

Universidade de São Paulo
Instituto de Física

Simulações numéricas da sensibilidade de detecção de aerossóis ultrafinos no topo da troposfera Amazônica pela técnica lidar

Matheus Tolentino da Silva

Orientador: *Prof. Dr. Henrique de Melo Jorge Barbosa*
Coorientador: *Prof. Dr. Juan Luís Guerrero Rascado*

Dissertação de mestrado apresentada ao Instituto de Física da Universidade de São Paulo, como requisito parcial para a obtenção do título de Mestre em Ciências.

Prof. Henrique M. J. Barbosa
Instituto de Física
Universidade de São Paulo
Henrique de Melo Jorge Barbosa

Banca Examinadora:

Prof. Dr. Henrique de Melo Jorge Barbosa (IF-USP)

Profa. Dra. Márcia Akemi Yamasoe (IAG-USP)

Prof. Dr. Gregori de Arruda Moreira (IFSP)

São Paulo
2022

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

Silva, Matheus Tolentino da

Simulações numéricas da sensibilidade de detecção de aerossóis ultrafinos no topo da troposfera Amazônica pela técnica lidar. São Paulo, 2022.

Dissertação (Mestrado) – Universidade de São Paulo. Instituto de Física. Depto. de Física Aplicada.

Orientador: Prof. Dr. Henrique de Melo Jorge Barbosa

Área de Concentração: Física

Unitermos: 1. Amazônia; 2. Aerossóis; 3. Lidar; 4. Limite de detecção; 5. Simulação numérica.

USP/IF/SBI-015/2022

University of São Paulo
Physics Institute

Numerical simulations of the detection sensitivity of ultrafine aerosols at the top of the Amazonian troposphere by the lidar technique

Matheus Tolentino da Silva

Supervisor: *Prof. Dr. Henrique de Melo Jorge Barbosa*
Co-supervisor: *Prof. Dr. Juan Luís Guerrero Rascado*

Dissertation submitted to the Physics Institute of the University of São Paulo in partial fulfillment of the requirements for the degree of Master of Science.

Examining Committee:

Prof. Dr. Henrique de Melo Jorge Barbosa (IF-USP)
Profa. Dra. Márcia Akemi Yamasoe (IAG-USP)
Prof. Dr. Gregori de Arruda Moreira (IFSP)

São Paulo
2022

Agradecimentos

Gostaria de agradecer ao meu orientador, Prof. Dr. Henrique de Melo Jorge Barbosa pela excelente orientação durante o desenvolvimento deste projeto. Em especial, por todo cuidado, paciência e dedicação ao me guiar, revisar meus textos, ensinar e esclarecer eventuais dúvidas. Também por estar sempre em alerta para sugerir escolas e cursos complementares. Além de tudo, sua forte posição de liderança serviu de inspiração para mim e todos os seus alunos, mesmo aqueles que não buscam seguir um futuro na pesquisa.

Também gostaria de agradecer a todos os meus amigos da Física, pelos grupos de estudo, discussões e momentos de descontração. Também sou muito grato aos meus amigos mais próximos, que não necessariamente são da Física, por sempre me proporcionarem bons momentos e demonstrarem seu apoio.

Ao Prof. Dr. Juan Luis Guerrero Rascado pela sua ótima co-orientação, pelo contínuo interesse no andamento do projeto, pelas suas dicas e disponibilidade em revisar meus textos. Também por estar sempre atento a oportunidades que me ajudaram, ou poderão me ajudar, no meu desenvolvimento enquanto pesquisador em formação na área de Física Atmosférica.

Não poderia também deixar de expressar minha imensa gratidão aos meus pais, que me deram condições para seguir os meus estudos. Na verdade, por muito mais que isso, por todo apoio, companheirismo e paciência durante todo o processo, me inspirando e dando forças para ir até o final.

Finalizo agradecendo ao CNPq, Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico - Brasil, pelo suporte financeiro através da concessão de bolsa de estudo de Mestrado-GM ao projeto 830577/1999-8 de processo 132402/2020-3.

Resumo

A floresta Amazônica é a maior floresta tropical do mundo, contribuindo de maneira significativa para o ciclo hidrológico e balanço energético global. Por isso há um esforço internacional para compreender os ciclos de vida das nuvens e dos aerossóis na região. Recentemente, campanhas de aviões realizaram medidas *in-situ* do perfil vertical de aerossóis e gases, e encontraram altas concentrações numéricas de novas partículas orgânicas ultrafinas no topo da troposfera (UT), com concentrações decrescentes de partículas mais envelhecidas em direção à superfície. O atual entendimento científico é que estas partículas são formadas a partir do transporte de vapores orgânicos voláteis pelas nuvens. Elas são a fonte de núcleos de condensação de nuvens dentro da camada limite planetária (PBL) na Amazônia, sustentando a formação das nuvens do oceano verde. Porém, essas medidas com aviões são de curto prazo, enquanto existem sistemas lidar na Amazônia que poderiam, em princípio, realizar medidas automáticas, contínuas e a longo prazo desses aerossóis. Neste cenário, utilizamos simulações para estudar em que situações um sistema lidar de solo poderia detectar essas partículas na UT. Então, calculamos a probabilidade de detecção desta camada de aerossóis para diferentes hipóteses sobre a eficiência do sistema lidar e a concentração em massa dos aerossóis na UT.

As simulações foram calibradas com a mesma intensidade e razão sinal-ruído (S/N) do lidar Raman UV do LFA IF-USP. Calculamos o perfil de propriedades ópticas dos aerossóis com o código Mie do libRadtran, assumindo distribuições de tamanho e perfis de concentração numérica estimados pelas medidas das aeronaves HALO e G-1, e índices de refração estimados pela AERONET. Consideramos um caso apenas com partículas da moda de Aitken na UT (AOD = 0,0008 até 0,013 em 355 nm), e outro com partículas da moda de acumulação na PBL (AOD = 0,04 em 355 nm). Por fim, utilizamos o método Klett-Fernald para obter o perfil de retroespalhamento e extinção dos aerossóis a partir do sinal simulado. Depois avaliamos três testes estatísticos para detectar a camada de aerossóis na UT. Também testamos o efeito de erros sistemáticos do lidar ratio usado na inversão do sinal, na estimativa da probabilidade de detecção.

Nossos resultados indicam que é preciso uma razão sinal-ruído da ordem de 400 em 10 km para a detecção das partículas na UT. Para um lidar troposférico típico, seria necessário uma melhoria da ordem de 10^2 na sua razão S/N. Mostramos que isso pode ser atingido sem nenhuma modificação no sistema lidar, realizando uma média temporal e um acúmulo de bins de 1 h e 15 min (150 perfis de 30 s) e 495 metros (67 bins de 7,5 metros) respectivamente. A presença de aerossóis da moda de acumulação próximo da superfície não alterou significativamente a eficiência de detecção das partículas ultrafinas. O mesmo também foi observado para os erros sistemáticos no lidar ratio da inversão testados aqui. Este estudo permitiu entender as dificuldades para detectar essas partículas com um sistema lidar otimizado para a baixa troposfera, e ao mesmo tempo mostrar que a razão S/N necessária pode ser alcançada. Futuros estudos observacionais poderão explorar estes resultados e realizar medidas sistemáticas dessas partículas na UT, melhorando nosso conhecimento sobre elas e sua representação em modelos globais.

Palavras Chaves: Amazônia; Aerossóis; Lidar; Limite de detecção; Simulação numérica.

Abstract

The Amazon rainforest is the largest tropical forest in the world, contributing significantly to the global hydrological cycle and radiative budget. Hence, there is an international effort to understand the life cycle of clouds and aerosols in the region. Recently, aircraft campaigns have made in-situ measurements of aerosol and gasses vertical structure, finding high number concentrations of new ultrafine organic particles in the upper troposphere (UT), with low concentrations of aged particles near the surface. The current scientific knowledge suggests that these particles were formed in the UT by the transport of volatile organic vapors by clouds. They are the source of cloud condensation nuclei in the Amazonian planetary boundary layer (PBL), sustaining the green ocean clouds. However, such aircraft measurements are only available in short-term campaigns, whilst in principle, a lidar system could perform long-term remote sensing of these aerosols. Then, we performed simulations of a ground-based lidar system to evaluate the detections of these particles in the UT. We have calculated the detection probability of this aerosol layer for different system efficiency and aerosol mass concentration in the UT.

The simulations were calibrated with the same intensity and signal to noise ratio (S/N) of the LFA-USP UV Raman lidar. We have calculated the aerosol vertical optical properties using the libRadtran-Mie code, with size distributions and numerical concentration profiles based on HALO and G-1 aircrafts measurements. Also with refractive indexes based on AERONET measurements. The analysis accounted for one case considering only Aitken mode particles in the UT (AOD = 0,0008 up to 0,013 in 355 nm), and another with accumulation mode particles in the PBL (AOD = 0,04 in 355 nm). Finally, we used the Klett-Fernald method to obtain the backscattering and extinction profiles from the simulated signal. Next, we evaluated three statistical tests for detecting the aerosol layer in the UT. We also tested the effect of systematic errors in the lidar ratio in our detection probability estimation.

Our findings suggest that a signal to noise ratio around 400 at 10 km is needed to detect the UT particles. For a typical tropospheric lidar, this means an increase of 10^2 in the S/N. We have shown that this value could be reached without any change in the instrument, only performing a time-average and a vertical bin length up to 1 h and 15 min (150 profiles of 30 s) and 495 meters (67 bins of 7,5 meters) respectively. Another general result is that the presence of accumulation mode particles near the surface does not significantly change the detection efficiency of the ultrafine particles. The same was observed for the systematic errors in the inversion lidar ratio tested here. Therefore, this study allowed us to understand the difficulties related with the detection of these particles with a lidar system optimized for low troposphere, also showing that the S/N needed can be reached. Further observations can explore these results and perform systematic measurements of these UT-particles, improving the knowledge and the representation of them in global models.

Keywords: Amazon; Aerosols; Lidar; Detection limit; Numerical simulation.

Lista de Figuras

1.1	Ilustração do transporte de poeira do Saara e fumaça das queimadas na África em direção à Amazônia durante a estação chuvosa. A estrela representa a localização do lidar. Figura adaptada de Baars et al. (2011).	3
1.2	Retro-trajetória dos aerossóis a partir do sítio experimental EMBRAPA, em 1,5 km começando no dia 3 de setembro de 2011. As imagens de satélite, mostrando os focos de queimadas entre 30 de agosto a 6 de setembro, foram obtidas no website do INPE (Instituto Nacional de Pesquisas Espaciais), que monitora as queimadas e o desflorestamento no Brasil. Figura adaptada de Barbosa et al. (2014).	5
1.3	Modelo conceitual proposto por Andreae et al. (2018) que explica o ciclo de vida dos aerossóis na estação chuvosa na Amazônia. Figura adaptada de Andreae et al. (2018).	6
2.1	Diferentes tipos e tamanhos de aerossóis. Partindo do painel da esquerda, temos cinzas de vulcão, pólen, sal marinho e fuligem. Figura adaptada de https://earthobservatory.nasa.gov , acessado em 7 de abril de 2022.	9
2.2	Distribuições de tamanho. O painel superior mostra a distribuição numérica das partículas consideradas ultrafinas ou finas. O painel inferior mostra a distribuição volumétrica de partículas maiores, consideradas dentro da categoria fina e grossa. Figura adaptada de Seinfeld and Pandis (2006, capítulo 8).	10
2.3	Funções de fase para um feixe incidente com comprimento de onda de $0,5 \mu m$ em uma partícula com: (a) $R = 10^{-4} \mu m$, ou $x = 1,2 \cdot 10^{-3}$, (b) $R = 0,1 \mu m$, ou $x = 1,2$, (c) $R = 1 \mu m$, ou $x = 12$. Figura adaptada de Liou (2002, capítulo 1).	13
2.4	Eficiência de espalhamento em função do parâmetro de tamanho para diferentes índices de refração imaginário e parte real fixa em 1,5. Figura adaptada de Liou (2002, capítulo 5).	14
2.5	Ilustração de um sistema lidar monoaxial, com canais de espalhamento elástico e Raman para o N_2 e H_2O . Figura adaptada de Weitkamp (2006, capítulo 9).	17

2.6	(a) Sobreposição entre o cone de emissão do laser com o cone de detecção do telescópio de um sistema lidar bi-axial. Figura adaptada de Kovalev and Eichinger (2004), (b) Função de overlap arbitrária, onde R faz o papel de “ z ”. Essa figura mostra o efeito na intensidade do sinal devido apenas ao fator geométrico do overlap e z^2 . Figura adaptada de Weitkamp (2006).	19
2.7	Painel superior: Banda de absorção mais espalhamento resultante de todos os gases do painel inferior. Painel inferior: Bandas de absorção individuais em função do comprimento de onda para o vapor d’água, dióxido de carbono, oxigênio e ozônio, metano, óxido nitroso e espalhamento Rayleigh. Figura adaptada de https://en.wikipedia.org/wiki/Absorption_band , acessado em 7 de abril de 2022.	22
3.1	Voos da aeronave G-1 entre 6 de setembro à 4 de outubro de 2014 durante o projeto GoAmazon2014/5. Figura de Martin et al. (2016).	28
3.2	Voos da aeronave HALO entre 1 de setembro e 4 de outubro de 2014 durante o projeto ACRIDICON-CHUVA. A estrela mostra a posição do lidar LFA IF-USP durante a campanha ACONVEX, descrita à frente. Figura adaptada de Andreae et al. (2018).	29
3.3	Localização do sítio experimental EMBRAPA durante o experimento ACONVEX, onde o lidar LFA IF-USP foi instalado.	30
3.4	Sítios experimentais com fotômetros da rede AERONET. Os quadrados em vermelho mostram a posição de cada sítio ao redor do mundo. Figura adaptada de https://aeronet.gsfc.nasa.gov/ , acessado em 7 de abril de 2022.	31
3.5	(a) Cabine do UV-Raman lidar LFA IF-USP. O telescópio, laser e sistema de aquisição de dados estão indicados na figura, (b) Série temporal do sinal do lidar em 355 nm com ruído de fundo removido e correção pela distância para o dia 14/9/2014. O tempo está em horário local (LT).	32
3.6	(a) Estatística de concentração numérica de partículas de todos os voos da aeronave HALO; (a) Perfil de concentração total de partículas, ou de núcleos de condensação (CN), (b) Perfil da fração de aerossóis ultrafinos (< 90 nm de diâmetro). Figura adaptada de Andreae et al. (2018).	33
3.7	(a) Perfis verticais de concentração numérica dos aerossóis da moda de Aitken medidos pela aeronave HALO em azul, e ajustados em vermelho, considerando uma concentração homogênea na UT (entre 9 a 15 km), (b) igual ao gráfico de (a), porém para as partículas da moda de acumulação dentro da PBL, assumindo uma concentração gaussiana com máximo em 1,1 km.	34

3.8	(a) Distribuições de tamanho reportadas por Andreae et al. (2018) em vários níveis na Amazônia, medidas pelas aeronaves G-1 e HALO como mencionado no texto. As linhas tracejadas representam as medidas e as linhas sólidas as funções ajustadas, (b) distribuições médias das partículas da moda de Aitken e acumulação, que segundo o texto, foram obtidas pelos parâmetros médios dos ajustes do painel esquerdo.	35
3.9	Índices de refração obtidos pela rede AERONET no sítio experimental EMBRAPA de 2011 a 2018; (a) histograma de todos os dados da parte real em 440 nm, (b) mesmo que (a), porém para a parte imaginária em 440 nm.	36
3.10	Curvas de nível do lidar ratio (L_{aer}) em função dos índices de refração real (\Re) e imaginário (\Im); (a) partículas da moda de Aitken (ou ultrafinas), (b) partículas da moda de acumulação.	38
3.11	Perfis tropicais padrões de pressão (em azul) e temperatura (em laranja) utilizados para calcular a extinção e retroespalhamento molecular segundo Bucholtz (1995) e Bodhaine et al. (1999).	39
3.12	(a) Gráfico de dispersão do ajuste entre o modelo molecular $P_{mol}(z, 355nm)$ e os dados observacionais do lidar $P_{obs}(z, 355nm)$ na referência molecular, definida entre 20 e 30 km, (b) mesmo ajuste da parte (a), mas mostrado do solo até 30 km.	40
3.13	Perfis de lidar ratio usados na inversão do sinal do lidar. Em verde podemos ver o perfil verdadeiro no qual o sinal foi simulado. As outras cores são valores subestimados e superestimados, que foram estudados na seção 4.5, nas análises de detecção das partículas ultrafinas.	44
3.14	Diagrama de fluxo: ilustração do procedimento de detecção das partículas ultrafinas na UT. Neste caso, usamos lidar ratios subestimados e superestimados na inversão do sinal do lidar.	45
3.15	Diagrama de fluxo: ilustração do procedimento de detecção das partículas ultrafinas na UT. Neste caso, usamos o lidar ratio médio na inversão do sinal do lidar.	45
4.1	Histogramas da série temporal da figura 3.5b, entre 21 h e 22 h. O título de cada painel indica a altura do centro de cada bin, a skewness e a kurtosis da distribuição dos dados. A função teórica está indicada em vermelho, obtida com parâmetro $a = \langle n \rangle$, onde n é o número de contagens.	48
4.2	Histogramas da série temporal, entre 21 e 22 h, da figura 3.5b, em 12 km de altura e acumulando bins na vertical. O título de cada figura mostra o comprimento do bin resultante, a skewness e a kurtosis. A função teórica está indicada em vermelho, obtida com parâmetro $A = \langle N \rangle$, onde N é o número total de contagens.	49

4.3	Perfil de 30 s do sinal do lidar LFA IF-USP em azul e simulação do mesmo perfil de 30 s com ruído aleatório de Poisson em vermelho	50
4.4	Razão sinal-ruído do lidar; (a) Acumulando a contagem de fótons dos bins verticais, (b) Tomando a média temporal em um bin.	50
4.5	Perfis simulados do sinal do lidar em 355 nm variando os índices de refração: (a) real (\Re), (b) complexo (\Im). O título de cada gráfico mostra os parâmetros que foram mantidos fixos, onde M_{uf} , κ e dz , são o fator de aumento da massa de partículas na UT, o fator de aumento na eficiência do lidar LFA IF-USP e a resolução vertical respectivamente.	51
4.6	Igual a figura 4.5, porém variando (a) a eficiência do lidar, e (b) a concentração em massa dos aerossóis na UT.	52
4.7	Histogramas dos resíduos relativos do ajuste molecular na superfície. Da esquerda para a direita os histogramas são para $\kappa = 100, 1000$ e $10\,000$ respectivamente. A legenda indica os métodos de ajuste (ver texto), a média e o desvio padrão.	54
4.8	Histogramas do AOD recuperado, dividido pela sua incerteza. Cada painel representa um valor de eficiência do lidar (κ), e faz uma comparação entre os ajustes de calibração do sinal molecular com e sem termo linear.	55
4.9	Perfis de extinção recuperados pela inversão dos sinais do lidar com eficiências κ . Os sinais invertidos foram simulados com apenas partículas da moda de Aitken na UT com concentração mássica aproximadamente 16 vezes maior que o valor mediano medido pela aeronave HALO.	57
4.10	Igual a figura 4.9, mas considerando os aerossóis da moda de acumulação, com concentração aproximadamente igual ao valor mediano medido pela aeronave HALO.	57
4.11	Igual a figura 4.9, mas fixando a eficiência do lidar em $\kappa = 10\,000$ e variando a concentração mássica dos aerossóis na UT (M_{uf}).	58
4.12	Igual a figura 4.11, mas considerando os aerossóis da moda de acumulação próximos da superfície.	59
4.13	Mapa de frequência relativa de detecção dos aerossóis ultrafinos na UT. O painel superior mostra o mapa para os sinais simulados apenas com as partículas da moda de Aitken na UT, enquanto que o painel inferior inclui as partículas da moda de acumulação da PBL. Esse mapa foi feito para o teste estatístico que verifica se a condição $\alpha_{aer} / \sigma_{\alpha} > 3$ é satisfeita para pelo menos 1 bin dentro da UT.	60
4.14	Igual ao mapa da figura 4.13. Porém, para o teste estatístico que verifica se $\alpha_{aer} / \sigma_{\alpha} > 3$ é satisfeito por pelo menos 500 metros consecutivos dentro da UT.	61

4.15	Igual ao mapa da figura 4.13. Porém, para o teste estatístico que verifica se $AOD/\sigma_{AOD} > 3$, onde o AOD foi calculado dentro da camada na UT (entre 9 e 15 km).	62
4.16	Perfis de extinção recuperados na inversão para um sinal com $\kappa = 10\,000$ e $M_{uf} = 16$. Cada painel mostra o valor do lidar ratio utilizado na inversão do sinal, que vai desde valores subestimados a superestimados. Note que o painel central usa o valor verdadeiro do lidar ratio na inversão.	64
4.17	Mapas de frequência relativa de detecção correspondentes aos lidar ratios de cada painel da figura 4.16. Esses mapas foram feitos para o teste estatístico que verifica se a condição $AOD/\sigma_{AOD} > 3$ é satisfeita, com AOD calculado dentro da camada na UT (entre 9 e 15 km).	66
4.18	Gráfico de frequência de detecção (ou porcentagem de detecção) do terceiro teste estatístico em função da eficiência do lidar para uma massa $M_{uf} = 1$	67
A.1	Mapas de frequência relativa de detecção correspondentes aos lidar ratios de cada painel da figura 4.16. Esses mapas foram feitos para o teste estatístico que verifica se a condição $\alpha_{aer}/\sigma_{\alpha} > 3$ é satisfeita para pelo menos 1 bin dentro da UT.	74
A.2	Igual aos mapas da figura A.1, porém, para o teste estatístico que verifica se $\alpha_{aer}/\sigma_{\alpha} > 3$ é satisfeito por pelo menos 500 metros consecutivos dentro da UT.	74
A.3	Gráfico de frequência de detecção (ou porcentagem de detecção) em função da eficiência do lidar para uma massa $M_{uf} = 1$. Da esquerda para a direita, cada painel corresponde ao primeiro, segundo e terceiro teste estatístico respectivamente.	75
A.4	Igual aos perfis de extinção da figura 4.16, porém incluindo os aerossóis da moda de acumulação na PBL. Lembrando que a eficiência do lidar está fixa em $\kappa = 10\,000$ e massa das partículas na UT em $M_{uf} = 16$. Nesse caso, a legenda dos painéis mostram o lidar ratio das partículas da moda de Aitken e de acumulação respectivamente, os verdadeiros (L_0) e usados na inversão do sinal (L_{inv}^{aer}).	76
A.5	Mapas de frequência relativa de detecção correspondentes aos lidar ratios de cada painel da figura A.4. Esses mapas foram feitos para o teste estatístico que verifica se a condição $\alpha_{aer}/\sigma_{\alpha} > 3$ é satisfeita para pelo menos 1 bin dentro da UT.	78
A.6	Igual aos mapas da figura A.5, porém, para o teste estatístico que verifica se $\alpha_{aer}/\sigma_{\alpha} > 3$ é satisfeito por pelo menos 500 metros consecutivos dentro da UT.	78

A.7 Igual aos mapas da figura A.5, porém, para o teste estatístico que verifica se $AOD/\sigma_{AOD} > 3$, onde o AOD foi calculado dentro da camada na UT (entre 9 e 15 km).	79
A.8 Gráfico de frequência de detecção (ou porcentagem de detecção) em função da eficiência do lidar para uma massa $M_{uf} = 1$. Da esquerda para a direita, cada painel corresponde ao primeiro, segundo e terceiro teste estatístico respectivamente.	80

Índice

Lista de Figuras	vi
1 Introdução	1
2 Fundamentação Teórica	8
2.1 Breve introdução aos aerossóis atmosféricos	8
2.1.1 Propriedades físicas	9
2.1.2 Propriedades ópticas	12
2.2 Funcionamento geral de um sistema Lidar	16
2.3 Equação do lidar	18
2.4 LibRadtran - código Mie	23
2.5 Algoritmo de inversão e fontes de erros associados	24
3 Metodologia	27
3.1 Dados observacionais utilizados nas simulações dos aerossóis e do sinal elástico do lidar	27
3.1.1 A Campanha GoAmazon2014/5	27
3.1.2 A Campanha ACRIDICON-CHUVA	29
3.1.3 O experimento ACONVEX	30
3.1.4 Sítio experimental EMBRAPA - AERONET	31
3.2 UV Raman Lidar do LFA IF-USP	32
3.3 Perfis de concentração de aerossóis da aeronave HALO	33
3.4 LibRadtran - simulação das propriedades ópticas dos aerossóis	35
3.5 Simulação do sinal elástico do lidar em 355 nm	38
3.5.1 Simulação do sinal molecular e calibração da simulação	39
3.5.2 Inclusão do termo dos aerossóis na simulação	41
3.6 Aplicação do algoritmo de inversão e métodos estatísticos	42
3.6.1 Método de detecção com erro sistemático no lidar ratio no código de inversão	42
3.6.2 Método de detecção usando o lidar ratio médio no código de inversão	45
4 Resultados	47
4.1 Análise estatística do sinal lidar	47
4.2 Efeito das propriedades dos aerossóis e da eficiência do equipamento no sinal do lidar	51

4.3	Análise do ajuste molecular do algoritmo de inversão	53
4.4	Análise de detecção dos aerossóis ultrafinos na UT	55
4.4.1	Perfis de extinção recuperados pelo algoritmo de inversão	56
4.4.2	Mapas de detecção dos aerossóis	59
4.5	Efeitos de erros sistemáticos no lidar ratio	64
4.6	Discussões	67
5	Conclusões e Perspectivas Futuras	70
A	Análise complementar da detecção dos aerossóis ultrafinos	73
A.1	Mapas de detecção com apenas partículas da moda de Aitken na UT	73
A.2	Mapas de detecção com aerossóis da moda de acumulação	76
B	Participação em eventos científicos e publicações	81
	Referências	83

Capítulo 1

Introdução

A floresta Amazônica é a maior floresta tropical do mundo, com uma área de aproximadamente 6,7 milhões de quilômetros quadrados. Devido à alta densidade de plantas, sua atmosfera possui uma elevada concentração de vapor d'água, produzido pela evapotranspiração da floresta. Assim, a região possui um intenso ciclo hidrológico, responsável pelo transporte de umidade para outras regiões do Brasil (Marengo, 2005, 2006). Parte fundamental desse ciclo é a formação das nuvens, que contribui com a precipitação na região e com o balanço radiativo do planeta (Liou, 1986; Collow and Miller, 2016; Betts et al., 2009). Esse balanço é definido como o saldo de irradiância (em W/m^2) entre a radiação solar incidente e a radiação terrestre (sistema Terra-atmosfera) retornada para o espaço. Neste contexto, para comprimentos de onda curta (espectro solar), as nuvens possuem uma forçante radiativa negativa, ou seja, diminuem esse saldo, refletindo irradiância solar de volta para o espaço e resfriando o planeta (Boucher et al., 2013). Em condições limpas, a formação das nuvens na Amazônia depende principalmente dos aerossóis secundários na região, produzidos por vapores orgânicos da floresta (conhecidos como compostos orgânicos voláteis, VOCs) (Andreae et al., 2018; Wang et al., 2016). Esses vapores formam núcleos de condensação de nuvens (CCN), que servem como superfícies de condensação do vapor de água disponível no ambiente - processo chamado de formação heterogênea de gotículas de nuvens. Dessa forma, os aerossóis desempenham um papel muito importante na região, pois variações nas suas propriedades e concentração, como na estação de queimadas, podem causar impactos na formação das nuvens, interferindo no ciclo hidrológico e no balanço radiativo (Liu et al., 2020). Além dos impactos regionais, os aerossóis de queima de biomassa emitidos na Amazônia também são transportados para outras localidades do Brasil, através dos ventos. Dessa forma, a Amazônia é uma região extremamente importante, pois alterações nos seus constituintes atmosféricos podem afetar o clima de outras regiões (Laurance, 1999; Nobre et al., 1991).

