.

Stamnes, K., S-C. Tsay, W. Wiscombe and K. Jayaweera, **1988** – "Numerically Stable Algorithm for Discrete – Ordinate Method Radiative Transfer in Multiple Scattering and Emitting Layered Media", Applied Optics, Vol.27, N°12, pag 2502-2509

Stowe, L.L., A.M.Ignatov and R.R. Singh, **1997**,"Development, validation, and potential enhancements to the second generation operational aerosol product at the National Environmental Satellite Data and Information Service of the national Oceanic and Atmospheric Administration" , Journal of Geophys. Res. 102, 16923-16934

Swap, R.J., H.J. Annegarn, J.T. Suttles, J. Haywood, M.C. Helmlinger, C. Hely, P.V. Hobbs, B.N. Holben, J.Ji, M.D. King, T. Landmann, W. Maenhaut, L.Otter, B. Pak, S.J. Piketh, S. Platnick, J. Privette, D. Roy, A.M.Thompson, D. Ward and R.Yokelson, **2002** – "The Southern African Regional Science Initiative (SAFARI 2000): Overview of the Dry Season Field Campaign", South African Journal of Science, 98, pag 125-130.

Swap, R., M. Garstang, S.A. Macko, P.D. Tyson, W. Maenhaut, P. Artaxo, P. Kållberg, and R. Talbot, **1996**, "The long-range transport of southern African aerosols to the tropical South Atlantic", J. Geophys. Res., 101, 23777—23792.

Tanré, D., J. Haywood, J.Pelon, J.F.Léon, B.Chatenet, P.Formenti, P.Francis, P.Goloub, E.J. Highwood and G.Myhre, **2003**, "Measurement and Modeling of the Saharan Dust Radiative Impact: Overview of the Saharan Dust Experiment (SHADE), J.Geophy. Res., Vol.108, No D18, 8574-8585, doi:10.1029/2002JD003273, 2003

Tanré, D., Y. J. Kaufman, B. N. Holben, B. Chatenet, A. Karnieli, F. Lavenu, L. Blarel, O. Dubovik, L. A. Remer, A. Smirnov, **2001**, "Climatology of Dust Aerosol Size Distribution and Optical Properties Derived from Remotely Sensed Data in the Solar Spectrum" J. Geophys. Res., 106(D16), 18,205–18,217.

Tegen, I., A.A.Lacis e I. Fung, **1996**, "The Influence on Climate Forcing of Mineral Aerosols from Disturbed Soils" Nature 380, 419 - 422 (04 April 1996); doi:10.1038/380419a0

Textor, C., **2005** – "Differences in Simulated Vertical Distribuitions" – Proceedings of 4TH AeroCom Workshop – Oslo, Norway, 15-17 June 2005

Textor, C., M. Schulz, S. Guibert, S. Kinne, Y. Balkanski, S. Bauer, T. Berntsen, T. Berglen, O. Boucher, M. Chin, F. Dentener, T. Diehl, R. Easter, H. Feichter, D. Fillmore, S. Ghan, P. Ginoux, S. Gong, A. Grini, J. Hendricks, L. Horowitz, P. Huang, I. Isaksen, T. Iversen, S. Kloster, D. Koch, A. Kirkevåg, J.E. Kristjansson, M. Krol, A. Lauer, J.F. Lamarque, X. Liu, V. Montanaro, G. Myhre, J. Penner, G. Pitari, S. Reddy,

Ø. Seland, P. Stier, T. Takemura, and X. Tie, **2006**: "Analysis and Quantification of the Diversities of Aerosol Life Cycles within Aerocom", Atmos. Chem. Phys., 6, 1777-1813.

Theodore, J., **1995**, "Climate Change, 1995, The science of climate change : contribution of working group I to the second assessment report of the intergovernmental panel on climate change, WMO-UNESP, Technical Summary.

Tyson, P.D., M. Garstang, R. Swap, P. Kållberg, and M. Edwards, **1996**, "An air transport climatology for subtropical southern Africa", Internat. J. Climatol., 16, 16265-16291.

Claudio Tomasi, Vito Vitale, Boyan Petkov, Angelo Lupi, and Alessandra Cacciari, **2005**, "Improved algorithm for calculations of Rayleigh-scattering optical depth in standard atmospheres," Appl. Opt. **44**, 3320-3341.

Toon, O.B., **1995**, "Modelling the Relationships between Aerosol Properties and the Direct and Indirect Effects of Aerosols on Climate" – Aerosol Forcing of Climate – Edited by R.J. Charlson and J. Heintzenberg, Published 1995 John Wiley & Sons, Ltd

Van de Hulst, H.C., **1957** "Light Scattering by Small Particles" – Wiley, 470pp

Von Hoyningen-Huene, W., Freitag, M. and Burrows, J.P., **2003**, „Retrieval of Aerosol Optical Thickness over Land Surfaces from Top-of-Atmosphere Radiance". J. Geophys. Res., 108.

Von Hoyningen-Huene, W. and Posse,P., **1997**, "Nonsphericity of Aerosol Particles and their Contribution to Radiative Forcing" J. Quant.Spectrosc. Radiat.Transfer, 57-5, 651-668.

Von Hoyningen-Huene, W., M. Stettler, and M. Weller, **1996,** "Determination of Climate-Relevant Aerosol Parameters in the Vicinity of an Industrial Regionin Eastern Germany", Meteorol. Z. Neue Folge, 5, 269– 278.

Von Hoyningen-Huene,W. and Wendisch, M., **1994,** – " Variability of Aerosol Optical Parameters byAdvective Processes" Atm. Env., Vol.28, No5

Von Hoyningen-Huene, W., W. Bohemenn, and J.Rehnert, **1991,** "Spektralphotometer ASP-2 zur Bestimmung spektraler atmospharischer Parameter", Geophys. Veroffentl. Un. Leipzig, 3, 23-34.

Wendisch, M.,and von Hoyningen-Huene, W., **1994,** "Possibility of Refractive Index Determination of Atmospheric Aerosol Particles by Ground-based Solar Extinction and Scattering Measurements", Atmospheric Environment, Vol 28, N° 5, 785-792

Wiscombe, W., **1977** „The Delta-M Method: Rapid yet Accurate Radiative Flux Calculations"-J.Atmos.Sci, 34, 1408-1422

World Climate Program, WMO, **1986,** A Preliminary Cloudless Standard Atmosphere for Radiation Computation, WCP-112, WMO/TD No. 24, Boulder

Wulfmeyer, V., and G. Feingold, **2000** – "On the Relationship between Relative Humidity and Particle Backscattering Coefficient in the Marine Boundary Layer Determined with Differential Absorption Lidar", J. Geophys. Res., 105(D4), 4729–4741.

Yamasoe, M.A., Y. J. Kaufman, O. Dubovik, L.A. Remer, B.N.Holben and P. Artaxo, **1998** – "Retrieval of the Real Part of the Refractive Index of Smoke Particles from Sun- Sky Measurements during SCAR-B" J.Geophys.Res., 103, pag 31893-31902