A floresta Amazônica possui duas estações do ano muito bem definidas, chamadas de estação chuvosa e estação seca. A estação chuvosa é marcada por uma atmosfera limpa, com baixas concentrações de aerossóis, os quais foram emitidos naturalmente pela floresta. Segundo Artaxo et al. (2013), a estação chuvosa (janeiro - junho) na Amazônia central dispõe de uma concentração mássica média de aerossóis da moda fina (aerossóis com diâmetro menor que $2 \mu m$) e da moda grossa (diâmetro maior que $2 \mu m$) de 1,3

e $4,8 \mu\text{g cm}^{-3}$ respectivamente. Em termos de distribuição de tamanho, esta estação possui duas modas, de Aitken e de acumulação, com concentração numérica total de partículas em torno de 220 cm^{-3} . Esses números refletem em uma profundidade óptica (AOD, do inglês *Aerosol Optical Depth*) em 500 - 550 nm, próxima de zero. Essa propriedade está relacionada com a atenuação da radiação por uma população de aerossóis em função do comprimento de onda, sendo maior quanto maior o AOD. Assim, nota-se que as concentrações de aerossóis no período chuvoso são bastante baixas, causando um efeito praticamente desprezível na atenuação da radiação. Além disso, nesta estação também foram observadas baixas concentrações de *Black Carbon* (BC), em torno de 98 e 47 ng/m^3 na moda fina e grossa respectivamente. Em compensação, na estação seca (julho - dezembro), essas concentrações aumentam significativamente devido à queima de biomassa para mudanças no uso da terra (criação de pasto e agricultura). Deste modo, esse período é marcado pela ação do homem, através de emissões antropogênicas. Como também relata [Artaxo et al. \(2013\)](#), na estação seca na Amazônia central, a concentração mássica média de aerossóis na moda fina atinge $3,4 \mu\text{g cm}^{-3}$, enquanto que a concentração na moda grossa se mantém constante. Isso mostra que os aerossóis de queimada estão praticamente todos dentro da moda fina. Além disso, a concentração numérica total aumenta 10 vezes, atingindo 2200 cm^{-3} , e a concentração de *Black Carbon* chega em média, a 235 e 41 ng/m^3 na moda fina e grossa respectivamente. Além disso, o AOD (500 - 550 nm) que antes era praticamente zero, agora se aproxima de 1. Assim, fica claro que o aumento de partículas é considerável na estação seca, com influências notáveis no AOD. O mesmo também mostra medidas semelhantes no sul da Amazônia, próximo do arco do desflorestamento, com valores ainda mais altos de concentração e profundidade óptica. Por fim, a discussão acima deixa claro que na estação chuvosa as concentrações de partículas são muito menores que na seca. Em vista disso, [Andreae et al. \(2018\)](#) respondeu recentemente qual é a fonte dos aerossóis que sustentam a população de CCNs na camada limite planetária (PBL - do inglês, *Planetary Boundary Layer*) em condições limpas. Como será explicado adiante, esses aerossóis provém da formação de partículas no topo da troposfera (UT), que é o principal foco deste trabalho. Pois queremos saber se é possível realizar medidas dessas partículas com o sistema lidar em solo na Amazônia, pertencente ao Laboratório de Física Atmosférica (LFA) do Instituto de Física (IF) da USP, que ao longo do texto, por simplicidade, será usado lidar LFA IF-USP.

Devido a importância dos aerossóis na Amazônia, se torna necessária a utilização de técnicas de sensoriamento remoto capazes de medi-los continuamente por longos períodos de tempo. Entre elas, existem técnicas de sensoriamento remoto ativo, que emitem radiação eletromagnética em comprimentos de onda específicos numa região de interesse e analisam o sinal retroespalhado. A técnica mais conhecida de sensoriamento remoto de aerossóis, nuvens e vapor d'água é a técnica lidar (acrônimo para *Light Detection and Ranging*). Essa técnica permite medir o perfil vertical de aerossóis ao longo do tempo através da emissão

de pulsos de radiação e da detecção dos fótons retroespalhados.

Apesar da importância, não existem muitos trabalhos estudando aerossóis com dados de lidar na Amazônia. Baars et al. (2011) reporta os dados das primeiras medidas de perfil vertical de aerossóis a longo prazo de lidar na Amazônia, durante os projetos EUCAARI (Kulmala et al., 2011) e AMAZE-08 (Martin et al., 2010) em 2008. Seu principal achado foi documentar o transporte de poeira e fumaça do Saara para a Amazônia durante a estação chuvosa. Isso devido a advecção dos ventos, que transportam poeira e fumaça das queimadas na África (durante a estação seca na África) para a Amazônia, como ilustrado na figura 1.1. Foi observado que os perfis de fração de poeira detectados pelo lidar em maio de 2008 tem 100% de poeira, ou seja, sem fração de fumaça. Esse período coincide com o final do período de queimadas na África (maio) e reforça a ideia de transporte. Contudo, antes desse período, a fumaça da África esteve presente em muitos perfis de lidar na Amazônia. Dentre todos eles, 32% foram afetados pelas partículas emitidas na África, contribuindo com mais de 50% do AOD (532 nm) total na metade desses casos. Pôde-se observar um pico no valor absoluto de AOD associado à fumaça de 1,5, durante o mês de fevereiro.

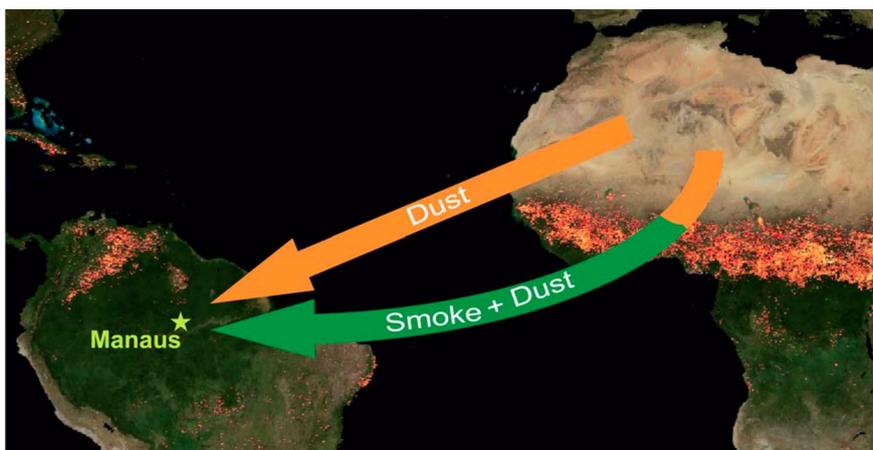


Figura 1.1: Ilustração do transporte de poeira do Saara e fumaça das queimadas na África em direção à Amazônia durante a estação chuvosa. A estrela representa a localização do lidar. Figura adaptada de Baars et al. (2011).

Outro trabalho que se utilizou de dados de lidar na Amazônia foi desenvolvido por Marengo et al. (2016). Motivado pela dificuldade dos modelos em representar corretamente a estrutura vertical dos aerossóis, o autor desenvolveu um estudo comparando dados de aerossóis captados pelo lidar, com a saída de modelos voltados para o estudo de aerossóis na estação seca na Amazônia. Nesse período, os dados do lidar detectaram duas camadas de aerossóis. A primeira se estendia da superfície até 1 e 1,5 km, com coeficientes de extinção entre 150 e 300 Mm^{-1} . A segunda era uma camada acima, podendo chegar até 4 e 6 km, com extinção de aproximadamente 250 Mm^{-1} . O autor sugere que camadas mais próximas da superfície podem ser formadas por plumas de fumaça fresca, e camadas mais

elevadas, por plumas de fumaça envelhecida. Em seguida, dois modelos foram comparados com os dados observacionais, um de alta resolução (Met Office Unified Model, Met-UM) e outro de baixa resolução (European Centre for Medium-range Weather Forecasts, ECMWF-MACC). Ambos os modelos conseguiram representar bem o comportamento geral dos perfis de coeficiente de extinção e profundidade das camadas de aerossóis. Contudo, altos valores de extinção, entre 1000 e 1500 Mm^{-1} (com AOD entre 1 e 1,8), detectados pelas plumas individuais e na vizinhança de nuvens, não foram bem representados pelos modelos. Por fim, o estudo mostrou o poder do lidar no mapeamento dos aerossóis, com alta resolução vertical e temporal. Além de demonstrar como validar modelos de aerossóis com observações de lidar.

O potencial de observações de lidar dos aerossóis das queimadas na Amazônia também foi demonstrado por [Barbosa et al. \(2014\)](#), que reporta a análise da performance, e validação dos dados do lidar LFA IF-USP (seção 3.2) instalado na Amazônia central (no sítio EMBRAPA, em 2,89° S e 59,97° W). A validação foi feita através da comparação com observações de AOD da rede de fotômetros AERONET (seção 3.1.4). Durante uma semana de tomada de dados, de 30 de agosto a 6 de setembro de 2011, foi detectada uma camada de aerossóis entre 1 e 2,5 km. Tanto na análise a partir do sinal elástico, quanto a partir do sinal Raman, foram observados valores de retroespalhamento acima de 3 $\text{Mm}^{-1} \text{sr}^{-1}$ dentro da pluma, com extinção por volta de 150 Mm^{-1} , compatível com valores típicos de aerossóis de queima de biomassa envelhecidos e transportados por longas distâncias ([Baars et al., 2012](#)). Isso pôde ser confirmado pelo cálculo da retro-trajetória dos aerossóis pelo modelo HYSPLIT ([Stein et al., 2015](#)), combinado com imagens de satélites de monitoramento de focos de queimada do INPE. A figura 1.2 mostra a retro-trajetória dos aerossóis a partir do sítio EMBRAPA, e todos focos de queimada no período de tomada de dados. Podemos observar que poderia haver uma fração de aerossóis marinhos chegando no sítio, contudo, eles são mais facilmente lavados pela chuva e tem lidar ratio em torno de 30 sr, diferente dos lidar ratios observados pelo canal Raman do lidar, entre 45 e 65 sr. Assim, as propriedades ópticas medidas durante o período estudado tem, de fato, origem nas queimadas. Por fim, seus respectivos AODs (355 nm) variam entre 0,05 e 0,75, compatíveis com dados da AERONET.

Diante da discussão acima, fica evidente a importância da técnica lidar no mapeamento dos aerossóis na Amazônia, principalmente para resolver a distribuição vertical das partículas. Isso vem de encontro aos recentes resultados de [Andreae et al. \(2018\)](#), que reporta o perfil de concentração numérica de aerossóis medidos pela aeronave HALO durante o experimento ACRIDICON-CHUVA ([Wendisch et al., 2016](#)). As medidas da aeronave mostraram uma concentração numérica média de partículas de 7700 cm^{-3} na UT, sendo aproximadamente 90 % de partículas ultrafinas, e que essa concentração e fração ultrafina diminuem em direção a superfície. [Wang et al. \(2016\)](#) mostra evidências do transporte das partículas ultrafinas na UT dentro da PBL, em casos de convecção profunda

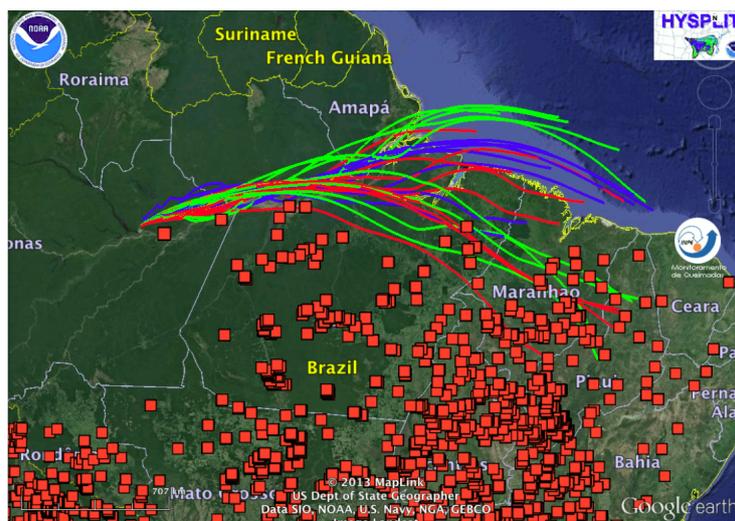


Figura 1.2: Retro-trajetória dos aerossóis a partir do sítio experimental EMBRAPA, em 1,5 km começando no dia 3 de setembro de 2011. As imagens de satélite, mostrando os focos de queimadas entre 30 de agosto a 6 de setembro, foram obtidas no website do INPE (Instituto Nacional de Pesquisas Espaciais), que monitora as queimadas e o desflorestamento no Brasil. Figura adaptada de [Barbosa et al. \(2014\)](#).

na Amazônia. Durante a estação chuvosa, em 19 de Março de 2014, foi identificado um evento de precipitação entre 4:00 - 6:30 na torre ATTO (do inglês *Amazon Tall Tower Observatory*, localizada ao meio da floresta Amazônica, no norte do Brasil). Nesse período, a moda dominante em número de partículas dentro da PBL, centrada em 200 nm (moda de acumulação), passou para 50 nm (moda de Aitken). Além disso, a concentração numérica total de partículas (somando a contribuição das duas modas) se manteve constante depois do evento, sugerindo que durante a precipitação as partículas maiores são lavadas e repostas pelas partículas ultrafinas. Por fim, dentro da PBL, foi observado que as partículas cresciam até 100 nm, atingindo o tamanho crítico para atuar como um CCN. Logo, elas alimentam a formação de nuvens e consequentemente a chuva na região durante a estação chuvosa.

Além de tudo, diferente de outras regiões do mundo, dificilmente observou-se a formação de uma moda de nucleação dentro da PBL, que simbolizaria a formação de partículas ultrafinas dentro dessa camada. Neste âmbito, tanto as observações de [Wang et al. \(2016\)](#), mostrando o transporte vertical de partículas ultrafinas para dentro da camada limite planetária, quanto as altas concentrações de aerossóis ultrafinos na UT reportadas por [Andreae et al. \(2018\)](#), sugerem que a formação de partículas ocorre na UT. Onde o último mostra que a retro-trajetória dos aerossóis na UT cruzam eventos de convecção profunda até 120 h antes das medidas. A análise química mostrou que nesse nível, há predominância de partículas orgânicas, com um pouco de sulfatos e nitratos. Esses aerossóis orgânicos teriam sido produzidos pela oxidação do isopreno e de outros compostos biogênicos orgânicos voláteis (BVOCs) produzidos pela floresta. Além disso, não foram relatados traçadores de combustão na UT, indicando que não houve transporte para cima de aerossóis da PBL

(camada influenciada pela queima de biomassa). Por fim, baseando-se nas observações, [Andreae et al. \(2018\)](#) propôs um modelo conceitual que fecha o ciclo dos aerossóis na estação chuvosa na Amazônia, ilustrado na figura 1.3

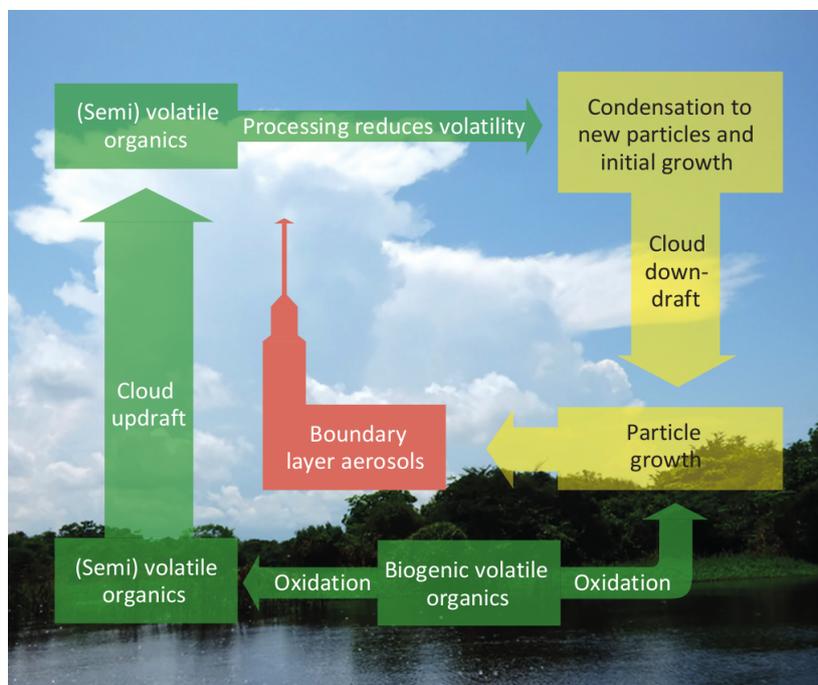


Figura 1.3: Modelo conceitual proposto por [Andreae et al. \(2018\)](#) que explica o ciclo de vida dos aerossóis na estação chuvosa na Amazônia. Figura adaptada de [Andreae et al. \(2018\)](#).

O modelo propõe a produção de BVOCs pela floresta, como isopreno e terpenos, que rapidamente são oxidados em IEPOX-SOA (do inglês, *Isoprene Epoxydiols-Derived Secondary Organic Aerosol*) e HOMs/ELVOs (do inglês, *Highly Oxygenated Multifunctional organic compounds* e *Extremely Volatility Organic compounds*), respectivamente. Em seguida, eles são transportados através de correntes de ar ascendentes para UT, através de sistemas convectivos profundos. Na UT, como a temperatura é baixa, a taxa de nucleação aumenta, formando os *clusters* iniciais. O processo de crescimento inicial diminui a volatilidade desses *clusters*, aumentando a probabilidade de condensação e o seu crescimento. Por sua vez, o crescimento destas faz com que a maioria das partículas atinjam a moda de Aitken e algumas a moda de acumulação. Estas novas partículas são transportadas para a camada limite planetária por correntes de ar descendentes, também originadas por sistemas convectivos profundos. Dentro dessa camada, os aerossóis continuam crescendo pela condensação de aerossóis orgânicos da floresta até atingirem o tamanho crítico para atuarem como CCN, fechando o ciclo de vida deles. Logo, o modelo explica em detalhes, o processo de alimentação de CCNs dentro da PBL, impactando a formação de nuvens e precipitação em condições limpas (sem influência de aerossóis de queimadas) na Amazônia.

Uma vez que o processo de formação de partículas na UT foi descoberto por [Wang et al. \(2016\)](#) e [Andreae et al. \(2018\)](#), o principal objetivo deste trabalho é realizar um estudo baseado em simulações numéricas para determinar se é possível detectar os aerossóis ultra-finos na UT com um sistema lidar em superfície, parecido com o do LFA IF-USP ([Barbosa et al., 2014](#)). Isso possibilitaria melhorar a compreensão desses aerossóis, contribuindo com sua representação em modelos climáticos.

Sendo assim, os próximos capítulos se dividem entre fundamentação teórica, metodologia, resultados e conclusão. O primeiro contém toda a teoria necessária para simular e inverter o sinal do lidar, recuperando os coeficientes de retroespalhamento e extinção. Também tem uma breve explicação sobre as fontes de erros associadas à incerteza desses coeficientes. A metodologia faz uma breve descrição técnica do lidar LFA IF-USP e da simulação das propriedades ópticas dos aerossóis pelo código Mie, usados na equação do lidar. Ela também descreve a aplicação do algoritmo de inversão e dos testes estatísticos para detectar os aerossóis. Por sua vez, a seção de resultados começa com uma análise estatística do sinal luminoso detectado pelo lidar LFA IF-USP ([Barbosa et al., 2014](#)). Em seguida, mostramos o comportamento do sinal teórico simulado ao variar a eficiência do equipamento e as propriedades físicas (concentração mássica na UT) e químicas (índices de refração) dos aerossóis. Na sequência, discutimos a qualidade do ajuste molecular na inversão do sinal, que é uma das fontes de erros aleatórios e sistemáticos dos coeficientes recuperados. Então analisamos o efeito da variação da concentração e da eficiência do lidar na probabilidade de detecção da camada de aerossóis na UT. Por fim, mostramos o efeito da subestimação ou superestimação do lidar ratio dos aerossóis, outra fonte de erro sistemático dos coeficientes de retroespalhamento e extinção. Concluindo o trabalho, todos os principais resultados e discussões obtidos estão resumidos no capítulo de conclusões.

Capítulo 2

Fundamentação Teórica

2.1 Breve introdução aos aerossóis atmosféricos

Os aerossóis são partículas microscópicas, líquidas ou sólidas suspensas no ar atmosférico (Seinfeld and Pandis, 2006). Existem diversos tipos de aerossóis na natureza, com diferentes composições químicas, formas e tamanhos. Alguns exemplos são partículas de poeira, grãos de pólen, bactérias, entre outros. Inicialmente, eles podem ser classificados em dois tipos, os primários e secundários. Os primários são emitidos na forma de partícula na natureza. Os secundários são emitidos como espécies de gases que sofrem transformações químicas até virarem partículas. Esses gases são chamados de precursores e se transformam através de nucleação ou condensação em cima da superfície de partículas pré-existentes.

Alguns exemplos de aerossóis primários são: Spray marinho, poeira do deserto, fuligem e pólen. O primeiro é emitido devido a fricção entre a água do mar com os ventos e a quebra de ondas. O segundo também é emitido através da fricção do solo com o vento. Fuligem é um tipo de aerossol antrópico, ou seja, emitido pelo ser humano, através de veículos de transporte e indústrias. Por fim, o pólen é emitido pelas plantas com flores.

Em contrapartida, alguns exemplos de aerossóis secundários são: sulfatos e aerossóis biogênicos secundários. O primeiro pode ser obtido através de emissões de dióxido de enxofre por erupções vulcânicas, veiculares e industriais. Esse composto é o principal precursor do sulfato. Enquanto que o principal precursor dos aerossóis secundários são os compostos orgânicos voláteis (VOCs) emitidos por plantas e algas.

Também podemos classificar os aerossóis de acordo com as fontes de emissão, sendo naturais ou antrópicos. Os naturais são emitidos pela própria natureza, e os antrópicos pela ação humana. Contudo, mesmo conseguindo classificá-los de acordo com a sua origem e fontes, os aerossóis também se diferem em tamanho, forma e composição química. A figura 2.1 mostra algumas fotos de aerossóis primários, tiradas com um microscópio eletrônico. Nela, podemos perceber que mesmo aqueles de mesma composição química, como o sal marinho, acabam possuindo diferentes formas e tamanhos.

Em relação ao tamanho, populações de aerossóis podem ser classificadas de acordo com a moda da sua distribuição, normalmente representadas por funções lognormal. A primeira moda é chamada de nucleação, e engloba aerossóis recém formados por gases

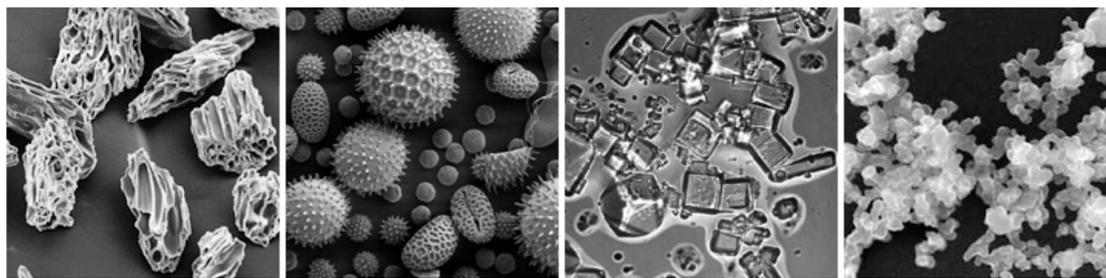


Figura 2.1: Diferentes tipos e tamanhos de aerossóis. Partindo do painel da esquerda, temos cinzas de vulcão, pólen, sal marinho e fuligem. Figura adaptada de <https://earthobservatory.nasa.gov>, acessado em 7 de abril de 2022.

precursores. Depois, quando esses aerossóis crescem um pouco mais, formando “clusters” de partículas, eles passam a fazer parte da moda de Aitken. A terceira moda é chamada de acumulação, e engloba aerossóis primários com diâmetros maiores. Por fim, a moda grossa é composta pelos aerossóis com maior diâmetro entre as modas anteriores, também constituída por aerossóis primários. Porém, essa é apenas uma visão geral, a discussão em detalhes de cada moda será apresentada adiante. Além das propriedades ópticas dos aerossóis, que descrevem sua interação com a radiação eletromagnética.

2.1.1 Propriedades físicas

Uma população de aerossóis também pode ser classificada a partir da sua distribuição de tamanho. Os aerossóis são separados por cada moda da distribuição, sendo elas de nucleação, Aitken, acumulação e grossa. A moda de nucleação engloba os aerossóis secundários, menores que 10 nm (Seinfeld and Pandis, 2006), que acabaram de ser formados. Eles foram formados por moléculas de gás orgânicas ou inorgânicas, pelo processo de nucleação. Esse processo é particularmente importante para a motivação deste trabalho, visto que as partículas ultrafinas na UT são formadas inicialmente por nucleação.

A nucleação depende das colisões aleatórias das moléculas de um gás. Em determinado momento, essas colisões geram energia suficiente para agregar as moléculas, formando um *cluster*. A formação desses agregados de moléculas depende da temperatura e da volatilidade do gás. O primeiro está relacionado com a energia cinética das moléculas e o livre caminho médio na atmosfera. O segundo está relacionado à probabilidade de duas moléculas se manterem unidas após uma colisão. Probabilidades maiores significam uma volatilidade menor e vice-versa. A nucleação pode ocorrer tanto em reações orgânicas quanto inorgânicas. Em especial, as partículas ultrafinas que estamos tentando detectar na UT, se formam por reações orgânicas. Assim como comentado no capítulo 1, os BVOCs emitidos pela floresta são transportados até a UT por correntes de ar ascendentes durante eventos de convecção profunda. Nesse nível, eles são oxidados, tornando-se menos voláteis e aumentando a probabilidade de formação de *clusters* estáveis. Essas partículas sofrem

nucleação, formando pequenos *clusters* estáveis, ou seja, maiores que o tamanho crítico necessário para não retornarem à fase de vapor. Por condensação, ou seja, deposição de vapor na sua superfície, estas novas partículas podem crescer até atingirem o tamanho da moda de Aitken.

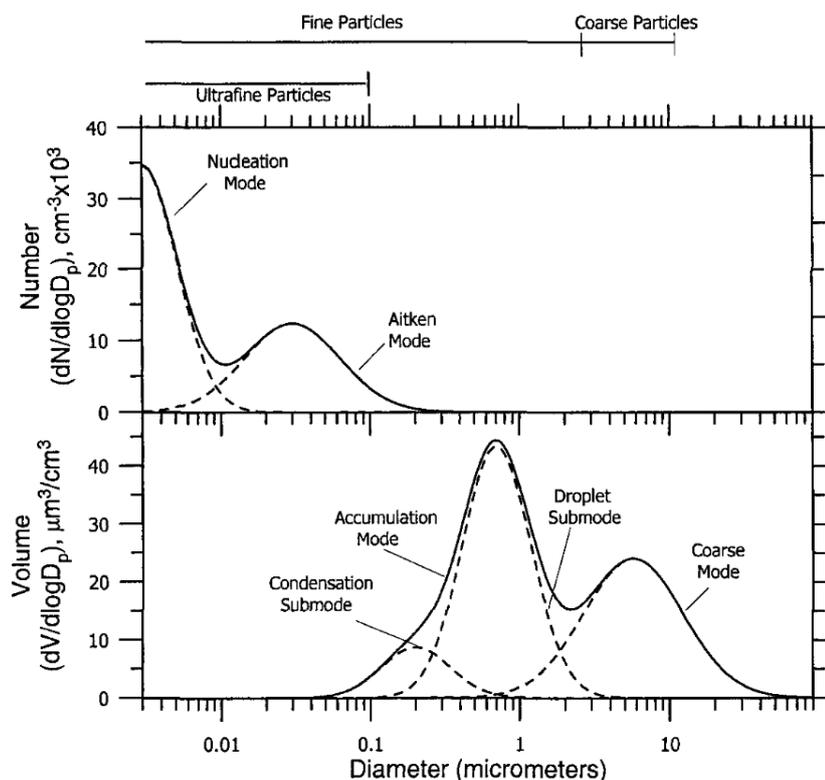


Figura 2.2: Distribuições de tamanho. O painel superior mostra a distribuição numérica das partículas consideradas ultrafinas ou finas. O painel inferior mostra a distribuição volumétrica de partículas maiores, consideradas dentro da categoria fina e grossa. Figura adaptada de Seinfeld and Pandis (2006, capítulo 8).

Segundo Seinfeld and Pandis (2006), a moda de Aitken é composta pelos aerossóis secundários da moda de nucleação, que cresceram através da condensação de vapores na sua superfície. Os diâmetros dessa moda ficam em torno de 10 a 100 nm. A moda de acumulação é composta por aerossóis primários, secundários - crescidos por condensação, e partículas pequenas que coagularam. A coagulação é a união de duas partículas menores em uma só partícula maior através de uma colisão. Os diâmetros dessa moda estão aproximadamente entre 0,1 e 2 μm . Por fim, a moda grossa é composta por aerossóis primários, como pólen, bactérias, restos de plantas e gotas de nuvem. Os diâmetros dessa moda estão aproximadamente entre 2 e 50 μm (podendo passar desse limite no caso do pólen). A figura 2.2 ilustra as diferentes modas num gráfico de concentração em número (painel superior) e volume (painel inferior). Isso foi feito para poder comparar todas as modas, visto que partículas grandes têm um número muito inferior em relação às pequenas, e um volume (ou massa) muito superior. A figura também destaca outra classificação de

tamanho, onde partículas menores que $0,1 \mu m$ são chamadas de ultrafinas, menores que $2,5 \mu m$ são chamadas de finas e maiores que $2,5 \mu m$ são chamadas de grossas.

Note que os intervalos de tamanho muitas vezes cobrem mais de uma ordem de magnitude, por isso utilizamos a escala logarítmica no intervalo de tamanho. Além disso, cada moda possui uma concentração e um tamanho efetivo (R_{eff}) que iremos definir mais a frente. As distribuições de cada moda são bem descritas por função densidade de probabilidade do tipo lognormal. Assim, as distribuições de tamanho em número de uma população com M modas com $n_i(\ln R)$ distribuições de tamanho cada uma, é dada por:

$$f(N_{0,i}, \sigma_{g,i}, R_{eff,i}) = \sum_{i=1}^M n_i(\ln R) = \sum_{i=1}^M \frac{N_{0,i}}{\sqrt{2\pi} \ln \sigma_{g,i}} \exp \left[-\frac{(\ln R - \ln R_{eff,i})^2}{2 \ln \sigma_{g,i}^2} \right] \quad (2.1)$$

Com

$$n_i(\ln R) = \left(\frac{dN}{d \ln R} \right)_i \quad (2.2)$$

Onde $N_{0,i}$, $R_{eff,i}$ e $\sigma_{g,i}$ são a concentração numérica total, raio efetivo e desvio padrão geométrico das distribuições respectivamente. Esses são os parâmetros da função 2.1, escrita em número de partículas por cm^3 de ar (dN) no intervalo infinitesimal $d \ln R$. Essa função também pode ser escrita em termos da área ($n_i^s(\ln R)$), volume ($n_i^v(\ln R)$) e massa ($n_i^m(\ln R)$). Portanto, assumindo que as partículas são esféricas com densidade ρ_i em cada moda, as funções podem ser obtidas a partir de $n_i(\ln R)$ pelas seguintes relações:

$$n_i^s(\ln R) = 4\pi R^2 n_i(\ln R) \quad [\mu m^2 cm^{-3}] \quad (2.3)$$

$$n_i^v(\ln R) = \frac{4\pi}{3} R^3 n_i(\ln R) \quad [\mu m^3 cm^{-3}] \quad (2.4)$$

$$n_i^m(\ln R) = \rho_i \frac{4\pi}{3} R^3 n_i(\ln R) \quad [\mu g cm^{-3}] \quad (2.5)$$

Onde ρ_i é a densidade do aerossol em $\mu g / \mu m^3$. Portanto, podemos descrever as propriedades físicas dos aerossóis em termos do número, superfície, volume e massa. Lembrando que apesar deles terem diferentes formas, como comentado anteriormente, estamos considerando-os esféricos. Também é possível converter as distribuições de tamanho em escala linear a partir de $n_i(\ln R)$ pela seguinte expressão:

$$n_i(R) = \frac{n_i(\ln R)}{R} \quad (2.6)$$

Analogamente, as distribuições $n_i^s(\ln R)$, $n_i^v(\ln R)$ e $n_i^m(\ln R)$ também são convertidas para a escala linear ao dividi-las pelo raio. Além das propriedades físicas, as propriedades

ópticas também são fundamentais para a simulação do sinal do lidar neste estudo. Como comentado anteriormente, essas propriedades também dependem das propriedades físicas descritas nessa seção, ou seja, da distribuição de tamanho. Assim sendo, a próxima seção descreve em detalhes as principais propriedades ópticas dos aerossóis, separadas entre intrínsecas e extrínsecas, onde a última também depende da concentração das partículas em uma camada de ar.

2.1.2 Propriedades ópticas

As propriedades ópticas das partículas podem ser divididas entre intrínsecas e extrínsecas. As propriedades intrínsecas se referem às características ópticas de uma partícula, ou população de um mesmo tipo de partícula. Essas características determinam como a radiação eletromagnética interage com cada uma das partículas individualmente. A interação pode ser por espalhamento e por absorção, e depende do comprimento de onda da radiação incidente. Um exemplo de propriedade intrínseca é o coeficiente de absorção mássico (*mass absorption coefficient*, em inglês). Por outro lado, as propriedades extrínsecas se referem às características ópticas da população de partículas em si. Dessa forma, elas dependem da quantidade de partículas na população e determinam quanto da radiação eletromagnética é extinta por absorção e espalhamento ao se propagar na presença dessa população de partículas. Um exemplo de propriedade extrínseca é o coeficiente de absorção.

Neste contexto, esta seção descreve separadamente as propriedades ópticas intrínsecas e extrínsecas das partículas atmosféricas de maneira geral. Porém, a descrição detalhada dos cálculos dessas propriedades está na seção 2.3, junto com a explicação de cada parâmetro da equação do lidar.

Propriedades intrínsecas

Entre as propriedades ópticas intrínsecas, temos a seção de choque diferencial de espalhamento $d\sigma/d\cos\Theta$, seção de choque de extinção $\sigma_{ext}(\lambda)$, seção de choque de espalhamento $\sigma_{scat}(\lambda)$, seção de choque de absorção $\sigma_{abs}(\lambda)$, eficiência de extinção (Q_{ext}), eficiência de espalhamento (Q_{scat}), eficiência de absorção (Q_{abs}), albedo simples $\omega(\lambda)$ e parâmetro de assimetria “g”. A seção de choque diferencial de espalhamento (ou função de fase) é um parâmetro adimensional, que mostra a distribuição angular da energia espalhada em função do ângulo de espalhamento Θ . Ela é normalizada em uma esfera infinitesimal pela seguinte expressão:

$$\int_0^{2\pi} \int_0^\pi \frac{d\sigma_{scat}}{d\cos\Theta} \sin\Theta d\Theta d\phi = 4\pi \quad (2.7)$$

Onde Θ é o ângulo entre a radiação incidente e espalhada, e as seções de choque diferenciais das moléculas de ar e dos aerossóis são dadas por teoria de espalhamento

Rayleigh e Mie (Liou, 2002) respectivamente. A primeira aproxima as moléculas por dipolos elétricos, e descreve sua interação com um campo elétrico. A segunda leva em consideração a dimensão dos aerossóis, considerada esférica, e também descreve sua interação com uma onda eletromagnética.

A complexidade da função de fase depende da sua anisotropia, que aumenta com o tamanho das partículas espalhadoras. Por essa razão, a função de fase das moléculas, com $R < \lambda$ são mais simples e simétricas. Enquanto que partículas maiores, com $R > \lambda$, tem função de fase mais complexa, com um lóbulo frontal maior. Em geral, o nível de complexidade pode ser estimado pelo parâmetro de tamanho, definido como a razão entre o perímetro da partícula e o comprimento de onda da radiação incidente ($x = 2\pi R/\lambda$). Assim, quanto maior “ x ”, mais complexa é a função de fase, e maior é o espalhamento frontal comparado com o traseiro. A figura 2.3 mostra alguns gráficos polares da função de fase para um comprimento de onda de $0,5 \mu m$ incidindo em partículas cada vez maiores.

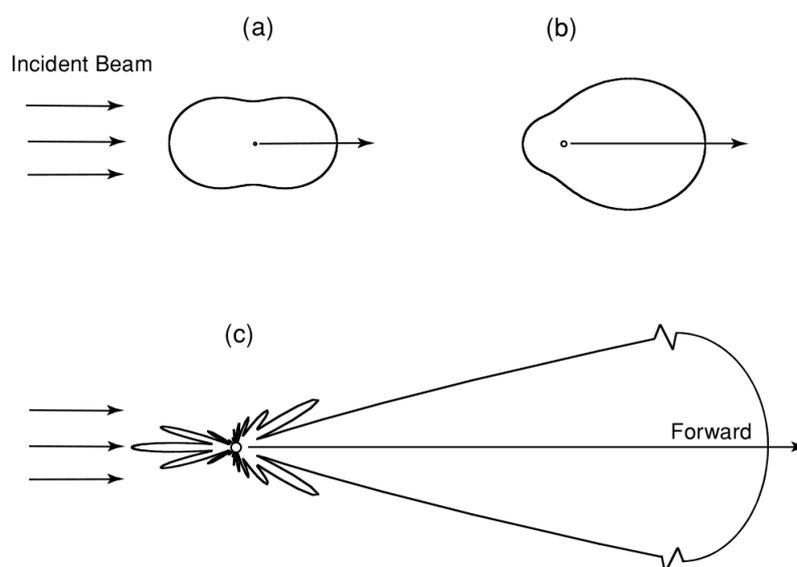


Figura 2.3: Funções de fase para um feixe incidente com comprimento de onda de $0,5 \mu m$ em uma partícula com: (a) $R = 10^{-4} \mu m$, ou $x = 1,2 \cdot 10^{-3}$, (b) $R = 0,1 \mu m$, ou $x = 1,2$, (c) $R = 1 \mu m$, ou $x = 12$. Figura adaptada de Liou (2002, capítulo 1).

Essa figura mostra que o espalhamento frontal da energia aumenta muito com o parâmetro de tamanho x , quebrando a simetria inicial para uma partícula bem pequena. O parâmetro de tamanho também permite determinar o regime de espalhamento, Mie ou Rayleigh. Se $x \ll 1$, estamos no regime de espalhamento Rayleigh, que é o caso de moléculas e aerossóis na moda de nucleação. Mas se $x > \sim 1$, estamos no regime de espalhamento Mie, que é o caso para a maioria dos aerossóis atmosféricos, para radiações próximas do espectro visível.

Além do tamanho, os índices de refração, provenientes da composição química da partícula, determinam as eficiências de extinção, espalhamento e absorção. As eficiências

são definidas como o quociente entre as suas respectivas seções de choque (σ_{ext} , σ_{scat} e σ_{abs}) pela área da seção reta da partícula esférica (πR^2). A figura 2.4 mostra o gráfico da eficiência de espalhamento em função do parâmetro de tamanho. Cada curva corresponde a um índice de refração imaginário (denotado por m_i), e todas têm parte real fixa em 1,5. Podemos perceber que a relação é bastante complexa. Porém, quando a parte imaginária é nula, não há absorção, e temos um pico maior para x próximo de 4. Isso mostra que para valores de x pequenos, próximos de 4, a eficiência de espalhamento é maior para m_i menor. Isso ocorre porque parte da radiação que poderia ser destinada à absorção fica disponível para o espalhamento. Contudo, para x muito grande, acima de 50, esse comportamento muda, pois a eficiência de $m_i = 1$ fica maior que $m_i = 0,1$ e $0,01$. Porém, de maneira geral, quanto maior o índice de refração imaginário, maior é a absorção, e quanto maior o índice de refração real maior é o espalhamento.

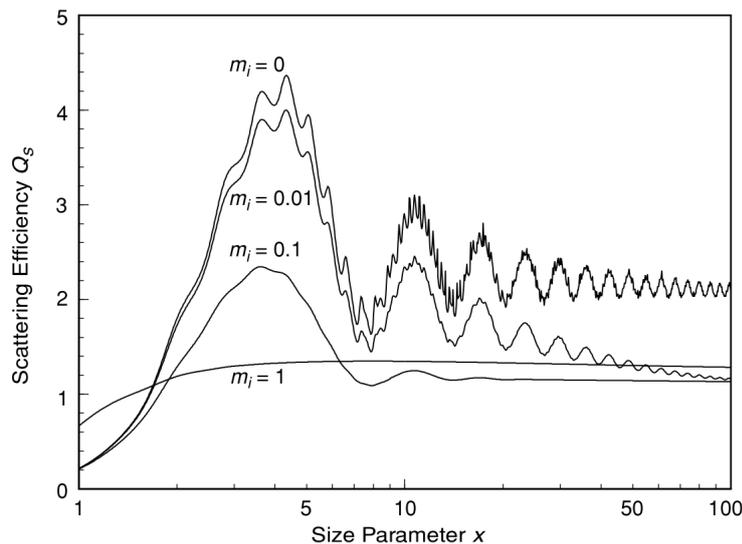


Figura 2.4: Eficiência de espalhamento em função do parâmetro de tamanho para diferentes índices de refração imaginário e parte real fixa em 1,5. Figura adaptada de Liou (2002, capítulo 5).

As seções de choque de espalhamento e absorção são as áreas de espalhamento e absorção efetivas. Elas representam a remoção de energia do feixe inicial devido ao espalhamento e a absorção. A seção de choque de extinção é a soma das duas anteriores, e representa a energia total removida do feixe incidente. A seção 2.3 explica como as seções de choque são calculadas para as moléculas de ar e para os aerossóis que estamos simulando. No caso das moléculas, a equação 2.20 mostra que sua seção de choque de espalhamento tem uma dependência espectral muito forte, caindo com o inverso de λ^4 . Portanto, quanto menor o comprimento de onda, maior é a energia perdida por espalhamento. Por outro lado, a dependência espectral da maioria dos aerossóis atmosféricos, dentro do regime de espalhamento Mie, cai num intervalo entre λ^2 e $\lambda^{0,7}$. Em vista disso, podemos ter uma noção de que o feixe em 355 nm emitido pelo sistema lidar vai ter uma extinção molecular

forte por espalhamento Rayleigh. Por outro lado, apesar da extinção pelos aerossóis ter uma dependência espectral menor, eles em geral possuem uma eficiência de espalhamento maior.

Por sua vez, o albedo simples é a fração do feixe incidente que foi extinto por espalhamento. Ele é obtido ao dividir a seção de choque de espalhamento pela seção de choque total (ou de extinção):

$$\omega(\lambda) = \frac{\sigma_{scat}(\lambda)}{\sigma_{ext}(\lambda)} \quad (2.8)$$

Por fim, o parâmetro de assimetria (equação 2.9) é definido como o primeiro momento da função de fase. Ele representa o grau de assimetria da função. Se $g = 1$, toda a radiação é espalhada pelo lóbulo frontal, se $g = -1$ toda radiação é espalhada na direção traseira.

$$g = \int_{-1}^1 \frac{d\sigma_{scat}}{d\cos\Theta} \cos\Theta d\cos\Theta \quad (2.9)$$

Propriedades extrínsecas

Algumas das propriedades ópticas extrínsecas das partículas são: coeficiente de extinção volumétrico α (em m^{-1}), coeficiente de retroespalhamento β (em $m^{-1}sr^{-1}$), e profundidade óptica τ (ou AOD). Elas são obtidas a partir das propriedades ópticas intrínsecas e do perfil de concentração das partículas (aerossóis ou gases). Primeiro, a extinção determina a porção de um feixe de radiação que é extinto por espalhamento e absorção ao passar por um meio com concentração numérica N (em cm^{-3}) de partículas. Assumindo um meio homogêneo e desconsiderando emissões térmicas (radiação de corpo negro) e espalhamentos múltiplos, a intensidade da radiação emergente ao passar por um meio de espessura s é dada por:

$$I_{\lambda}(s) = I_{\lambda}(0) \exp\left(-\int_0^s N(s')\sigma_{ext}(\lambda) ds'\right) \quad (2.10)$$

Onde $I_{\lambda}(0)$ é a intensidade da radiação incidente, e o termo dentro da integral é justamente o coeficiente de extinção volumétrico. Ela é definida como o produto entre a seção de choque de extinção pela concentração numérica das partículas que constituem o meio. No caso da atmosfera, o meio não é homogêneo, podendo ter diferentes tipos de aerossóis e moléculas de gás. Nesse caso, a extinção total é uma somatória da extinção de cada constituinte atmosférico. Além disso, para representar um feixe de radiação subindo ou descendo na atmosfera, substituímos “ s ” por “ z ” para representar a altitude. Nesse caso, a equação 2.10 fica:

$$I_{\lambda}(z) = I_{\lambda}(0) \exp\left(-\int_0^z \alpha(z', \lambda) dz'\right) \quad (2.11)$$

Onde $\alpha(z, \lambda) = N(z)\sigma_{ext}(\lambda)$ pode incluir a contribuição de diferentes espécies de partículas com diferentes concentrações e seções de choque ao longo de “z”. Em seguida, a profundidade óptica (τ) é definida pela integral do coeficiente de extinção volumétrico ao longo da vertical, ou seja, o termo dentro da exponencial da equação 2.11 entre a superfície e uma certa altitude “z”. Sua equação é dada por:

$$\tau = \int_0^z \alpha(z', \lambda) dz' \quad (2.12)$$

Porém, no caso da radiação solar que incide na atmosfera, podemos falar da profundidade óptica de toda a coluna atmosférica (ou seja, da superfície ao topo da atmosfera). Outro caso particular seria considerar a profundidade óptica de uma certa camada da atmosfera (i.e. entre z_1 e z_2), por exemplo, para uma camada de aerossóis ou uma nuvem. Por fim, o coeficiente de retroespalhamento (β) determina a porção da energia do feixe incidente espalhada para trás (em 180°). No caso do lidar, que detecta justamente os fótons retroespalhados na direção do sistema receptor, esse coeficiente é quem determina a intensidade do sinal. Ele é definido como o produto entre a concentração e a seção de choque diferencial de espalhamento 180° para trás. A equação abaixo mostra o retroespalhamento de uma única espécie de partícula.

$$\beta(z, \lambda) = N(z) \frac{d\sigma_{scat}}{d\cos\Theta}(z, \pi, \lambda) \quad (2.13)$$

Onde a concentração numérica $N(z)$ varia ao longo da atmosfera. A expressão mais geral do retroespalhamento consideraria diferentes espécies de aerossóis e moléculas. Tanto $\alpha(z, \lambda)$ como $\beta(z, \lambda)$ são parâmetros da equação do lidar, como veremos adiante. O coeficiente de extinção é responsável pela atenuação do sinal conforme o feixe emitido atinge altitudes cada vez maiores, enquanto o coeficiente de retroespalhamento determina a intensidade do sinal detectado. A descrição de todos os parâmetros da equação do lidar e os cálculos de cada propriedade óptica dos gases e aerossóis estão explicados na seção 2.3.

2.2 Funcionamento geral de um sistema Lidar

O sistema lidar pode ser dividido em duas partes, uma parte transmissora e uma receptora, como na figura 2.5. A parte transmissora é responsável por emitir um feixe de radiação em comprimentos de onda específicos, que vão se propagar pela atmosfera após sair do equipamento. Parte da energia inicial do feixe é perdida pelo espalhamento com gases e aerossóis presentes na atmosfera, enquanto que os fótons espalhados dentro do campo de visão (*field of view*) da parte receptora (180° para trás, ou retroespalhamento) constituem o sinal do lidar. Essa parte, como o nome diz, é responsável por receber e processar os fótons retroespalhados de volta na direção do equipamento. Os fótons que atingem a área de detecção do telescópio (espelho) seguem um caminho óptico, que passa

por filtros para seleção do comprimento de onda, até chegar ao detector óptico, tipicamente uma fotomultiplicadora (PMT) (Lincel, 2021). No caso de um lidar elástico, detecta-se apenas o mesmo comprimento de onda enviado na atmosfera. No caso de um lidar Raman, detecta-se também outros comprimentos de onda que correspondem ao espalhamento inelástico dos fótons em determinadas moléculas gasosas, como N_2 e H_2O .

A PMT, como o próprio nome diz, multiplica os fótons que foram detectados, produzindo um pulso com milhares de elétrons para cada um deles. Depois, este sinal elétrico é processado por um sistema de aquisição de dados, composto por um conversor analógico digital (ADC) controlado por um computador.

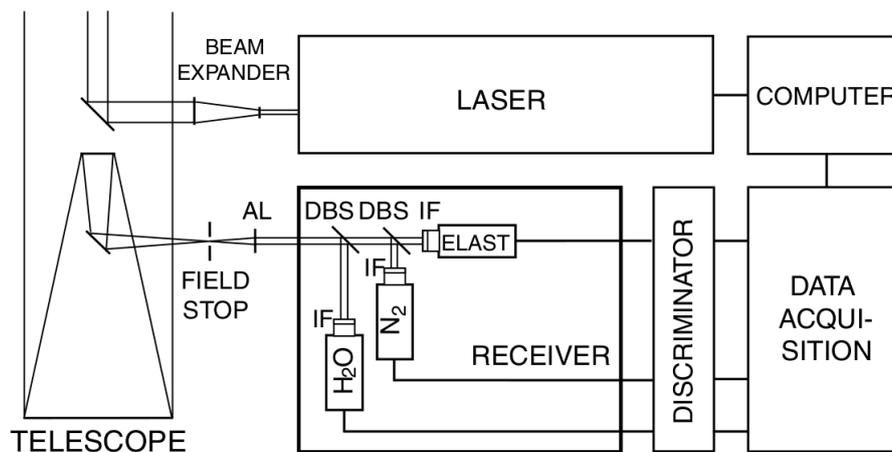


Figura 2.5: Ilustração de um sistema lidar monoaxial, com canais de espalhamento elástico e Raman para o N_2 e H_2O . Figura adaptada de Weitekamp (2006, capítulo 9).

As ADC possuem dois modos de medição, o analógico (AN) e o *photocounting* (PC). Esses modos estão associados a forma como os pulsos de elétrons que saem da fotomultiplicadora (PMT) são medidos, isto é, transformados em sinal digital pela ADC. O modo AN mede a tensão produzida pela sobreposição dos pulsos, funcionando bem quando o número de fótons incidente na PMT é alto e o processamento do sinal não é rápido o suficiente para distinguir os pulsos individuais. Assim, o modo AN faz uma medida em mV. Ao contrário, o modo PC tenta contar os pulsos individualmente, funcionando bem quando a intensidade da luz incidente (número de fótons) na PMT é baixa, e portanto, a separação temporal entre os pulsos é maior. Ou seja, o modo PC faz uma medida em MHz, quantos fótons/pulsos foram detectados por segundo.

Em geral, o modo AN é mais eficiente para medir o sinal do lidar em baixas altitudes, onde a intensidade da luz retroespalhada é forte, e não funciona bem em grandes altitudes, onde a intensidade é baixa. De maneira oposta, o modo PC não consegue contar os pulsos elétricos separadamente em baixas altitudes, pois são muitos fótons chegando em intervalos curtos de tempo, sendo mais apropriado para medir o sinal em grandes altitudes. Em altitudes intermediárias, quando a separação temporal entre os pulsos começa a diminuir muito, a ADC pode deixar de contar alguns destes pulsos. Para diminuir esse

efeito, algumas correções de tempo morto (*dead-time*, em inglês) precisam ser feitas no perfil todo, por exemplo, segundo o manual [Lincel \(2021\)](#).

Outro aspecto importante do modo PC é que o número de contagens pode ser tratado seguindo uma distribuição de probabilidade do tipo Poisson. Isso é verdade pois a resposta da fotomultiplicadora é baixa para poucos fótons incidentes, ou seja, não há um ruído de fundo da eletrônica, e a incerteza vem apenas do processo de contagem. No contexto deste trabalho, como queremos detectar o sinal das partículas ultrafinas em grandes altitudes (entre 9 e 15 km de altitude), o melhor modo de detecção para os nossos objetivos é o PC. Por essa razão, utilizamos os dados do canal elástico PC do equipamento do LFA IF-USP para calibrar as simulações que realizamos neste estudo. Os dados utilizados para este fim estão mostrados na série temporal da figura 3.5b, e os detalhes da calibração estão descritos na seção 3.5.1.

2.3 Equação do lidar

A equação que descreve a extinção de um feixe de radiação, tanto no espectro solar quanto termal ao penetrar na atmosfera, é chamada de equação de transferência radiativa (RTE, do inglês *Radiative Transfer Equation*). De maneira geral, essa equação não possui solução analítica, e seus parâmetros precisam ser calculados externamente. Esses parâmetros são justamente as propriedades ópticas extrínsecas discutidas na seção 2.1.2, que são obtidas por medidas de concentração e cálculos de espalhamento (Rayleigh e Mie). Neste cenário, esta seção apresenta a equação do lidar elástico, que é a solução da RTE para a geometria particular de uma sistema lidar. Essa equação descreve o sinal detectado pelo equipamento em função da altitude, ou seja, conforme o feixe é extinto pela atmosfera. Com ela foi possível simular o sinal do lidar LFA IF-USP. Aqui, explicamos todos os parâmetros da equação, que podem ser divididos em duas categorias: (1) os relacionados à performance do equipamento, e (2) os relacionados às propriedades ópticas dos aerossóis e moléculas. Enfim, a equação do lidar elástico ([Weitkamp, 2006](#)) é dada por:

$$P(z, \lambda) = P_0 \frac{c\Delta t}{2} A \eta \frac{O(z)}{z^2} \beta(z, \lambda) \exp\left(-2 \int_0^z \alpha(z', \lambda) dz'\right) \quad (2.14)$$

Onde P_0 , $c\Delta t/2$, A , η e $O(z)$ são a potência do laser, o tamanho do bin vertical iluminado, área do telescópio, eficiência e a função de overlap. Esses são parâmetros relacionados à performance do equipamento. Os outros parâmetros, β e α são os coeficientes de retroespalhamento e extinção respectivamente, eles representam as propriedades ópticas extrínsecas dos aerossóis e moléculas.

Primeiro, em relação aos parâmetros de performance, o tamanho do bin vertical é calculado em relação ao tempo de ida e volta do pulso emitido e detectado respectivamente. Por isso o comprimento do bin é dividido por dois, para contabilizar apenas um dos

tempos, e assim, estimar corretamente seu comprimento. Em seguida, a função de overlap é um termo geométrico do lidar, que depende se o sistema é mono ou bi-axial. O lidar LFA IF-USP é bi-axial (ilustração na figura 2.6a), ou seja, o telescópio está separado por uma distância d_0 do laser. Isso faz com que os primeiros fótons espalhados não sejam todos detectados pelo campo de visão do telescópio. Portanto, o overlap é a fração da sobreposição entre o cone de emissão com o cone de detecção do telescópio. O painel esquerdo da figura 2.6 ilustra a geometria bi-axial e o painel da direita mostra um gráfico típico de overlap desse sistema.

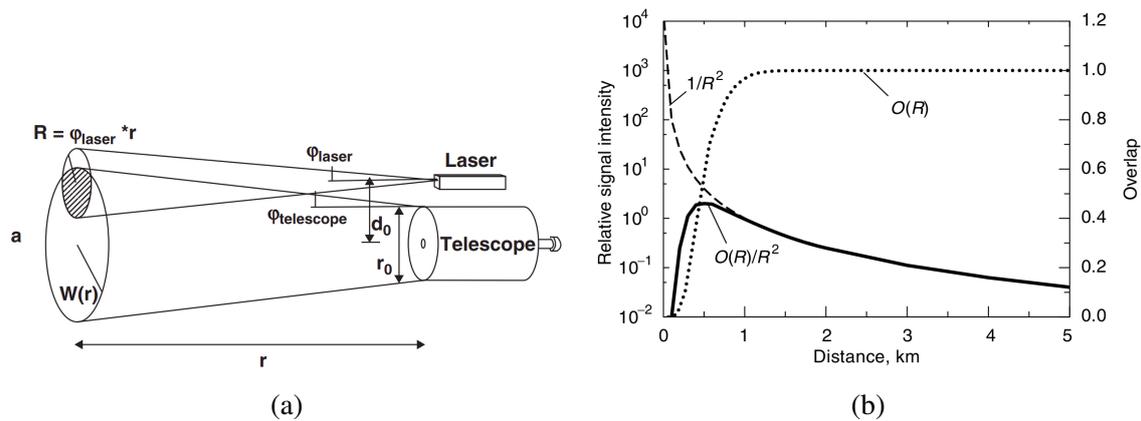


Figura 2.6: (a) Sobreposição entre o cone de emissão do laser com o cone de detecção do telescópio de um sistema lidar bi-axial. Figura adaptada de [Kovalev and Eichinger \(2004\)](#), (b) Função de overlap arbitrária, onde R faz o papel de “ z ”. Essa figura mostra o efeito na intensidade do sinal devido apenas ao fator geométrico do overlap e z^2 . Figura adaptada de [Weitkamp \(2006\)](#).

A área hachurada do painel esquerdo mostra a sobreposição entre o campo de visão do telescópio com o cone de luz do laser. Ao mesmo tempo, o painel da direita mostra a função de overlap, que acima de 1 km é igual a 1, ou seja, a área hachurada da ilustração ao lado está completa, e tudo que é retroespalhado pelo laser é detectado pelo lidar. Em geral, a sobreposição completa ($O(z_0) = 1$) varia de sistema para sistema, podendo ser atingida em 500 m ou até 4 km. Antes disso, a figura 2.6b mostra que os fatores geométricos, $O(z)$ e z^{-2} têm comportamentos opostos. Assim, o efeito geral do termo geométrico $O(z)/z^2$ é criar uma “barriga” no sinal, pouco antes de $O(z_0) = 1$. Estamos destacando esse ponto porque não incluímos o overlap nas nossas simulações do sinal elástico. Assumimos que $O(z) = 1$ em toda vertical, porém, isso não interfere nas análises de detecção, como será explicado nas seções 3.5.1 e 4.1.

Agora, em relação às propriedades ópticas das espécies de gases e aerossóis que constituem a atmosfera, os termos de retroespalhamento e extinção total são descritos pelas equações abaixo:

$$\beta(z, \lambda) = \sum_{i=1}^n N_i(z) \frac{d\sigma_{i,scat}}{d \cos \Theta}(z, \pi, \lambda) \quad (2.15)$$

$$\alpha(z, \lambda) = \sum_{i=1}^n N_i(z) \sigma_i(z, \lambda) \quad (2.16)$$

Onde $N_i(z)$, $d\sigma_{i,scat}(z, \pi, \lambda) / d \cos \Theta$, $\sigma_i(z, \lambda)$ e n são perfil de concentração numérica, seção de choque diferencial de espalhamento em 180° , seção de choque de extinção e número total de constituintes atmosféricos respectivamente. O índice “scat” se refere a espalhamento, e o índice “i” à cada espécie de moléculas e aerossóis contabilizados na somatória. No caso das moléculas, a seção de choque diferencial de espalhamento é dada pela teoria clássica de espalhamento Rayleigh (Bucholtz, 1995), seguindo a equação abaixo:

$$\frac{d\sigma_{mol,scat}}{d \cos \Theta} = \frac{3}{4(1+2\gamma)} [(1+3\gamma) + (1-\gamma) \cos^2 \Theta] \quad (2.17)$$

Com

$$\gamma = \frac{\rho_{air}(\lambda)}{2 - \rho_{air}(\lambda)} \quad (2.18)$$

Onde Θ e ρ_{air} são o ângulo de espalhamento e o fator de depolarização do ar atmosférico, que considera o termo de anisotropia dos gases. Esse fator é calculado segundo (Bodhaine et al., 1999), que considera os gases N_2 , O_2 , Ar e CO_2 . Os três primeiros são gases de concentração fixa, sendo N_2 e O_2 os gases mais abundantes da atmosfera, constituindo 78 % e 22 % do ar seco respectivamente. Por outro lado, o CO_2 é um gás de concentração variável. Em vista disso, Bodhaine et al. (1999) sugere um termo de correção no índice de refração do ar de acordo com a concentração CO_2 . Essa correção é importante para calcular a seção de choque (equação 2.20) de espalhamento do ar corretamente, visto que ela depende do índice de refração.

Outra variável importante é o lidar ratio molecular (L_{mol}) do ar atmosférico, definido pela razão entre a seção de choque total de espalhamento, que é a integral da função 2.17 em todos os ângulos de espalhamento, e a seção de choque diferencial em π (180° para trás). Esse lidar ratio vai ser usado para obter o retroespalhamento molecular a partir da extinção pela equação 2.22 como explicamos mais a frente. Como a integral angular da seção de choque diferencial de espalhamento é 4π , o lidar ratio molecular do ar é dado por:

$$L_{mol} = \frac{4\pi}{\frac{d\sigma_{mol,scat}}{d \cos \Theta}(\pi, \lambda)} \quad (2.19)$$

Note que o L_{mol} é uma propriedade intrínseca do ar, enquanto que as grandezas α_{mol} e β_{mol} são propriedades extrínsecas que dependem da concentração dos gases, como mostra as equações 2.15 e 2.16. Assim, sabendo que o lidar ratio molecular também pode ser definido como $L_{mol} = \beta_{mol} / \alpha_{mol}$, o termo de retroespalhamento molecular β_{mol} pode ser obtido a partir da extinção molecular α_{mol} . Essa extinção é calculada pela seção de choque

total de espalhamento por moléculas de ar segundo [Bodhaine et al. \(1999\)](#) pela equação:

$$\sigma_{air}(\lambda) = \frac{24\pi^3(n_s^2 - 1)^2}{\lambda^4 N_s^2 (n_s^2 + 2)^2} \left(\frac{6 + 3\rho_{air}}{6 - 7\rho_{air}} \right) \quad (2.20)$$

Onde λ , n_s e N_s são o comprimento de onda incidente, o índice de refração para λ nas condições padrão de temperatura e pressão (STP: $p_s = 1013,25$ hPa e $T_s = 15$ °C), com 0,03 % de CO₂, e a concentração numérica do ar seco (também nas condições padrões) respectivamente. Essa concentração é igual a $2,54743 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, e o último termo à direita da equação 2.20, em parênteses, é o fator de *king*, que considera a anisotropia dos gases. Os detalhes envolvendo o cálculo dos índice de refração do ar e o fator de *king* de cada gás estão descritos em [Bodhaine et al. \(1999\)](#). Dessa forma, a extinção molecular do ar na STP é calculada por $\alpha_s = N_s \sigma_{air}(\lambda)$. Por fim, através de dados de pressão (p_{rad}) e temperatura (T_{rad}) de radiossondagens, pode-se obter a extinção para os diferentes níveis de p_{rad} e T_{rad} a partir do seu valor padrão em p_s e T_s .

$$\alpha_{mol}(z) = \frac{p_{rad}(z) T_s}{T_{rad}(z) p_s} \alpha_s \quad (2.21)$$

Em seguida, o retroespalhamento molecular $\beta_{mol}(z)$ é obtido usando o lidar ratio molecular da equação 2.19, como discutido anteriormente, pela seguinte expressão:

$$\beta_{mol}(z) = \alpha_{mol}(z) L_{mol}^{-1} \quad (2.22)$$

Assim são obtidos os termos $\beta_{mol}(z)$ e $\alpha_{mol}(z)$ dos gases atmosféricos que serão utilizados na equação do lidar (eq. 2.14). Ressaltamos que estamos utilizando apenas a seção de choque de espalhamento (eq. 2.20), ou seja, desprezamos a seção de choque de absorção molecular ($\sigma_{abs}(\lambda)$). Podemos fazer esta aproximação porque as simulações do sinal do lidar foram feitas para $\lambda = 355$ nm. Para este comprimento de onda, assim como 387, 532, 607 e 1064 nm, que são valores típicos utilizados em lidar troposféricos, as bandas de absorção dos gases atmosféricos são praticamente desprezíveis, como pode ser visto na figura 2.7. Todos os cálculos dos coeficientes de retroespalhamento e extinção moleculares foram feitos através de um algoritmo disponibilizado pela Rede de Lidars da América Latina chamado LALINET ([Antuña-Marrero et al., 2017](#)), e que convertemos para a linguagem Python.

Em relação aos aerossóis, a seção de choque diferencial de espalhamento é bastante complexa. Como comentado na seção 2.1.2, a maioria dos aerossóis atmosféricos estão no regime de espalhamento Mie. Na teoria Mie, os aerossóis são considerados esféricos e homogêneos, e o espalhamento depende das seguintes propriedades: (1) índices de refração, (2) forma, considerada esférica, e (3) parâmetro de tamanho $x = 2\pi R/\lambda$. Onde a complexidade da seção de choque diferencial de espalhamento aumenta com “x”. Deste modo, a partir dessas três propriedades, que envolvem características físicas (forma e

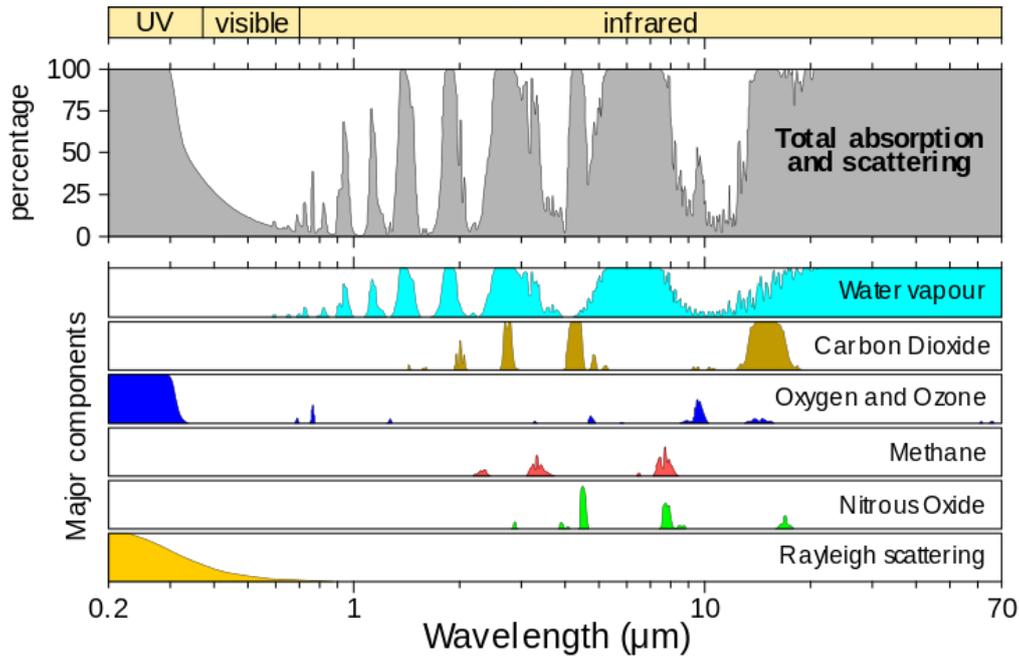


Figura 2.7: Painel superior: Banda de absorção mais espalhamento resultante de todos os gases do painel inferior. Painel inferior: Bandas de absorção individuais em função do comprimento de onda para o vapor d'água, dióxido de carbono, oxigênio e ozônio, metano, óxido nítrico e espalhamento Rayleigh. Figura adaptada de https://en.wikipedia.org/wiki/Absorption_band, acessado em 7 de abril de 2022.

tamanho) e químicas (índices de refração), a seção de choque diferencial de espalhamento dos aerossóis pode ser escrita por uma série de polinômios de Legendre P_l , como mostra a equação abaixo:

$$\frac{d\sigma_{aer,scat}}{d\cos\Theta} = \sum_{l=0}^{n'} \tilde{\omega}_l P_l(\cos\Theta) \quad (2.23)$$

Com coeficientes de expansão dados por:

$$\tilde{\omega}_l = \frac{2l+1}{2} \int_{-1}^1 \frac{d\sigma_{aer,scat}}{d(\cos\Theta)} P_l(\cos\Theta) d(\cos\Theta), \quad l = 0, 1, \dots, n'. \quad (2.24)$$

Onde o número de termos da série n' vai depender da complexidade do problema. Em geral, partículas maiores têm função de fase com anisotropia maior, e precisam de muitos coeficientes para resolver a equação 2.23 com precisão. Isso acaba gerando um custo computacional alto em alguns casos. Analogamente, as seções de choque de espalhamento e extinção também tem expressões complicadas, dadas pelas seguintes expressões (Bohren and Clothiaux, 2006):

$$\sigma_{aer,scat}(\lambda) = \frac{2\pi R^2}{x^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1)(|a_n|^2 + |b_n|^2) \quad (2.25)$$

$$\sigma_{aer,ext}(\lambda) = \frac{2\pi R^2}{x^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \Re(a_n + b_n) \quad (2.26)$$

Com coeficientes de espalhamento:

$$a_n = \frac{[D_n(mx)/m + n/x] \psi_n(x) - \psi_{n-1}(x)}{[D_n(mx)/m + n/x] \xi_n(x) - \xi_{n-1}(x)} \quad (2.27)$$

$$b_n = \frac{[mD_n(mx) + n/x] \psi_n(x) - \psi_{n-1}(x)}{[mD_n(mx) + n/x] \xi_n(x) - \xi_{n-1}(x)} \quad (2.28)$$

Onde m é o índice de refração complexo, ψ_n e ξ_n são as funções de Riccati-Bessel, e $D_n(mx) = d \ln \psi_n(mx) / d(mx)$. Por fim, pelo princípio da conservação da energia, a seção de choque de absorção ($\sigma_{aer,abs}$) é dada por:

$$\sigma_{aer,abs}(\lambda) = \sigma_{aer,ext}(\lambda) - \sigma_{aer,scat}(\lambda) \quad (2.29)$$

As equações entre 2.23 - 2.29 foram resolvidas pelo código de espalhamento Mie do libRadtran. Uma breve descrição do libRadtran e das variáveis de saída do código Mie utilizadas na simulação do sinal do lidar estão descritas na próxima seção.

2.4 LibRadtran - código Mie

O libRadtran é um pacote de códigos em C e fortran que resolve problemas de transferência radiativa na atmosfera. Esses problemas são basicamente equações de transferência radiativa no espectro solar e termal. Porém, como comentado na seção 2.3, essas equações precisam das propriedades ópticas dos aerossóis para serem resolvidas numericamente. Assim, o libRadtran também conta com um código de espalhamento Mie para calcular essas propriedades. Foi esse código que utilizamos para simular as propriedades ópticas intrínsecas das partículas ultrafinas na UT e da moda de acumulação dentro da PBL na Amazônia. Os parâmetros de entrada do código, que são distribuição de tamanho, índices de refração e comprimento de onda da radiação incidente estão descritos no capítulo de metodologia, na seção 3.4. Nesta seção, explicamos como o código Mie retorna as propriedades ópticas de uma população de partículas do mesmo tipo. Isso é necessário pois utilizamos distribuições de tamanho fixas para as partículas da moda de Aitken e acumulação nas nossas simulações. Assim, não simulamos as propriedades ópticas para uma única partícula de cada aerossol, mas para uma distribuição de tamanho de cada um.

As equações 2.23 - 2.29 são para apenas uma partícula espalhadora, considerada esférica, e com parâmetro de tamanho $x(R)$. Porém, utilizamos o código Mie para uma população de partículas. As partículas ultrafinas na UT e as partículas da moda de acumulação dentro da PBL seguem as distribuições de tamanho $n(\ln R)$, fixas. Essas

distribuições tiveram que ser convertidas em $n(R)$ pela equação 2.6 antes de passá-las como entrada do código. Dessa forma, o código Mie retornou as propriedades ópticas dos aerossóis integradas pela sua respectiva distribuição de tamanho $n(R)$. Assim, a extinção da população ($\alpha_{m,ext}$) foi obtida pela equação 2.30, normalizada pela concentração mássica total da população (em g/m^3):

$$\alpha_{m,ext} = \frac{\sigma_{ext}}{\int_0^{\infty} \frac{4}{3} \pi R^3 \rho n(R) dR} \quad [km^{-1} (g/m^3)^{-1}] \quad (2.30)$$

Onde $n(R)$ e ρ são a distribuição de tamanho numérica (em $\mu m^{-1} cm^{-3}$) e a densidade do aerossol (em g/cm^3) respectivamente. O termo σ_{ext} é a extinção da população, que foi calculado segundo a equação abaixo. O σ_{scat} foi calculado da mesma forma.

$$\sigma_{ext} = \int_0^{\infty} \sigma_{aer,ext}(\lambda, R) n(R) dR \quad (2.31)$$

Outras variáveis importantes retornadas pelo código foram o albedo simples $\omega(\lambda)$ e a seção de choque diferencial de espalhamento média $d\sigma_{scat}/d\cos\Theta$. Com os dois, foi possível obter o lidar ratio dos aerossóis pela expressão 2.32.

$$L_{aer}(\lambda) = \frac{4\pi}{\frac{d\sigma_{scat}}{d\cos\Theta} \omega(\lambda)} \quad (2.32)$$

Com

$$\frac{d\sigma_{scat}}{d\cos\Theta} = \frac{1}{\sigma_{scat}} \int_0^{\infty} \sigma_{aer,scat}(\lambda, R) \frac{d\sigma_{aer,scat}}{d\cos\Theta}(R) n(R) dR \quad (2.33)$$

Tanto o $\alpha_{m,ext}$ quanto L_{aer} foram utilizados para obter o perfil vertical de extinção $\alpha_{aer}(z)$ (em m^{-1}) e retroespalhamento $\beta_{aer}(z)$ ($m^{-1} sr^{-1}$) dos aerossóis. Isso foi feito utilizando os perfis simulados de concentração em massa $M(z)$ (em g/m^3) dos aerossóis, como explicado na seção 3.4 do capítulo de metodologia.

2.5 Algoritmo de inversão e fontes de erros associados

O sinal do lidar é um perfil vertical com a contagem do número de fótons retroespalhados em cada bin de altitude. Esse perfil não fornece diretamente qualquer informação sobre as propriedades ópticas dos aerossóis na atmosfera. Para obter o retroespalhamento e a extinção dos aerossóis, precisamos inverter o sinal do lidar (eq. 2.14) para obter α e β . O algoritmo de inversão que utilizamos foi baseado no método de Klett-Fernald (Klett, 1985; Fernald, 1984), descrito em Weitkamp (2006, capítulo 4), que calcula o retroespalhamento total pela seguinte equação:

$$\beta_{aer}(z) + \beta_{mol}(z) = \frac{S(z) \exp\left(-2 \int_{z_0}^z [L_{aer}(z') - L_{mol}] \beta_{mol}(z') dz'\right)}{\frac{S(z_0)}{\beta_{aer}(z_0) + \beta_{mol}(z_0)} - 2 \int_{z_0}^z L_{aer}(z') S(z') T(z', z_0) dz'} \quad (2.34)$$

com,

$$T(z', z_0) = \exp\left\{-2 \int_{z_0}^{z'} [L_{aer}(z'') - L_{mol}] \beta_{mol}(z'') dz''\right\} \quad (2.35)$$

Onde $S(z)$ é o sinal corrigido pela distância $z^2 P(z)$. Note que essa equação é resolvida a partir de uma altura de referência z_0 , onde precisamos conhecer $\beta(z_0) = \beta_{aer}(z_0) + \beta_{mol}(z_0)$. Essa referência é escolhida dentro de um intervalo de altitude, onde acreditamos que a quantidade de aerossol é desprezível, portanto $\beta_{mol}(z_0) \gg \beta_{aer}(z_0)$. Dessa forma, o código estima $\beta(z_0)$ a partir de um ajuste linear entre o sinal observado do lidar e o sinal molecular $P_{mol}(z_0)$, dentro da camada de referência. O sinal molecular é a equação do lidar considerando apenas a extinção do sinal por moléculas. Assim, $P_{mol}(z_0)$ considera apenas $\beta_{mol}(z_0)$ e $\alpha_{mol}(z_0)$, que são calculados como descrito na seção 2.3. Num caso ideal, dentro da camada, $P(z_0)/P_{mol}(z_0) = 1$, porém, num caso real, sempre há um pouco de aerossol, então $P(z_0)/P_{mol}(z_0) > 1$. Assim, o retroespalhamento total na referência molecular é dado por:

$$\beta(z_0) = \beta_{mol} \frac{P(z_0)}{P_{mol}(z_0)} \quad (2.36)$$

Dessa forma, calculado $\beta(z_0)$, os únicos parâmetros que faltam para resolver a equação 2.34 são os lidar ratios. No caso das moléculas, o lidar ratio (L_{mol}) é bem conhecido e pode ser calculado como na seção 2.3, segundo Bodhaine et al. (1999). Porém, numa situação real, não sabemos exatamente o lidar ratio dos aerossóis ($L_{aer}(z, \lambda)$), que inclusive pode variar muito com a altitude. Essa é a maior limitação do método de inversão do lidar elástico, pois não há como conhecer ao mesmo tempo o espalhamento e a extinção dos aerossóis na atmosfera. Em geral, usa-se um lidar ratio médio como chute inicial, baseado em valores da literatura, ou estimado ao combinar medidas de outro canal do lidar. Contudo, o perfil verdadeiro de L_{aer} nunca será conhecido a partir de medidas apenas de uma lidar elástico.

Por fim, substituindo $\beta_{mol}(z)$, obtido por Bodhaine et al. (1999), $\beta(z_0)$ (obtido pela equação 2.36), e os lidar ratios das moléculas de ar e dos aerossóis na equação 2.34, obtemos o perfil do coeficiente de retroespalhamento dos aerossóis $\beta_{aer}(z)$. Consequentemente, também obtemos o perfil do coeficiente de extinção dos aerossóis por: $\alpha_{aer}(z) = L_{aer}(z) \beta_{aer}(z)$. Contudo, para que as integrais da equação de inversão convirjam numericamente, elas devem ser resolvidas no sentido reverso, ou seja, da referência z_0 até a posição do lidar na superfície, em $z = 0$.

Deste modo, conseguimos inverter o sinal do lidar e obter as propriedades ópticas extrínsecas dos aerossóis. Porém, existem algumas fontes de erros associados ao procedimento de inversão que são propagadas para os perfis de $\beta_{aer}(z)$ e $\alpha_{aer}(z)$. Segundo [Rocadenbosch et al. \(2012\)](#), existem duas fontes de erros sistemáticos e duas fontes de erros aleatórios no retroespalhamento obtido pelo código de inversão. Os erros sistemáticos são: (1) erro de calibração, através do ajuste molecular na determinação do retroespalhamento total dentro da referência molecular, $\beta(z_0)$; (2) Erro no lidar ratio dos aerossóis, pois como foi discutido anteriormente, só temos um palpite do seu valor. Os erros aleatórios são: (3) Erro aleatório da razão sinal-ruído (S/N) da parte opto-eletrônica do sistema receptor do lidar, que também influencia na calibração, sendo (4) o erro aleatório de calibração devido a razão sinal-ruído dentro da referência molecular.

Capítulo 3

Metodologia

Medidas detalhadas do perfil vertical de aerossóis podem ser realizadas com instrumentos a bordo de aeronaves (e.g. seção 3.1.2), mas em geral por curtos períodos de tempo, em vista do alto custo financeiro. Por outro lado, um sistema lidar em superfície, como o do Laboratório de Física Atmosférica (LFA) do IF-USP, devido a sua facilidade operacional, torna viável medidas contínuas ou por longos períodos. Isso foi feito pela primeira vez na Amazônia durante os projetos EUCAARI (Kulmala et al., 2011) e AMAZE-08 (Martin et al., 2010), e posteriormente pelo ACONVEX (Barbosa et al., 2014) e pelo SAMBBA (Marengo et al., 2016), todos com foco nos aerossóis da baixa troposfera ($< 7\text{km}$). Até o momento, medidas precisas capazes de detectar aerossóis no topo da troposfera (9 a 15 km) ainda não foram feitas ou discutidas na Amazônia. Neste contexto, este capítulo descreve a metodologia que desenvolvemos para estudar se um lidar em superfície poderia ou não detectar essas pequenas partículas no topo da troposfera. Começamos fazendo uma breve descrição das campanhas e sítios experimentais dos dados observacionais utilizados como referência nas simulações, da instrumentação do sistema lidar, das medidas de aerossóis pela aeronave HALO, das simulações das propriedades intrínsecas dos aerossóis, das simulações do sinal elástico do lidar em 355 nm, e finalmente dos métodos estatísticos utilizados para determinar se houve ou não detecção dos aerossóis ultrafinos na UT.

3.1 Dados observacionais utilizados nas simulações dos aerossóis e do sinal elástico do lidar

Esta seção faz uma breve introdução às campanhas e aos sítios experimentais de onde foram obtidos os dados observacionais usados como referência nas simulações do sinal do lidar. Esses dados são de propriedades microfísicas e ópticas dos aerossóis, e os instrumentos que os mediram também foram mencionados em cada uma das subseções abaixo.

3.1.1 A Campanha GoAmazon2014/5

A campanha GoAmazon2014/5 (*Green Ocean Amazon*) (Martin et al., 2016) ocorreu entre 2014 e 2015 com o principal objetivo de investigar o ciclo de vida dos aerossóis e

das nuvens, e como a pluma de poluição de Manaus modifica esse ciclo natural. Como a região possui muito vapor d'água, ela é muito sensível a mudanças na concentração dessas partículas, que muitas vezes servem como núcleos de condensação de nuvens (CCN). Neste contexto, o experimento foi possível devido a posição estratégica do sítio experimental localizado em Manacapuru (3°S e 60°W) Manaus-AM, que experimenta tanto uma atmosfera limpa como poluída, pois a pluma de poluição de Manaus oscila de posição a medida que é transportada pelo vento.

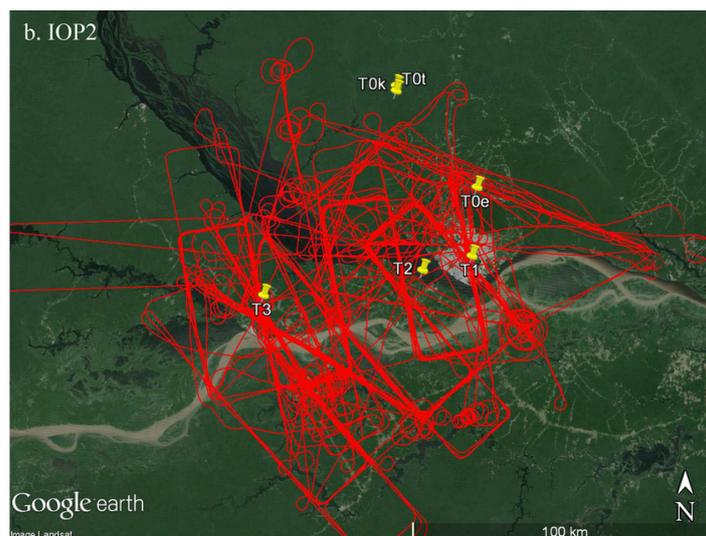


Figura 3.1: Voos da aeronave G-1 entre 6 de setembro à 4 de outubro de 2014 durante o projeto GoAmazon2014/5. Figura de [Martin et al. \(2016\)](#).

Para cumprir o objetivo da campanha, uma série de medidas foram feitas na região, tanto por equipamentos em solo como acoplados a uma aeronave. A aeronave utilizada foi a Gulfstream-1 (G-1), que foi equipada com vários instrumentos para realizar medidas de aerossóis, nuvens, radiação, gases e entre outros. Em especial, os instrumentos importantes para o desenvolvimento desta dissertação foram os diferentes espectrômetros, que medem as distribuições de tamanho dos aerossóis. A aeronave utilizou um *Fast Integrated Mobility Spectrometer* (FIMS) para medir partículas com diâmetros entre 30-100 nm, um *Ultra High Sensitivity Aerosol Spectrometer* (UHSAS-A) para diâmetros entre 60-1000 nm, e um *Passive Cavity Aerosol Spectrometer* (PCASP-100X) para diâmetros entre 100-3000 nm.

Os dados de distribuição de tamanho obtidos pelos espectrômetros da aeronave G-1 estão juntos com dados da aeronave HALO, da campanha ACRIDICON-CHUVA (seção 3.1.2) na figura 3.8a. Como será comentado em detalhes na seção 3.5.2, as distribuições de tamanho foram fundamentais para simular as propriedades ópticas intrínsecas dos aerossóis.

3.1.2 A Campanha ACRIDICON-CHUVA

A campanha ACRIDICON-CHUVA foi uma cooperação entre Brasil e Alemanha que aconteceu entre 1 de setembro a 4 de outubro de 2014 (Andrae et al., 2018). ACRIDICON significa “*Aerosol, Cloud, Precipitation, and Radiation Interactions and Dynamics of Convective Cloud Systems*” e CHUVA é um acrônimo para “*Cloud Processes of the Main Precipitation Systems in Brazil: A Contribution to Cloud Resolving Modeling and to the GPM (global precipitation measurement)*”. Assim como a maioria das campanhas na região, um dos seus principais focos foi compreender o efeito secundário dos aerossóis nas nuvens e como isso afeta a precipitação, além dos seus efeitos no balanço radiativo da região. Para isso, a campanha realizou medidas das propriedades dos aerossóis e das nuvens tanto em solo como a bordo da aeronave HALO (*High Altitude and Long Range Research Aircraft*). A figura 3.2 mostra o caminho dos voos da aeronave sobre a Amazônia, onde a estrela representa a posição aproximada do lidar LFA IF-USP.

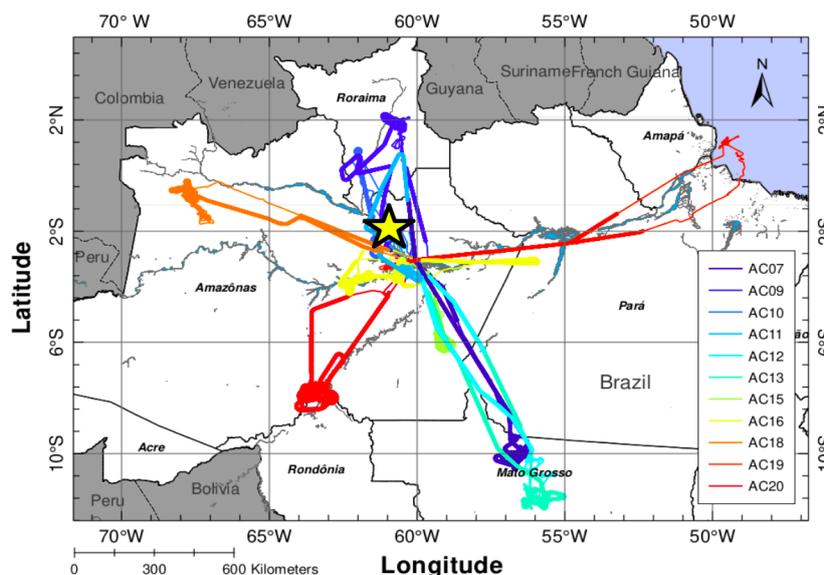


Figura 3.2: Voos da aeronave HALO entre 1 de setembro e 4 de outubro de 2014 durante o projeto ACRIDICON-CHUVA. A estrela mostra a posição do lidar LFA IF-USP durante a campanha ACONVEX, descrita à frente. Figura adaptada de Andrae et al. (2018).

A aeronave foi equipada com um sistema de medições de aerossóis constituído por 4 CPCs (*Condensation Particle Counter*) e dois DMAs (*Differential Mobility Analyzers*). Os CPCs mediam o número total de partículas sem discriminar os tamanhos, e os CPCs acoplados aos DMAs mediam distribuições de tamanho da moda de Aitken (menores que 90 nm de diâmetro). Contudo, devido a um problema técnico, o sistema de entrada (inlet) perdia as partículas pequenas antes que chegassem aos CPCs, e essas perdas aumentavam com a altitude. Na UT, a maioria das partículas menores de 20 nm de diâmetro eram perdidas. Portanto, apenas os dados de distribuição de tamanho em baixas altitudes foram considerados neste estudo, as outras distribuições da figura 3.8a são da aeronave

G-1 da campanha GoAmazon2014/5. Também foi utilizado um contador óptico Ultra-High Sensitivity Aerosol Spectrometer (UHSAS), que contava as partículas da moda de acumulação com diâmetros entre 90 e 600 nm.

Os outros dois CPCs da HALO mediram o perfil vertical do número total de partículas (CN, que significa núcleos de condensação, do inglês *Cloud Nuclei*) através de voos onde o avião realizou espirais, subindo e descendo. Por conta da limitação técnica comentada anteriormente, o diâmetro de corte medido foi de 20 nm.

3.1.3 O experimento ACONVEX

O experimento ACONVEX (*Aerosol, Cloud, Convection Experiment in the Amazon*) surgiu para entender a complexa interação entre o vapor d'água e a convecção profunda nas regiões tropicais. Essas regiões são muito próximas ao Equador, onde a incidência da radiação solar é mais intensa, portanto, a evaporação, o transporte pelo vento e a formação de nuvens também é mais intensa. Isso faz com que a concentração de vapor d'água seja altamente variável e sua interação com a convecção profunda muito difícil de ser compreendida. Em vista disso, o experimento propôs a instalação de diversos instrumentos no sítio experimental EMBRAPA em Manaus para aumentar a resolução espacial e temporal de medidas de vapor d'água e nuvens nos trópicos. A figura 3.3 mostra a localização do sítio ($2,89^{\circ}\text{S}$ e $59,97^{\circ}\text{W}$).

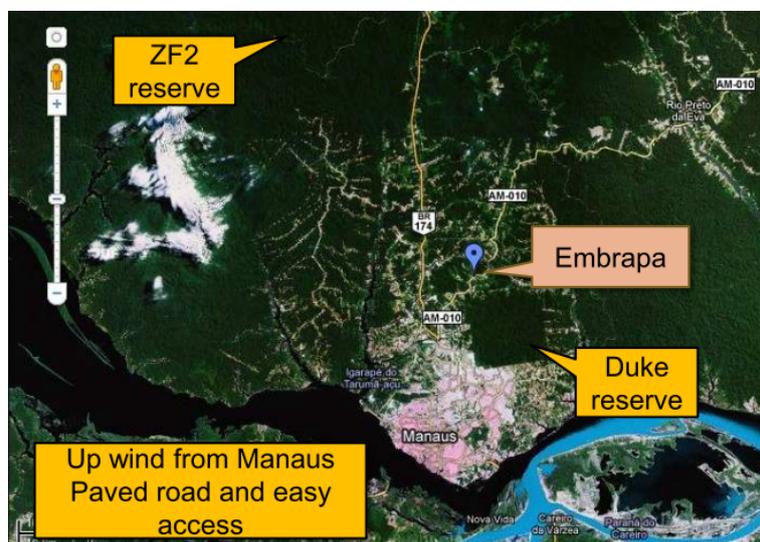


Figura 3.3: Localização do sítio experimental EMBRAPA durante o experimento ACONVEX, onde o lidar LFA IF-USP foi instalado.

O experimento ficou ativo de 2011 a 2017 e um dos instrumentos capazes de realizar medidas contínuas com alta resolução vertical e temporal, tanto do vapor d'água como das nuvens, é o lidar LFA IF-USP. Na seção 3.5.1, utilizamos os dados desse instrumento para estimar sua eficiência e calibrar as simulações com a mesma intensidade e razão sinal-ruído.

É importante ressaltar que ambas as aeronaves G-1 e HALO (seções 3.1.1 e 3.1.2), as quais mediam distribuição de tamanho e concentração de aerossóis, passaram muito próximas ao sítio da EMBRAPA (ver figura 3.2). Dessa forma, as medidas de aerossóis que estamos nos baseando para fazer as simulações, são razoavelmente próximas ao que poderia ser detectado pelo lidar na mesma região. Além disso, os dados de índice de refração da AERONET (seção 3.1.4), utilizados na simulação das propriedades ópticas intrínsecas (seção 3.4) dos aerossóis foram coletados nesse mesmo sítio onde o lidar foi instalado.

3.1.4 Sítio experimental EMBRAPA - AERONET

A AERONET (*Aerosol Robotic Network*) (Holben et al., 1998) é uma rede internacional de fotômetros solares que medem as propriedades ópticas e microfísicas dos aerossóis em diferentes sítios experimentais ao redor do mundo. Essa rede é gerenciada pela NASA, que disponibiliza publicamente sua base de dados. A figura 3.4 mostra um mapa global das posições dos sítios experimentais com fotômetros da AERONET. Esse equipamento mede a radiação solar direta e espalhada na sua direção e, com o auxílio de alguns filtros, separa o sinal em alguns comprimentos de onda específicos e estados de polarização. Então, um algoritmo de processamento de dados inverte os sinais, obtendo as propriedades ópticas (entre elas, os índices de refração) e microfísicas dos aerossóis.

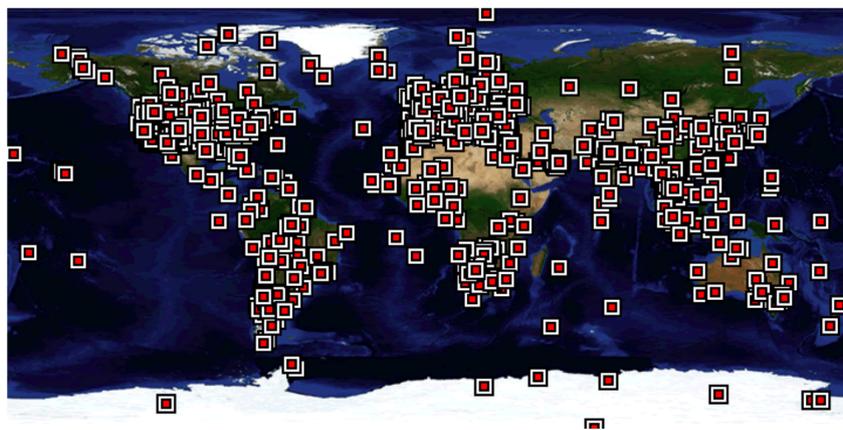
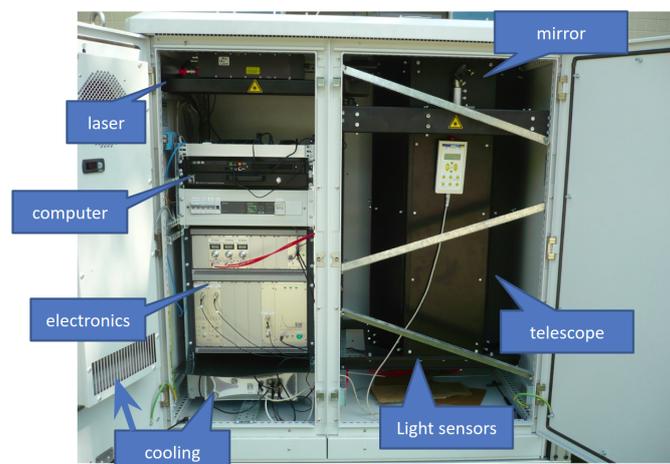


Figura 3.4: Sítios experimentais com fotômetros da rede AERONET. Os quadrados em vermelho mostram a posição de cada sítio ao redor do mundo. Figura adaptada de <https://aeronet.gsfc.nasa.gov/>, acessado em 7 de abril de 2022.

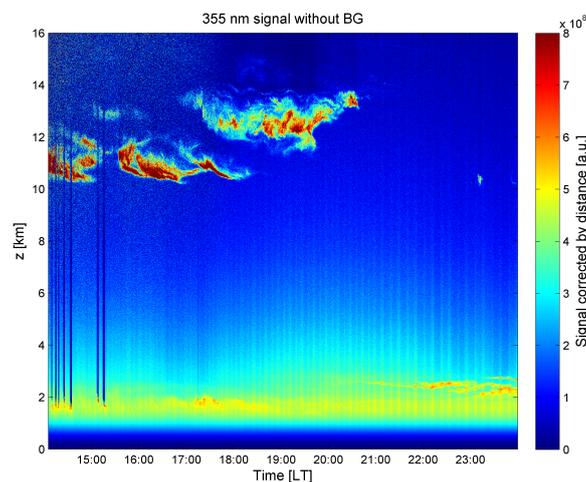
Utilizamos os dados dos índices de refração real e imaginário em 440 nm da AERONET, medidos entre 2011 e 2018 no sítio experimental da EMBRAPA ($2,89^{\circ}\text{S}$ e $59,97^{\circ}\text{W}$) em Manaus-AM, para estabelecer um intervalo de possíveis valores que podem ser medidos na região e posteriormente simular as propriedades intrínsecas dos aerossóis usando o código Mie (detalhes na seção 3.4). Este sítio experimental é o mesmo em que o lidar LFA IF-USP foi instalado.

3.2 UV Raman Lidar do LFA IF-USP

O UV Raman Lidar do Laboratório de Física Atmosférica (LFA) do IF-USP foi produzido pela *Raymetrics Advanced Lidar Systems* e está representado na figura 3.5a. Ele é constituído por um telescópio de área $0,13 \text{ m}^2$ (40 cm de diâmetro) e um laser Quantel CFR-400 Nd-YAG de 95 mJ por pulso com frequência de 10 Hz. Os detalhes técnicos do instrumento podem ser encontrados em [Barbosa et al. \(2014\)](#). Além disso, a explicação dos seus componentes eletrônicos e modos de medição (AN e PC) encontram-se na seção de funcionamento geral do instrumento (seção 2.2).



(a)



(b)

Figura 3.5: (a) Cabine do UV-Raman lidar LFA IF-USP. O telescópio, laser e sistema de aquisição de dados estão indicados na figura, (b) Série temporal do sinal do lidar em 355 nm com ruído de fundo removido e correção pela distância para o dia 14/9/2014. O tempo está em horário local (LT).

Ele detecta o sinal em três comprimentos de onda, 355 nm (elástico), 387 nm (N_2) e 408 nm (H_2O). Para detectar os aerossóis, usamos dados do canal elástico (355 nm) no

modo PC. Os fótons nesse comprimento de onda que chegam na fotomultiplicadora (PMT) são processados pelo conversor do sinal analógico em digital (ADC, do inglês *analog-to-digital converter*) em 20 MHz. Conseqüentemente, o tamanho do bin vertical iluminado (dz) é 7,5 m, pois ele é calculado por $cT/2$, onde T é o inverso de 20 MHz e o escalar 2 está contabilizando apenas o tempo de ida ou volta do pulso. Além disso, o sistema faz médias temporais de 30 segundos, portanto, tanto a resolução espacial quanto temporal do equipamento são altas. Essas medidas permitem criar imagens de alta resolução do perfil atmosférico ao longo de uma série temporal, como mostra a figura 3.5b (dados em 355 nm no modo PC). As cores desta figura representam o sinal corrigido pela distância ($z^2P(z)$) e pelo ruído de fundo (subtração do ruído solar durante o dia). Os dados dessa figura também foram utilizados para estimar a eficiência do equipamento (η_0) e calibrar as simulações do sinal elástico do lidar como explicado adiante, na seção 3.5.1.

3.3 Perfis de concentração de aerossóis da aeronave HALO

Outras medidas importantes para o presente estudo foram os perfis de concentração de partículas detectados pela aeronave alemã HALO durante a campanha ACRIDICON-CHUVA (seção 3.1.2). Esses dados foram processados por [Andreae et al. \(2018\)](#) e são apresentados na figura 3.6. O painel da esquerda mostra a concentração numérica dos núcleos de condensação (CN), o total de partículas, e o painel da direita mostra a fração de partículas ultrafinas UFF (ou da moda de Aitken). Ambos estão relacionados pela expressão $UFF = (N_{CN} - N_{acc}) / N_{CN}$, onde N_{acc} é a concentração numérica das partículas da moda de acumulação (> 90 nm de diâmetro).

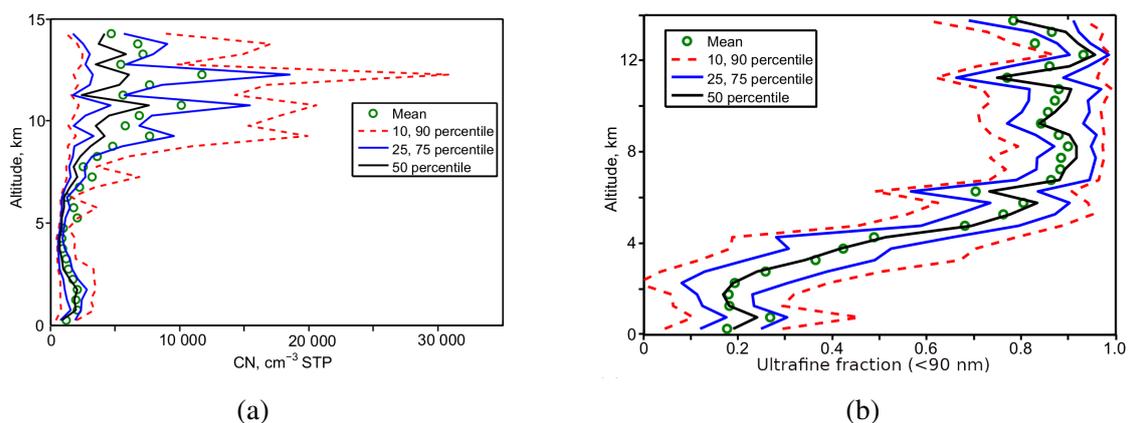


Figura 3.6: (a) Estatística de concentração numérica de partículas de todos os voos da aeronave HALO; (a) Perfil de concentração total de partículas, ou de núcleos de condensação (CN), (b) Perfil da fração de aerossóis ultrafinos (< 90 nm de diâmetro). Figura adaptada de [Andreae et al. \(2018\)](#).

A figura 3.6b mostra que, acima de 8 km, aproximadamente 90 % das partículas são da moda de Aitken. Portanto, os altos valores de concentração numérica de CN entre 9 e 15

km na UT da figura 3.6a são devido praticamente a essas partículas ultrafinas. É importante mencionar que esses perfis estão normalizados a condições padrões de temperatura e pressão (STP; $T_0 = 273,15$ K e $p_0 = 1000$ hPa), como indicado no eixo “x” dos gráficos. Essa correção permite comparar a concentração de diferentes níveis como se todos fossem calculados nas condições padrões. Para remover essa correção e saber o real valor medido em cada nível, aplicamos a seguinte equação:

$$N = N_{stp} \frac{T_0 p}{p_0 T} \quad (3.1)$$

Isso foi aplicado no perfil mediano (ou percentil de 50%) de concentração numérica de CN da figura 3.6a para calcular os perfis de concentração dos aerossóis ultrafinos ($N_{CN} \times UFF$) e da moda de acumulação ($N_{CN} \times (1 - UFF)$) como mostra a figura 3.7. Esses perfis serviram de referência para as concentrações de partículas (ultrafinas e da moda de acumulação) na região Amazônica em nossas simulações. No caso do perfil de partículas ultrafinas, consideramos uma concentração homogênea na UT (entre 9 e 15 km), enquanto que no caso do perfil de partículas da moda de acumulação, consideramos uma gaussiana com máximo em 1,1 km. Tanto os dados observacionais quanto os ajustados estão representados na figura 3.7. Como pode-se observar, usamos um perfil bastante simplificado das partículas ultrafinas na UT, com o objetivo de simplificar o seu estudo. Além disso, os aerossóis da moda de acumulação, aos quais nos referimos também como aerossóis da camada limite planetária, estão na verdade distribuídos até 4 km de altitude aproximadamente pois o experimento ACRIDICON-CHUVA aconteceu durante a estação seca.

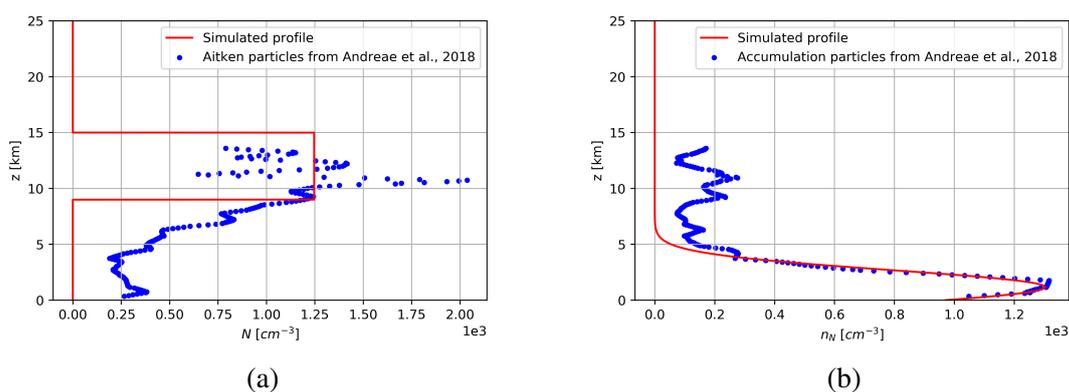


Figura 3.7: (a) Perfis verticais de concentração numérica dos aerossóis da moda de Aitken medidos pela aeronave HALO em azul, e ajustados em vermelho, considerando uma concentração homogênea na UT (entre 9 a 15 km), (b) igual ao gráfico de (a), porém para as partículas da moda de acumulação dentro da PBL, assumindo uma concentração gaussiana com máximo em 1,1 km.

Os perfis ajustados possibilitaram aumentar a concentração dos aerossóis ultrafinos na UT, imitando diferentes condições de concentração que podem ser medidas na região, além

do valor mediano usado como referência. A seção 3.5.2 traz uma breve discussão sobre valores reportados muito maiores que a mediana, medidos pela HALO em voos específicos. Baseando-se nessas medidas particulares, utilizamos os valores de concentração na UT indicados na tabela 3.2

3.4 LibRadtran - simulação das propriedades ópticas dos aerossóis

O libRadtran representa o estado da arte de modelos de transferência radiativa, tanto no espectro solar quanto termal (Mayer and Kylling, 2005). Este modelo foi utilizado para simular as propriedades ópticas intrínsecas dos aerossóis, como por exemplo: seção de choque diferencial de espalhamento ($\frac{d\sigma_{aer,scat}}{d\cos\Theta}$), albedo simples (ω), lidar ratio (L_{aer}), etc. O código Mie do LibRadtran necessita de um arquivo de entrada com informações da distribuição de tamanho dos aerossóis ($n(r)$), índice de refração real (\Re), imaginário (\Im) e comprimento de onda incidente (λ), que no caso é o 355 nm do lidar LFA IF-USP.

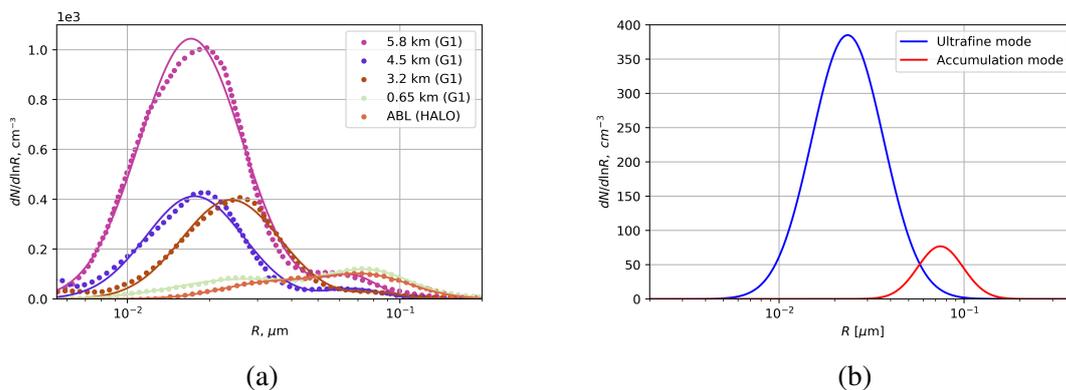


Figura 3.8: (a) Distribuições de tamanho reportadas por Andreae et al. (2018) em vários níveis na Amazônia, medidas pelas aeronaves G-1 e HALO como mencionado no texto. As linhas tracejadas representam as medidas e as linhas sólidas as funções ajustadas, (b) distribuições médias das partículas da moda de Aitken e acumulação, que segundo o texto, foram obtidas pelos parâmetros médios dos ajustes do painel esquerdo.

Primeiramente, utilizamos as medidas das distribuições de tamanho em diferentes níveis da aeronave G-1 e HALO (figura 3.8a), durante as campanhas GoAmazon2014/5 e ACRIDICON-CHUVA respectivamente para obtermos uma distribuição de tamanho média que representasse os aerossóis da atmosfera Amazônica. A distribuição média foi calculada através do ajuste de uma função lognormal bimodal (equação 2.1, com $M = 2$) em cada uma das distribuições de tamanho da figura 3.8a. Dessa forma, calculamos os parâmetros médios de cada moda (R_{eff} e σ_g) para gerar as distribuições da figura 3.8b, onde a primeira moda é a de Aitken e a segunda é a de acumulação.

Em seguida, foram utilizados dados da AERONET (seção 3.1.4) de 2011 até 2018 dos índices de refração no sítio experimental EMBRAPA em Manaus-AM. Todo o conjunto de dados foi utilizado para gerar os histogramas da parte real e imaginária do índice de refração em 440 nm, apresentados na figura 3.9. Isso foi feito para estabelecer o limite inferior e superior dessas variáveis na simulação das propriedades ópticas dos aerossóis. Contudo, os índices de refração da AERONET são calculados pela inversão do sinal da radiação solar espalhada na direção do fotômetro solar (posicionado no chão), ou seja, a maior parte do sinal detectado vem das partículas maiores, que possuem uma eficiência de espalhamento maior. Portanto, os valores dos histogramas da figura 3.9 representam melhor os aerossóis da moda de acumulação dentro da PBL e não os aerossóis ultrafinos na UT. Isso pode ser um potencial problema na simulação dos aerossóis ultrafinos, pois não temos de fato uma estimativa dos seus índices de refração. Entretanto, o índice de refração é uma propriedade do material e por isso utilizamos os mesmos valores da moda de acumulação.

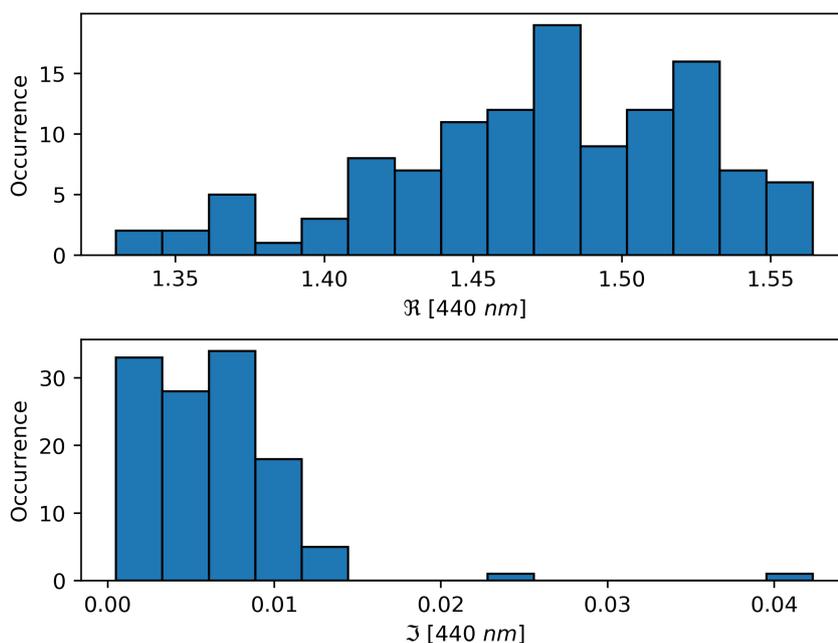


Figura 3.9: Índices de refração obtidos pela rede AERONET no sítio experimental EMBRAPA de 2011 a 2018; (a) histograma de todos os dados da parte real em 440 nm, (b) mesmo que (a), porém para a parte imaginária em 440 nm.

Note também que os dados dos histogramas são para um comprimento de onda em 440 nm, que é o valor disponibilizado pela AERONET mais próximo dos 355 nm do lidar LFA IF-USP. Esta é uma aproximação que estamos assumindo nas nossas simulações, além de que os aerossóis possuem a mesma composição química, o que é bastante razoável. Segundo [Andreae et al. \(2018\)](#), a composição química dos aerossóis entre 0 e 4 km

(camada limite planetária) e 9 e 15 km (topo da troposfera) é parecida em termos das contribuições relativas de orgânicos, sulfatos, e nitratos. A diferença é a presença de BC exclusivamente na camada próxima da superfície. Dessa forma, os aerossóis ultrafinos devem ter índices de refração reais semelhantes aos da moda de acumulação, mas índices imaginários menores. Como os histogramas acima incluem as estações chuvosa e seca, os valores dos índices de refração imaginários que iremos simular já contemplam as possíveis diferentes contribuições relativas do BC. A tabela 3.1 mostra os parâmetros das distribuições de tamanho dos aerossóis (G-1/HALO) e os intervalos de índices de refração (AERONET) que foram utilizados nas simulações.

Tabela 3.1: Parâmetros microfísicos (distribuição de tamanho) e ópticos (índices de refração) dos aerossóis usados na simulação das suas propriedades ópticas intrínsecas pelo código Mie.

	Parâmetros da distribuição de tamanho		Índices de refração	
	R_{eff} [nm]	σ_g	\Re	\Im
Aitken	23	1,6	[1,3; 1,6]	[0,0005; 0,02]
Acumulação	74	1,3	[1,3; 1,6]	[0,0005; 0,02]

Para cada um dos tipos de aerossóis (Aitken ou acumulação), para cada um dos índices de refração reais (1,3, 1,38, 1,45, 1,52 e 1,6), e para cada um dos índices de refração imaginários (entre 0,0005 a 0,02, em intervalos de 0,0002, totalizando 100 valores), usamos o código Mie para computarmos o coeficiente de extinção mássico ($\alpha_{m,ext}$ em $km^{-1}(g/m^3)^{-1}$) e o lidar ratio dos aerossóis (L_{aer}). Combinando todos os possíveis valores, obtemos $5 \times 100 = 500$ arquivos de saída do código Mie para cada um dos tipos de aerossóis. Os gráficos da figura 3.10 mostram como o L_{aer} varia com as partes reais e imaginárias dos índices de refração, considerando que as modas de Aitken e acumulação são fixas.

Por fim, para cada um desses casos, multiplicamos o $\alpha_{m,ext}$ (em $km^{-1}(g/m^3)^{-1}$) pelo perfil de concentração mássica $M(z)$ (em g/m^3), que foi obtido multiplicando cada perfil simulado de concentração numérica $N(z)$ (número de partículas por volume, em cm^{-3}) da figura 3.7 pela massa correspondente ao raio efetivo (R_{eff}) das distribuições médias da figura 3.8b. Esse raio representa o tamanho mediano das partículas e está sendo usado para calcular a massa que representa a população em cada nível. Dessa forma, obtemos os perfis do coeficiente de extinção volumétrico $\alpha_{aer}(z)$, em m^{-1} e de retroespalhamento dos aerossóis pela relação: $\beta_{aer}(z) = \alpha_{aer}(z)L_{aer}^{-1}$ em $m^{-1}sr^{-1}$. Lembrando que L_{aer} foi obtido pelo código Mie através da equação 2.32 (seção 2.4). Ambos $\alpha_{aer}(z)$ e $\beta_{aer}(z)$ foram substituídos na equação do lidar para simular as contribuições dos aerossóis na simulação do sinal medido.

Note que o espalhamento e a absorção de uma partícula de aerossol não depende

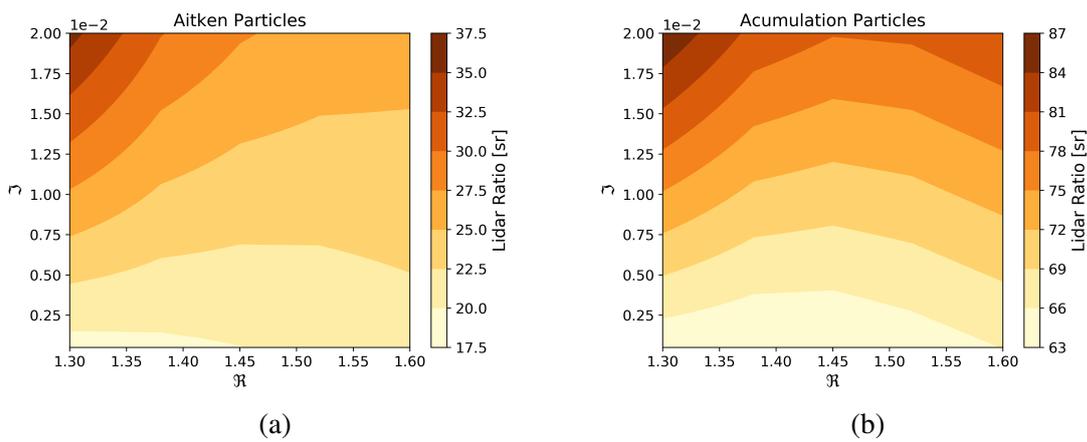


Figura 3.10: Curvas de nível do lidar ratio (L_{aer}) em função dos índices de refração real (\Re) e imaginário (\Im); (a) partículas da moda de Aitken (ou ultrafinas), (b) partículas da moda de acumulação.

da massa. Porém, tivemos que calcular o perfil mássico $M(z)$ por causa das unidades que o código Mie do LibRadtran retorna a extinção, obtida pela equação 2.30 (seção 2.4). Esse coeficiente de extinção é normalizado pela concentração mássica total da população de aerossóis. Por isso, o chamamos de coeficiente de extinção mássico $\alpha_{m,ext}$ (em $km^{-1}(g/m^3)^{-1}$). Dessa forma, basta multiplicá-lo por $M(z)$ (em g/m^3) para obter o $\alpha_{aer}(z)$, e conseqüentemente, $\beta_{aer}(z)$, de acordo com a concentração em massa de cada nível. Assim, as unidades de ambos foram convertidas em m^{-1} e $m^{-1}sr^{-1}$ respectivamente. Na multiplicação a massa foi cancelada, portanto, a densidade usada para calcular a massa do aerossol não alterou os perfis do coeficiente de extinção e retroespalhamento. Levando isso em consideração, escolhemos arbitrariamente a densidade dos aerossóis nas duas modas como $\rho = 1 g/cm^3$.

3.5 Simulação do sinal elástico do lidar em 355 nm

Uma vez calculadas as propriedades intrínsecas dos aerossóis como explicado na seção 3.4, os perfis de $\alpha_{aer}(z)$ e $\beta_{aer}(z)$ foram obtidos para diferentes perfis de concentração mássica como nos dois casos seguintes: (1) Considerando apenas aerossóis da moda de Aitken na UT e aumentando progressivamente sua concentração; (2) Fixando a concentração dos aerossóis da moda de acumulação próximos à superfície e aumentando progressivamente a concentração dos aerossóis da moda de Aitken na UT. Utilizamos o $\alpha_{aer}(z)$ e o $\beta_{aer}(z)$ obtidos para calcular a equação do lidar e obter o número de fótons detectados em função da altitude, que chamamos de sinal teórico do lidar, denotado por $P_{teorico}(z, \lambda)$. Finalmente, um ruído de Poisson pode ser adicionado ao sinal teórico, resultando em um sinal simulado que é indistinguível do sinal medido. Os detalhes de cada passo serão discutidos nas seguintes subseções.

3.5.1 Simulação do sinal molecular e calibração da simulação

Outras variáveis importantes a serem consideradas nas simulações são os termos de espalhamento e absorção molecular. Entretanto, diferente dos aerossóis na UT, que variam sua concentração nas simulações, os termos moleculares permanecem fixos. Eles são o termo molecular de extinção $\alpha_{mol}(z)$ e retroespalhamento $\beta_{mol}(z)$ dos gases atmosféricos. Estes termos foram calculados como descrito no capítulo de fundamentação teórica (seção 2.3), que menciona a necessidade de utilizar perfis de pressão e temperatura de radiossondas para escalar os valores de extinção e retroespalhamento molecular em cada nível segundo Bucholtz (1995) e Bodhaine et al. (1999). Em vista disso, utilizamos o perfil tropical padrão de pressão e temperatura mostrados na figura 3.11. Esse é um perfil médio obtido por vários dados de radiossondagens nos trópicos (Anderson et al., 1986).

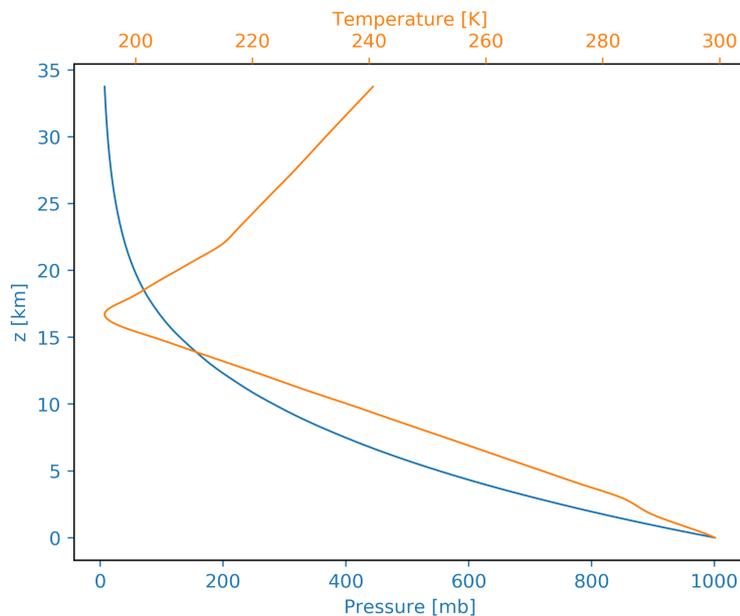


Figura 3.11: Perfis tropicais padrões de pressão (em azul) e temperatura (em laranja) utilizados para calcular a extinção e retroespalhamento molecular segundo Bucholtz (1995) e Bodhaine et al. (1999).

Além do $\alpha_{mol}(z)$ e $\beta_{mol}(z)$, precisamos considerar também a área do telescópio (A), energia do pulso (E_0) e função de overlap ($O(z)$), que foram ajustados em $0,13 \text{ m}^2$, 95 mJ e 1 respectivamente. Esses valores, exceto a função de overlap, são do lidar LFA IF-USP, que estamos simulando. Na prática, o overlap do lidar LFA IF-USP só é completo (igual a 1) acima de 3 km (Barbosa et al., 2014). Abaixo disso, ele se comporta como mostra a figura 2.6b do capítulo de fundamentação teórica. Porém, considerar ela igual a 1 em toda trajetória vertical não muda a intensidade do sinal detectado, pois ela é um termo de geometria do sistema, que envolve a superposição entre o cone do sinal emitido e o cone de detecção do telescópio, como explicado na seção 2.3. Portanto, apesar do sinal simulado parecer diferente do sinal observado nos primeiros 2 km, acima desta altitude, eles têm a

mesma intensidade, pois a atenuação dos fótons pela atmosfera é a mesma nos dois casos.

Neste contexto, e considerando o objetivo deste estudo, simulamos inicialmente o sinal molecular, ou seja, consideramos apenas absorção e espalhamento molecular. Todos os parâmetros do instrumento foram ajustados como explicado acima, e consideramos uma eficiência de detecção igual a 1. Isso foi feito para calibrar a simulação, obtendo a eficiência do equipamento através de um ajuste do sinal molecular simulado numa camada onde os dados observacionais supostamente não têm aerossóis, ou seja, supondo que nessa camada o sinal do equipamento é puramente devido a moléculas.

Fizemos isso pelo ajuste do sinal molecular teórico ao perfil médio de 1 h (das 21 h às 22 h, do dia 14 de setembro de 2014) dos dados apresentados na figura 3.5b. O ajuste ou calibração molecular consiste em uma regressão linear entre o sinal do lidar $P_{obs}(z, 355nm)$ e o sinal molecular simulado $P_{mol}(z, 355nm)$ em uma camada que acreditamos ter quantidades desprezíveis de aerossóis (entre 20 a 30 km). O coeficiente angular do ajuste é justamente a eficiência de detecção do lidar, seguindo: $P_{obs}(z, 355nm) = \eta_0 P_{mol}(z, 355nm)$. Esse ajuste foi feito sem considerar as incertezas de cada ponto, atribuindo o mesmo peso para cada um. Como a incerteza dos dados segue $\sqrt{a/M}$, onde “a” é a média de 1 h e M os perfis de 30 s usados na média, os pontos acima teriam peso maior. Porém, sabemos que mais acima o sinal é mais ruidoso, e a razão S/N é menor, logo esses pontos deveriam ter peso menor no ajuste. Outra coisa é que não removemos o ruído de fundo da eletrônica de cada perfil antes de calcular o sinal médio. Pois como reportado por [Barbosa et al. \(2014\)](#), medidas do lidar LFA IF-USP com o telescópio tampado detectaram menos de 1 contagem aleatória por perfil abaixo de 30 km. Além disso, também não temos ruído de fundo solar, visto que pegamos um conjunto de dados noturnos. Enfim, o *scatter plot* do sinal médio e o ajuste estão mostrados na figura 3.12, onde obtemos $\eta_0 = 0,00797$ (4). Também podemos ver que o modelo se ajustou bem aos dados, com resíduos fluando aleatoriamente em torno de zero.

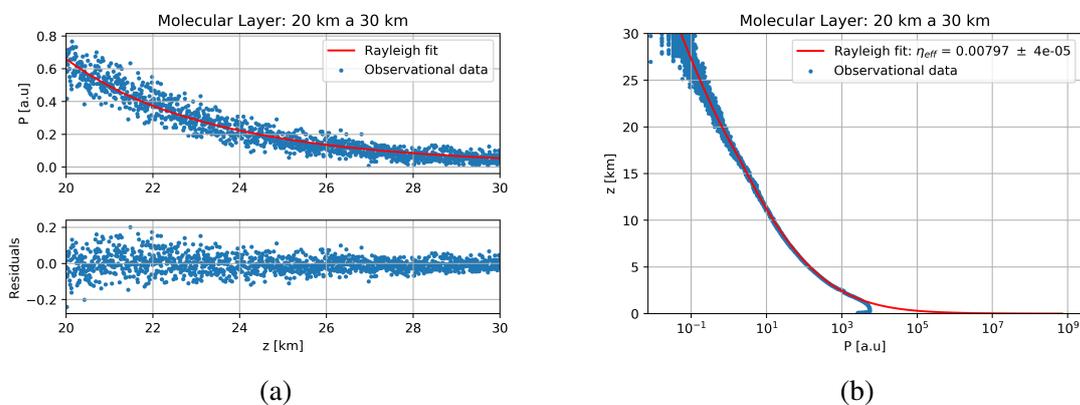


Figura 3.12: (a) Gráfico de dispersão do ajuste entre o modelo molecular $P_{mol}(z, 355nm)$ e os dados observacionais do lidar $P_{obs}(z, 355nm)$ na referência molecular, definida entre 20 e 30 km, (b) mesmo ajuste da parte (a), mas mostrado do solo até 30 km.

Esse é o valor de referência da eficiência do lidar LFA IF-USP. A partir desta referência, fizemos simulações com valores de η_0 cada vez maiores (de 1 a 10 000 vezes), até detectar os aerossóis ultrafinos na UT, o que será discutido na seção 4.4. A tabela 3.2 mostra os valores de eficiência do lidar que foram usados nas simulações.

3.5.2 Inclusão do termo dos aerossóis na simulação

Como foi mostrado na figura 3.7a, o perfil simulado de concentração em número dos aerossóis ultrafinos foi baseado no perfil mediano detectado pela aeronave HALO. Entretanto, houve voos em que o número de partículas medidas foi muito maior do que o perfil mediano. Segundo [Andreae et al. \(2018\)](#), acima de 8 km, o número dos núcleos de condensação (CN) varia tipicamente entre 2000 a 19 000 cm^{-3} , chegando a 65 000 cm^{-3} em alguns casos. Sabendo disso, e considerando que o perfil mediano da figura 3.6a que nos baseamos tem concentração em torno de 5000 cm^{-3} acima de 8 km, concluímos que os valores de concentração numérica de CN podem ser até ~ 13 vezes maiores que a mediana. Assim, simulamos a concentração dos aerossóis ultrafinos aumentando seu valor de 1, 2, 4, 8 e 16 vezes na UT.

Dessa forma, simulamos o sinal do lidar em dois casos: (1) Aumentando a concentração dos aerossóis da moda de Aitken na UT sem considerar os aerossóis da moda de acumulação; (2) Aumentando a concentração dos aerossóis da moda de Aitken na UT, mas incluindo o perfil simulado, dos aerossóis da moda de acumulação (figura 3.7b). Isso deixa a simulação mais parecida com um caso real, onde encontraremos aerossóis dentro da PBL que atenuam o sinal do lidar e diminuem a razão sinal-ruído na UT.

A tabela 3.2 mostra os valores simulados de concentração em massa dos aerossóis ultrafinos (M_{uf}), dos aerossóis da moda de acumulação (M_{acc}) e eficiência do sistema lidar (η). Onde $M_{0,uf}$ e $M_{0,acc}$ representam os perfis medianos de aerossol ultrafino e da moda de acumulação obtidos pela aeronave HALO. As letras gregas ν e κ representam em quantas vezes a massa dos aerossóis ultrafinos e a eficiência do lidar foram aumentados nas simulações. Simplificando, $\nu = 1, 2, 4, 8$ e 16 e $\kappa = 1, 10, 100, 1000$ e $10\,000$.

Tabela 3.2: Valores de eficiência do lidar e massa dos aerossóis que foram utilizados nas simulações do sinal do lidar nos casos: (1) Apenas aerossol ultrafino na UT, (2) Aerossol ultrafino na UT e da moda de acumulação na PBL.

Casos	M_{uf} [g/m^3]	M_{acc} [g/m^3]	η
(1) Aitken	$v \times M_{0,uf}$, onde $v = 2^n$ com $n = 0, 1 \dots 4$	–	$\kappa \times \eta_0$, onde $\kappa = 10^n$, com $n = 0, 1 \dots 4$
(2) Aitken + Acumulação	$v \times M_{0,uf}$, onde $v = 2^n$ com $n = 0, 1 \dots 4$	$M_{0,acc}$	$\kappa \times \eta_0$, onde $\kappa = 10^n$, com $n = 0, 1 \dots 4$
Número de variações	5	1	5

3.6 Aplicação do algoritmo de inversão e métodos estatísticos

Com as simulações calibradas e a contribuição dos aerossóis ao sinal devidamente contabilizados, ao todo, temos 25 situações distintas, para cada um dos 2 tipos de perfis de concentração mássica (apenas Aitken e Aitken + acumulação), pois consideramos 5 concentrações de massa na UT e 5 eficiências do lidar. Optamos por manter fixo o valor do índice de refração real, e variar o índice imaginário para obter diferentes valores de lidar ratio, quando necessário.

Na primeira subsecção abaixo, explicamos como construímos o procedimento de detecção das partículas ultrafinas que analisa a influência do erro sistemático do lidar ratio na detecção. Consideramos dois valores subestimados, dois superestimados e um igual ao simulado no algoritmo. Isso foi feito porque um dos principais problemas do algoritmo de inversão é o lidar ratio dos aerossóis, o qual é uma fonte de erro sistemático nas propriedades ópticas recuperadas.

Em seguida, na próxima subsecção (seção 3.6.2), explicamos o procedimento de detecção das partículas ultrafinas na UT. Neste caso, variamos o lidar ratio na simulação para representar a variabilidade natural observada na atmosfera, enquanto utilizamos o lidar ratio médio na inversão do sinal, como é feito usualmente na análise de dados.

3.6.1 Método de detecção com erro sistemático no lidar ratio no código de inversão

Como discutimos na fundamentação teórica, a escolha de um valor para o lidar ratio é um dos erros sistemáticos típicos na inversão do sinal do lidar elástico. Para avaliar se tal erro poderia impactar a detecção das partículas ultrafinas na UT, fizemos simulações com um lidar ratio fixo e variamos o lidar ratio utilizado na inversão do sinal simulado.

Utilizamos 1,45 e 0,007 para a parte real e imaginária respectivamente, que correspondem a um lidar ratio de 22 *sr* para as partículas da moda de Aitken e 68 *sr* para as partículas da moda de acumulação. Estes valores correspondem aproximadamente ao centro das distribuições apresentadas na figura 3.9.

Assim, para cada uma das situações de massa e eficiência do lidar, com índices de refração fixos nos valores acima, seguimos o seguinte procedimento para saber se as partículas na UT foram detectadas:

1. adicionamos o ruído de Poisson no sinal teórico para que ele ficasse parecido com uma medida real do instrumento.
2. aplicamos o algoritmo de inversão para obter a extinção $\alpha_{aer}(z)$, o retroespalhamento $\beta_{aer}(z)$ e o AOD_{UT} dos aerossóis na UT.
3. propagamos a incerteza de $\alpha_{aer}(z)$ e AOD_{UT} pelo método de Monte Carlo, fazendo 100 inversões do sinal.
4. por fim, aplicamos 3 testes estatísticos para saber se as partículas da moda de Aitken na UT foram detectadas ou não.

Para a inversão do sinal, utilizamos lidar ratios de entrada que foram obtidos pelo código Mie com índice de refração real fixo em 1,45 e índice de refração imaginário igual 0,003 ($\sim 55\%$ menor que o simulado), 0,005 ($\sim 30\%$ menor que o simulado), 0,007 (igual ao simulado), 0,009 ($\sim 30\%$ maior que o simulado) e 0,011 ($\sim 55\%$ maior que o simulado). Isso é equivalente a um L_{aer} igual a 20, 21, 22, 23 e 24 *sr* para as partículas da moda de Aitken, e 65, 66, 68, 69 e 71 *sr* para as partículas da moda de acumulação. A figura 3.13 mostra os perfis de lidar ratios usados na inversão do sinal do lidar, onde a cor verde mostra o lidar ratio exato (correspondente a $\Re=1,45$ e $\Im = 0,007$) do sinal simulado, e os outros são valores subestimados e superestimados. Estamos nos referindo ao lidar ratio usado no algoritmo de L_{inv}^{aer} , onde o primeiro valor se refere às partículas ultrafinas, e o segundo, às partículas da moda de acumulação. Note que usamos o lidar ratio dos aerossóis da moda de acumulação abaixo e acima da UT. Isso porque o perfil de concentração desses aerossóis foi simulado por uma gaussiana com máximo em 1,1 km, logo, seu valor não é diferente de zero em todo perfil, mesmo que desprezível a partir de 7 km. De maneira análoga, só usamos o lidar ratio da moda de Aitken na UT porque eles só tem concentração diferente de zero nessa camada.

Outro detalhe é que mesmo no caso dos sinais simulados com apenas partículas da moda de Aitken na UT, também utilizamos os perfis da figura 3.13, ou seja, com o lidar ratio dos aerossóis da moda de acumulação abaixo e acima da UT. Como o perfil de extinção é correlacionado, em outras palavras, pontos próximos à superfície tem correlação com pontos na UT, que depende diretamente do lidar ratio no código de inversão (seção 2.5), se

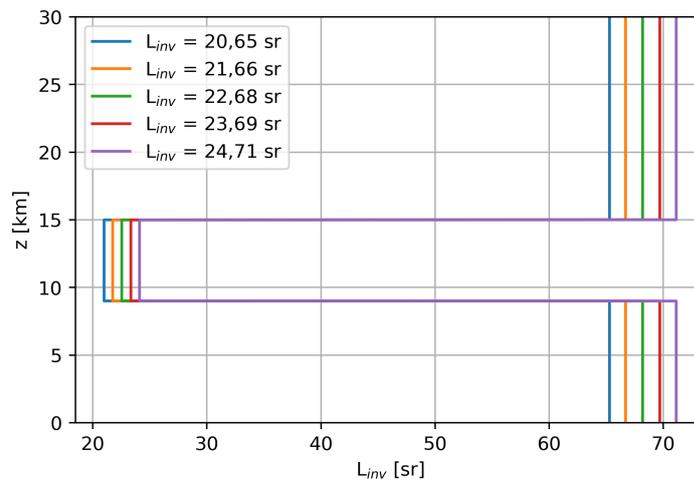


Figura 3.13: Perfis de lidar ratio usados na inversão do sinal do lidar. Em verde podemos ver o perfil verdadeiro no qual o sinal foi simulado. As outras cores são valores subestimados e superestimados, que foram estudados na seção 4.5, nas análises de detecção das partículas ultrafinas.

não usarmos o mesmo perfil de lidar ratio na inversão do sinal nos dois casos, os termos de correlação propagados por Monte Carlo (no procedimento 3) são diferentes. Percebemos que isso altera significativamente a incerteza no AOD_{UT} recuperado, que acaba sendo maior no caso que não temos aerossóis na PBL. Porém, isso não faz sentido, pois eles atenuam mais o sinal, diminuindo ainda mais a razão sinal-ruído na UT. Logo, a incerteza do AOD_{UT} , devido ao erro aleatório na razão S/N deveria ser maior nas simulações com aerossóis da moda de acumulação. Portanto, ao utilizar o mesmo perfil de lidar ratio nos dois casos, conseguimos contornar esse problema, observado apenas no AOD.

Quanto aos testes estatísticos para detecção dos aerossóis, utilizamos 3 alternativas. O primeiro verifica se a condição $\alpha_{aer} / \sigma_{\alpha} > 3$ é satisfeita em pelo menos um bin (7,5 metros) dentro da UT. O segundo teste verifica se a mesma condição anterior é satisfeita por 500 metros consecutivos dentro da UT. O último teste verifica se o AOD calculado na UT é pelo menos 3 desvios padrões de zero, ou seja, se $AOD / \sigma_{AOD} > 3$. Convencionamos que para cada teste, que serão analisados individualmente, se sua respectiva condição for satisfeita, então as partículas são detectadas.

Repetimos o procedimento acima (passos 1 a 4) 100 vezes para cada uma das 25 situações (5 massas e 5 eficiências do lidar), simulando 100 experimentos de Monte Carlo. Assim, estimamos a frequência relativa de detecção em cada uma das situações para cada um dos testes estatísticos. Essa frequência (f) é o número de vezes que as partículas na UT foram detectadas entre os 100 experimentos ($f = N_{DETECTOU} / 100$), que representam 100 possíveis medidas. Assim, foi possível fazer um gráfico de densidade de $M_{UT} \times \eta$, onde as cores representam o valor da frequência de detecção. O diagrama abaixo (figure 3.14) exemplifica o processo descrito acima, onde a seta que liga a última caixa com a primeira

mostra que o processo está sendo repetido.

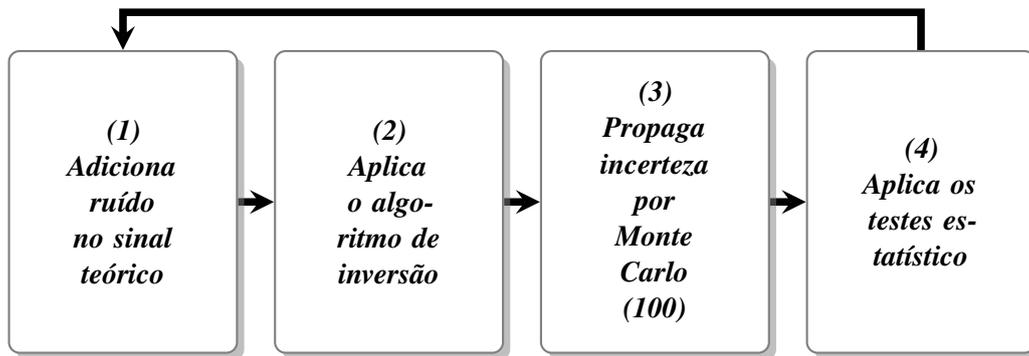


Figura 3.14: Diagrama de fluxo: ilustração do procedimento de detecção das partículas ultrafinas na UT. Neste caso, usamos lidar ratios subestimados e superestimados na inversão do sinal do lidar.

3.6.2 Método de detecção usando o lidar ratio médio no código de inversão

Devido à variabilidade natural dos aerossóis atmosféricos, consideramos que o lidar ratio das partículas poderia variar, afetando portanto a simulação do sinal do lidar. Assim, fixamos o $\Re=1,45$ e variamos a parte imaginária em cada um dos 100 experimentos de Monte Carlo. O sorteio foi feito segundo uma função gaussiana em torno de 0,007 com $\sigma_{im} = 0,002$, para escolher um dos 100 valores de \Im calculados previamente com o código Mie. Em seguida, na aplicação do algoritmo de inversão, utilizamos o perfil de L_{inv}^{aer} de referência, ou seja, o perfil verde da figura 3.13, obtido para $\Re=1,45$ e $\Im = 0,007$.

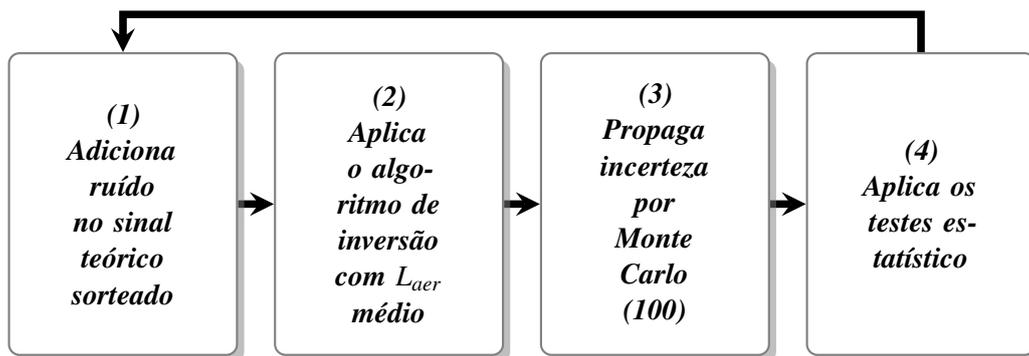


Figura 3.15: Diagrama de fluxo: ilustração do procedimento de detecção das partículas ultrafinas na UT. Neste caso, usamos o lidar ratio médio na inversão do sinal do lidar.

Como discutido anteriormente, esse valor da parte real e imaginária do índice de refração é equivalente a um lidar ratio da moda de Aitken de 22 sr e da moda de acumulação de 68 sr, os quais representam um valor médio na região. Então, para cada experimento, o

perfil de lidar ratio dos sinais teóricos flutuam aleatoriamente em torno do lidar ratio de referência, usado na sua inversão. Dessa forma, simulamos uma situação parecida com o caso real, onde o lidar ratio das partículas não é conhecido. Na vida real, os aerossóis da atmosfera mudam com o tempo e a cada medida do lidar, portanto, o que se faz geralmente é estimar o lidar ratio médio dos aerossóis e usá-lo no algoritmo de inversão. Portanto, neste caso, o procedimento de detecção se diferencia da subseção anterior nos passos 1 e 2, seguindo o diagrama da figura 3.15.

Capítulo 4

Resultados

Os resultados são divididos em cinco partes principais. Primeiro, discutimos a distribuição estatística do sinal do lidar, e o efeito de fazer médias temporais ou verticais. Em seguida, estudamos como o sinal do lidar teórico varia com alterações dos parâmetros de performance do equipamento (resolução e eficiência) e das propriedades dos aerossóis (índices de refração e concentração). Depois, avaliamos a qualidade do ajuste molecular utilizado no algoritmo de inversão, buscando diminuir eventuais erros sistemáticos. Finalmente apresentamos a análise da probabilidade de detecção das partículas na UT para diferentes situações de massa dos aerossóis e eficiência do sistema lidar. Finalizamos com uma discussão sobre a influência de um eventual erro sistemático no lidar ratio nas nossas análises.

4.1 Análise estatística do sinal lidar

Segundo a seção 2.2, o sinal do lidar segue uma função de probabilidade de Poisson $f(n;a)$, com número de contagem “ n ” e parâmetro $a > 0$. Aqui, verificamos essa propriedade a partir de um conjunto de dados reais. Utilizamos os mesmos dados da figura 3.5b, 120 perfis de 30 s entre 21 h e 22 h (em hora local) em 14 de setembro de 2014, no sítio experimental EMBRAPA. A figura 4.1 mostra os histogramas para 4 bins do sinal do lidar com centro em alturas diferentes. Além disso, suas respectivas funções de probabilidade teóricas, skewness e kurtosis também estão sendo mostradas. A função teórica foi calculada com parâmetro a igual a média de 1 h de contagens em cada bin.

Podemos observar que os 4 histogramas tem skewness positiva. Por mais que esses valores sejam pequenos e próximos de zero, isso significa que a asa direita das 4 distribuições são sutilmente mais alongadas, uma característica da função de Poisson. A kurtosis em geral ficou muito próxima de 3, igual a distribuição gaussiana, exceto para o bin com centro em 12,056 km, com valor um pouco maior, igual a 4. Porém, era esperado que a kurtosis e a skewness fossem próximas de valores gaussianos, pois o parâmetro a das distribuições é suficientemente alto para aproximar a função teórica de Poisson por uma gaussiana. Além disso, as distribuições de Poisson se ajustaram razoavelmente bem aos histogramas, indicando que o comportamento está muito próximo de uma Poisson.

Em seguida, para a mesma série temporal de uma hora, geramos histogramas acu-

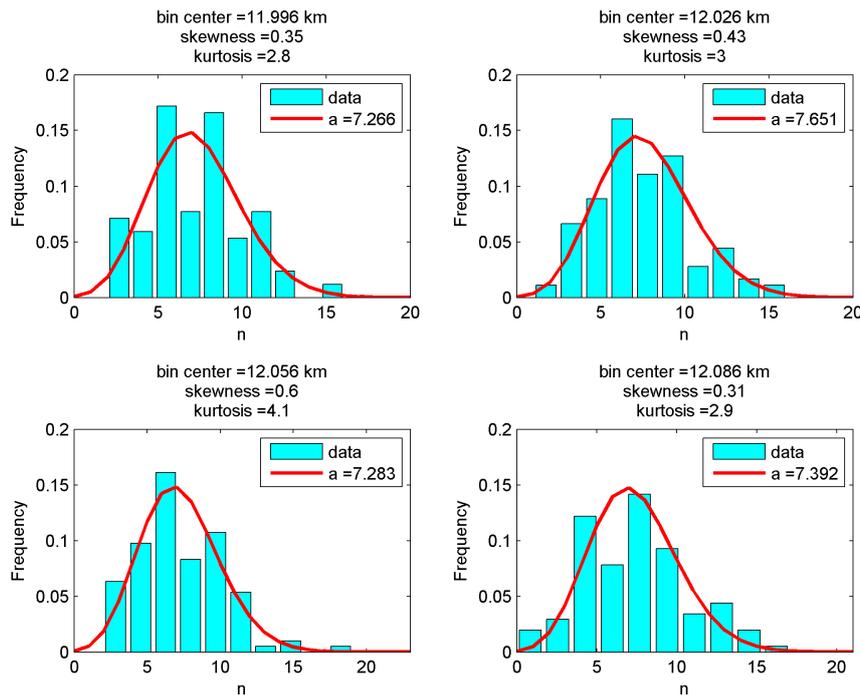


Figura 4.1: Histogramas da série temporal da figura 3.5b, entre 21 h e 22 h. O título de cada painel indica a altura do centro de cada bin, a skewness e a kurtosis da distribuição dos dados. A função teórica está indicada em vermelho, obtida com parâmetro $a = \langle n \rangle$, onde n é o número de contagens.

mulando 3, 6, 9 e 12 bins verticais (22,5, 45, 67,5 e 90 m) a partir de 12 km de altura. Espera-se que esses dados acumulados continuem seguindo uma Poisson com número de contagem $N = n_1 + \dots + n_q$ e parâmetro $A = a_1 + \dots + a_q$, onde q é o número de bins que foram acumulados. De fato, os histogramas da figura 4.2 mostram que a distribuição teórica de Poisson $f(N;A)$ continua representando bem os dados. Também vemos que essa função é praticamente uma gaussiana, com kurtosis muito próxima de 3 em todos os casos e skewness praticamente igual a zero a partir de um bin de comprimento $dz = 45$ m. Novamente, isso também era esperado pois os parâmetros da distribuição (A) agora são muito altos, satisfazendo a condição que faz a Poisson virar uma gaussiana, ou seja, uma distribuição em forma de sino, com o “achatamento” dado por uma kurtosis = 3 e asas simétricas por uma skewness = 0.

Nesse contexto, através de um gerador de números aleatórios de Poisson, conseguimos simular o sinal do equipamento com mesma intensidade e razão sinal-ruído (S/N) no topo da troposfera. A figura 4.3 mostra um perfil de 30 s do lidar e o sinal molecular simulado. Esse sinal não considera aerossóis, nem a função de *overlap*, por isso é diferente das observações em camadas próximas à superfície. Já foi pontuado na seção 3.5.1 que isso não interfere na detecção dos aerossóis, pois o importante é o sinal ter a mesma razão S/N acima de 2 km, onde o *overlap* é igual a 1.

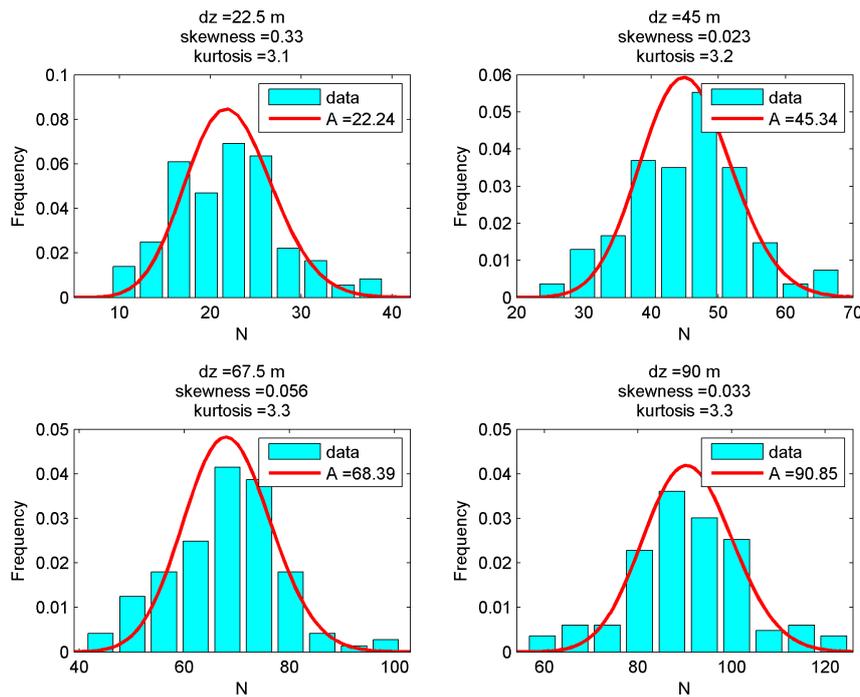


Figura 4.2: Histogramas da série temporal, entre 21 e 22 h, da figura 3.5b, em 12 km de altura e acumulando bins na vertical. O título de cada figura mostra o comprimento do bin resultante, a skewness e a kurtosis. A função teórica está indicada em vermelho, obtida com parâmetro $A = \langle N \rangle$, onde N é o número total de contagens.

Como a contagem de fótons segue uma distribuição de Poisson, sabemos como a razão S/N irá mudar ao tomar médias temporais ou acumular bins verticais. Acumular bins é equivalente a aumentar o comprimento de um bin. Pela equação do lidar (equação 2.14), o comprimento do bin é um termo multiplicativo. Então, lembrando que a incerteza de Poisson é raiz quadrada do sinal, aumentar o comprimento do bin por um fator δ é o mesmo que aumento da razão sinal-ruído por um fator $\sqrt{\delta}$. Ou seja:

$$S/N = \sqrt{\delta}(S/N)_0 \quad (4.1)$$

onde $(S/N)_0$, no nosso caso, é a razão sinal-ruído em um bin de 7,5 metros de um perfil de 30 s. A figura 4.4a mostra o ajuste da equação 4.1 aos dados experimentais de razão S/N em função do comprimento do bin vertical. Os dados em azul foram obtidos somando consecutivamente a contagem de fótons de vários bins de 7,5 m acima do bin com centro em 12 km de um perfil de 30 s. A curva vermelha é a equação teórica acima, e o bom ajuste aos dados mostra que o modelo descreve satisfatoriamente o aumento da razão S/N em função do acúmulo de bins na vertical.

No caso de uma média temporal, o efeito é o mesmo de um acúmulo de bins, ou seja, a razão S/N vai aumentar com \sqrt{M} , sendo M o número de perfis de 30 s usados na média temporal. Isso pode ser observado na dedução abaixo (equação 4.2), que mostra a razão

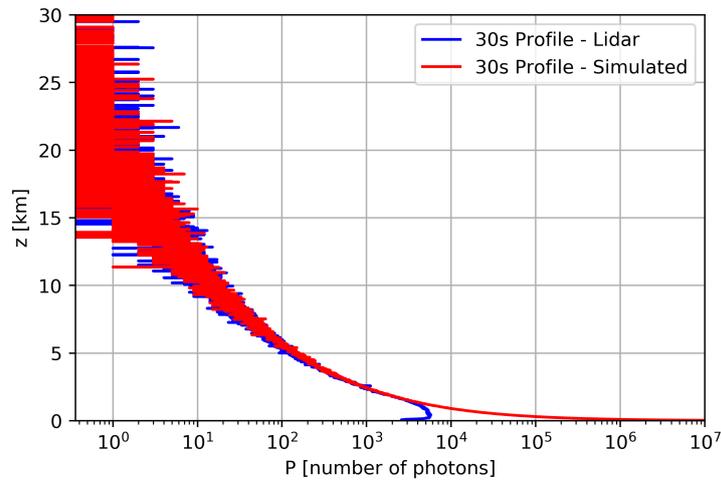


Figura 4.3: Perfil de 30 s do sinal do lidar LFA IF-USP em azul e simulação do mesmo perfil de 30 s com ruído aleatório de Poisson em vermelho

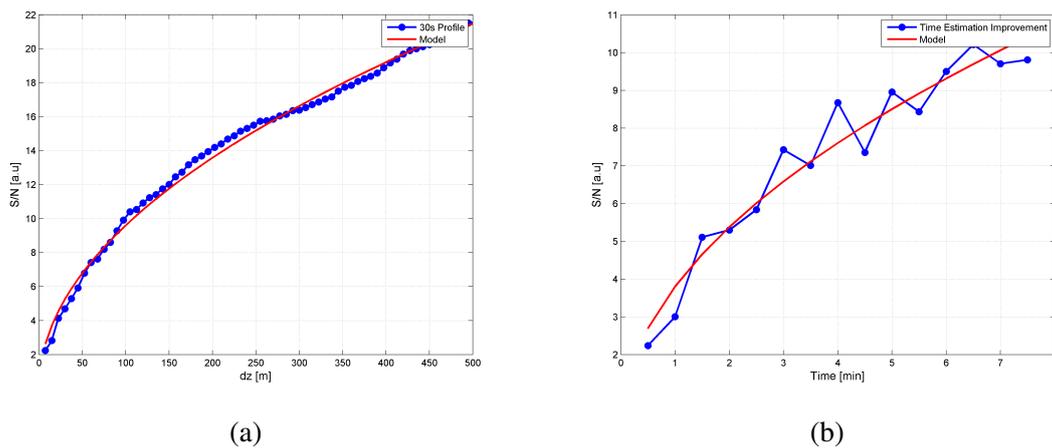


Figura 4.4: Razão sinal-ruído do lidar; (a) Acumulando a contagem de fótons dos bins verticais, (b) Tomando a média temporal em um bin.

S/N de um perfil médio, onde o parâmetro “a” é a média do número de contagens e M o número total de contagem ao longo do tempo. Ao abrir “a”, os M’s se cancelam, resultando na equação da razão S/N de uma soma de bins. Logo, também podemos representar o aumento na razão S/N de uma média temporal pela equação 4.1.

$$S/N = \frac{a}{\sqrt{a/M}} = \frac{N}{\sqrt{N}} \quad (4.2)$$

A figura 4.4b mostra em azul, o aumento na razão S/N de um bin em 12 km ao tomarmos médias temporais cada vez maiores. Tomamos cuidado para não incluir perfis repetidos em cada média, portanto, cada ponto em azul é estatisticamente independente do outro. Por essa razão, a flutuação estatística em torno da equação teórica acima (em vermelho) é maior que no caso de acúmulo de contagens. Podemos observar que o modelo

se ajustou satisfatoriamente aos dados experimentais, variando aleatoriamente em torno da curva teórica. Isso vai ser importante nas análises seguintes, quando determinarmos a razão S/N necessária para detectar as partículas na UT, pois vamos precisar de estratégias para atingir esse valor num caso real.

4.2 Efeito das propriedades dos aerossóis e da eficiência do equipamento no sinal do lidar

Nesta seção, estudamos separadamente o efeito de mudanças nas propriedades dos aerossóis ou na eficiência do lidar na simulação do sinal teórico do lidar, considerando apenas aerossóis da moda de Aitken na UT. A figura 4.5 mostra o sinal do lidar corrigido pela distância para diferentes valores de índice de refração real (figura 4.5a) e imaginário (figura 4.5b). Esses valores estão dentro dos intervalos estipulados na tabela 3.1, que foram obtidos das medidas da rede AERONET na região de Manaus. As simulações são para uma massa dos aerossóis na UT 16 vezes maior que o valor mediano ($M_{0,uf}$) medido pela aeronave HALO. O título de cada gráfico indica os demais parâmetros que foram mantidos fixos.

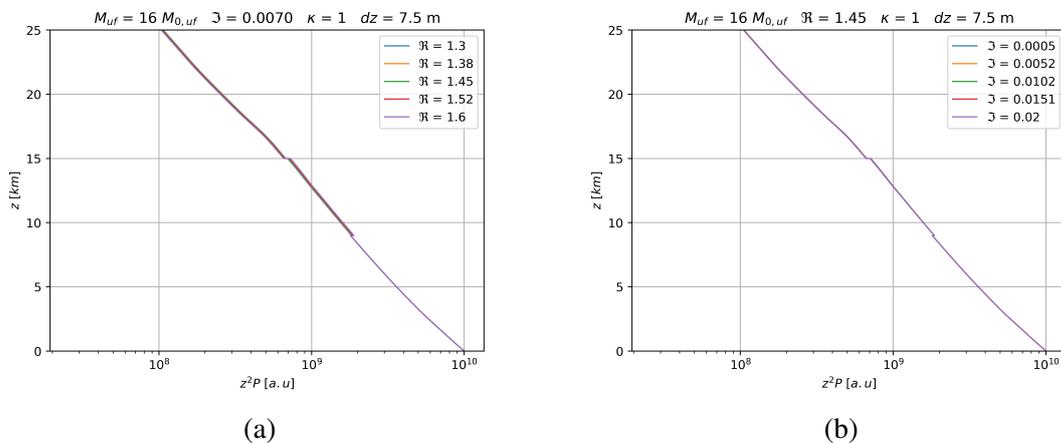


Figura 4.5: Perfis simulados do sinal do lidar em 355 nm variando os índices de refração: (a) real (\Re), (b) complexo (\Im). O título de cada gráfico mostra os parâmetros que foram mantidos fixos, onde M_{uf} , κ e dz , são o fator de aumento da massa de partículas na UT, o fator de aumento na eficiência do lidar LFA IF-USP e a resolução vertical respectivamente.

Tanto a parte real quanto a parte imaginária contribuem para a atenuação do sinal, porém, quanto maior a parte real, maior é o espalhamento, e quanto maior a parte imaginária maior é a absorção. Portanto, os sinais da figura 4.5 são exatamente iguais até 9 km, onde começa a camada de aerossol. A partir desse ponto, na figura 4.5a, o sinal referente a $\Re = 1.6$ é o maior mas também cai mais rapidamente, pois é mais atenuado pelo espalhamento. Contudo, como pode ser observado na figura 4.5a, o sinal simulado não

muda significativamente pois o coeficiente de espalhamento dessa camada é muito pequeno ($0,8$ a $3,4 \text{ Mm}^{-1}$). No caso das variações da parte imaginária, os sinais são idênticos logo acima de 9 km , pois o espalhamento é igual, e aquele referente a $\Im = 0.02$ diminui mais rápido que os outros até 15 km , pois é mais absorvido. Novamente, a diferença não é significativa devido ao pequeno coeficiente de absorção dessa camada ($0,02$ a $0,8 \text{ Mm}^{-1}$), sendo difícil de visualizar esse comportamento na figura. Com esta análise, vemos que a escolha do índice de refração, pelo menos dentro dos intervalos analisados, não têm grande impacto nos perfis simulados. Cabe ressaltar, entretanto, que as partes real e imaginária determinam o valor do lidar ratio, e que a escolha dele na inversão do sinal lidar é de fundamental importância. Discutiremos estas questões na seção 4.5.

Em seguida, a figura 4.6 mostra o sinal teórico do lidar variando a eficiência do equipamento (figura 4.6a) e a concentração mássica (figura 4.6b) dos aerossóis ultrafinos. No caso da eficiência, ela é um termo multiplicativo da equação do lidar. Isso significa que se a aumentarmos por um fator κ , o sinal em todas as altitudes irá aumentar por um fator κ , que é equivalente a um aumento da razão S/N de $\sqrt{\kappa}$, dado pela equação 4.1. Como aumentar a eficiência do lidar é equivalente a aumentar o tamanho do bin ou a média temporal, não mostramos as simulações para estes casos. A partir deste resultado concluímos que esses parâmetros (eficiência, resolução vertical e temporal) são fundamentais para detectar os aerossóis na UT, visto que precisamos de uma razão sinal-ruído alta.

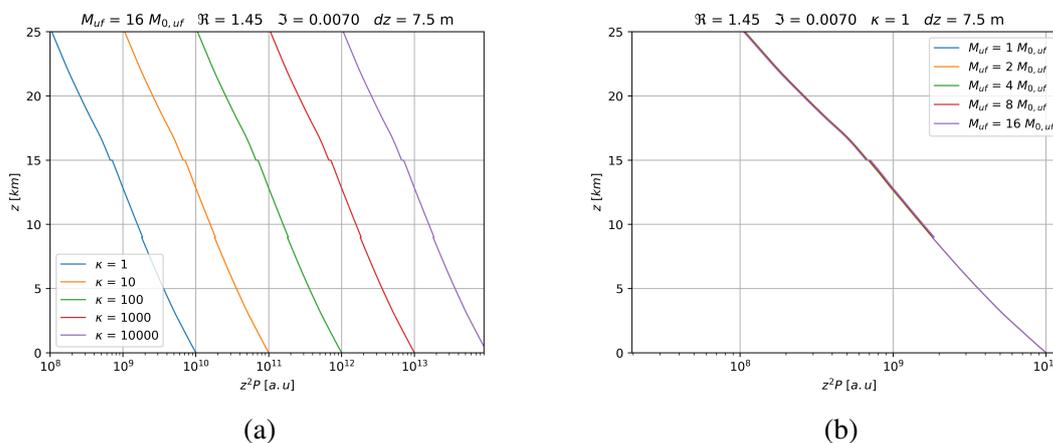


Figura 4.6: Igual a figura 4.5, porém variando (a) a eficiência do lidar, e (b) a concentração em massa dos aerossóis na UT.

Por outro lado, aumentar a concentração mássica dos aerossóis na UT não mudou significativamente a intensidade do sinal, mesmo para uma concentração 16 vezes maior. É importante ressaltar que o retroespalhamento é um termo multiplicativo da equação do lidar, e portanto o sinal detectado é 16 vezes maior. Porém, como estamos inspecionando os gráficos visualmente, esse efeito é pequeno quando comparado a variação do eixo horizontal, de 10^7 a 10^{10} . Numa situação mais realista, testamos a sensibilidade do sistema

lidar invertendo o sinal e tentando identificar a camada de aerossóis da UT. Neste caso, as camadas com concentrações maiores de aerossóis geram uma razão S/N melhor e são detectadas mais facilmente.

4.3 Análise do ajuste molecular do algoritmo de inversão

Durante o processo de inversão, uma das fontes de erros sistemáticos está na determinação da referência molecular. Esta referência é utilizada para calibrar o sinal do lidar através do chamado “ajuste molecular” (similar ao que foi feito na calibração das simulações da seção 3.5.1). Tipicamente, faz-se um ajuste linear entre o sinal do lidar, $P(z)$, e o sinal molecular teórico, $P_{mol}(z)$, sem considerar as incertezas dos dados:

$$P(z) = a P_{mol}(z) + b \quad (4.3)$$

O parâmetro “ a ” serve para calibrar o modelo molecular e “ b ” para considerar o ruído de fundo. A referência molecular, neste caso, é um intervalo de altitudes onde se considera que a contribuição dos aerossóis é desprezível, e o ajuste por mínimos quadrados considera apenas os pontos neste intervalo. Outra metodologia bastante comum é primeiro corrigir o sinal do lidar subtraindo o ruído de fundo (D’Amico et al., 2016), e depois realizar a calibração molecular sem o termo linear.

Nos dois métodos, erros na determinação de a ou b irão afetar a acurácia do procedimento de inversão, pois as propriedades dos aerossóis são obtidas a partir da diferença entre o sinal medido e o sinal molecular calibrado. Em particular, o comprimento da região molecular é importante para a incerteza do coeficiente angular. Além disso, a remoção correta do ruído de fundo é fundamental para conseguir medir pequenas quantidades de aerossóis, como é o nosso caso na UT.

Nesse cenário, utilizamos simulações para estudar como o ajuste molecular é afetado pelo método escolhido e pela razão sinal-ruído. Simulamos o sinal do lidar sem partículas de aerossol e sem ruído de fundo, considerando eficiências do instrumento $\kappa = 100, 1000,$ e $10\,000$. Ajustamos o modelo molecular entre 20 e 25 km (intervalo de altura) com três métodos: (1) função com termo linear e sem considerar as incertezas, (2) função sem termo linear e sem considerar as incertezas, (3) função sem termo linear e considerando as incertezas. Os ajustes deveriam ser cada vez melhores conforme κ aumenta, pois estamos melhorando a razão S/N. Além disso, deveriam representar bem todo o perfil, mesmo longe da referência molecular, pois o sinal foi simulado só com moléculas. Portanto, para verificar a qualidade do ajuste, calculamos os resíduos relativos na superfície, ou seja, a diferença entre o sinal do lidar e o modelo molecular ajustado, dividido pelo sinal do lidar. Repetimos o processo 1000 vezes e analisamos os resultados estatisticamente. Cada um dos painéis da figura a seguir mostra o histograma dos desvios relativos para cada valor de

eficiência do lidar, e as cores indicam os diferentes métodos, com a média (μ) e desvio padrão (σ) indicados na legenda.

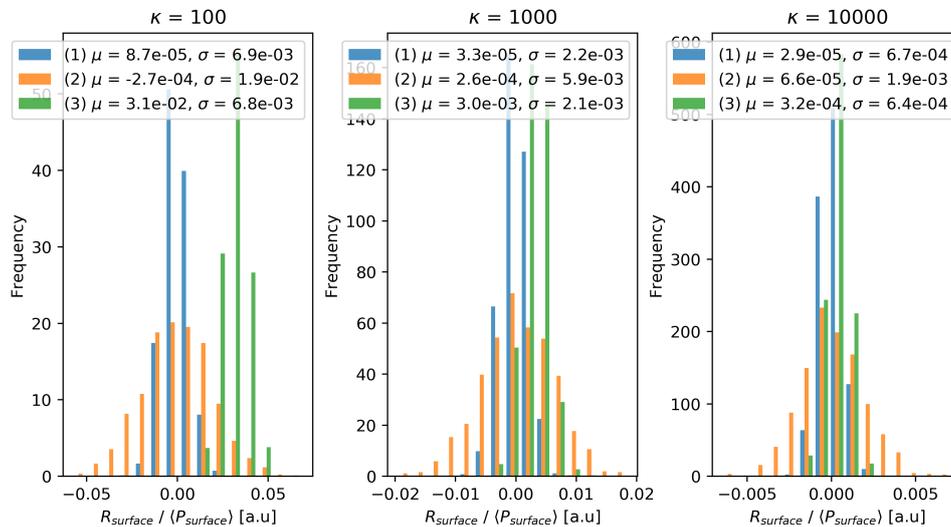


Figura 4.7: Histogramas dos resíduos relativos do ajuste molecular na superfície. Da esquerda para a direita os histogramas são para $\kappa = 100$, 1000 e 10000 respectivamente. A legenda indica os métodos de ajuste (ver texto), a média e o desvio padrão.

O primeiro resultado notável destes histogramas é que considerar as incertezas do sinal piorou o ajuste. Isso fica claro no histograma com menor eficiência ($\kappa = 100$), onde os resíduos relativos na superfície ficam deslocados sistematicamente de zero. Esse deslocamento só é eliminado para eficiências mais altas, praticamente desaparecendo para $\kappa = 10000$, caso em que a razão S/N é bem maior. Uma possível explicação é a diferença entre as distribuições de Poisson e Gaussiana. No caso de eficiências menores, o sinal nas camadas mais altas da atmosfera é pequeno e sua distribuição de probabilidade não pode ser aproximada por uma Gaussiana, uma hipótese forte do método de mínimos quadrados. Para eficiências maiores, as distribuições podem ser cada vez melhor aproximadas por Gaussianas. Outra possível explicação é a diferença na incerteza (\sqrt{n}) entre 20 e 25 km. No caso de eficiências menores, o sinal nas camadas mais altas da atmosfera é muito pequeno, e o ajuste acaba priorizando pontos mais altos, que tem uma razão S/N muito pequena também.

Outro resultado importante, em relação ao termo linear do ajuste, é que a distribuição dos resíduos relativos fica mais dispersa (o σ é uma ordem de grandeza maior aproximadamente) em relação ao caso sem esse termo. Portanto, considerar o termo linear piora a precisão do ajuste. Isso vai propagar incertezas maiores no retroespalhamento, extinção e AOD calculados pelo algoritmo de inversão. Para ilustrar, refizemos as simulações incluindo partículas da moda de Aitken na UT (com AOD = 0,0008) e analisamos os valores de AOD e da sua incerteza. A figura 4.8 mostra os histogramas das distribuições de AOD/σ_{AOD} . Para eficiências do lidar baixas, o sinal é tão ruidoso que os valores de

AOD são compatíveis com zero, sendo que 50% são negativos, para os métodos 1 e 2 do ajuste molecular. Não fizemos o método do ajuste considerando os erros, pelos motivos que discutimos acima. Conforme a eficiência aumenta, a distribuição que considera o termo linear no ajuste (laranja) fica em torno de valores menores em comparação ao caso sem esse termo (azul). Isso acontece porque a incerteza propagada no AOD calculado é maior no caso com o termo linear.

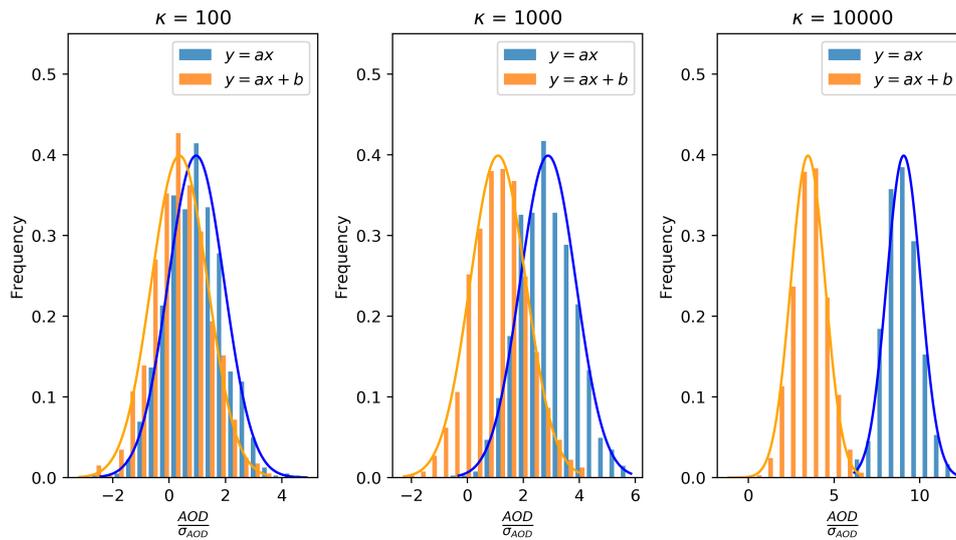


Figura 4.8: Histogramas do AOD recuperado, dividido pela sua incerteza. Cada painel representa um valor de eficiência do lidar (κ), e faz uma comparação entre os ajustes de calibração do sinal molecular com e sem termo linear.

É importante mencionar que se escolhermos um intervalo de altitude maior para a referência molecular, as diferenças entre os métodos 1 e 2 também diminuem. Por exemplo, se escolhermos a referência entre 20 e 30 km, o termo linear dos ajustes moleculares fica compatível com zero e a precisão dos métodos é praticamente a mesma. Porém, o ajuste sem o termo linear dá bons resultados independentemente do tamanho da referência molecular. Logo, ele é mais seguro para inverter o sinal do lidar nos casos em que sabemos não haver ruído de fundo, ou que este ruído já foi devidamente removido. Esse é justamente o caso estudado aqui e, assim, concluímos que o ajuste molecular deve ser feito sem o termo linear e sem considerar as incertezas do sinal de entrada. Isso foi implementado em todas as análises seguintes.

4.4 Análise de detecção dos aerossóis ultrafinos na UT

Passamos agora a discutir o efeito da massa dos aerossóis na UT e da eficiência do lidar na detecção dos aerossóis ultrafinos na UT. Para cada uma das 25 situações consideradas, 5 valores de eficiência do lidar e 5 de massa dos aerossóis da moda de Aitken na UT, nós

simulamos 100 perfis e invertemos cada um deles. Consideramos que o lidar ratio das partículas na atmosfera pode variar (20 a 24 sr para os ultrafinos, e 64 a 71 sr para os da moda de acumulação), de acordo com os cálculos que realizamos com o código Mie e os índices de refração observados pela AERONET. Os detalhes da análise estão descritos na seção 3.6.2.

4.4.1 Perfis de extinção recuperados pelo algoritmo de inversão

Primeiro, mostramos o efeito de um aumento na eficiência do lidar LFA IF-USP para uma situação de massa dos aerossóis ultrafinos igual a 16 vezes maior que o valor mediano medido pela aeronave HALO. Considerando apenas aerossóis ultrafinos na UT, a figura 4.9 mostra o perfil de extinção, obtido em um dos experimentos (dentro 100) para $\kappa = 1, 10, 100, 1000, 10\,000$. Note que ao longo de cada perfil, a flutuação estatística da extinção é menor dentro UT (entre 9 e 15 km). Isso acontece porque a extinção é obtida pelo produto entre o lidar ratio (assumido) e o retroespalhamento recuperado ($\alpha_{aer}(z) = L_{inv}(z)\beta_{aer}(z)$). Estamos utilizando $L_{inv}^{aer} = 22$ sr para as partículas ultrafinas e, fora desta camada, estamos utilizando $L_{inv}^{aer} = 68$ sr, característico das partículas da moda de acumulação, por isso a descontinuidade. Estamos utilizando este perfil idealizado porém descontínuo de lidar ratio, mesmo neste caso onde só temos partículas na UT, para poder comparar com os resultados seguintes, que incluem os aerossóis da moda de acumulação na camada limite planetária. Continuando a análise da figura 4.9, vemos que para um sinal com mesma intensidade e razão S/N do lidar LFA IF-USP ($\kappa = 1$), a extinção é muito ruidosa, sendo impossível perceber os aerossóis na UT. Porém, conforme a eficiência aumenta, a partir de $\kappa = 100$, o sinal dessas partículas começa a ficar visível, ou seja, sistematicamente maior que zero, sendo totalmente visível em $\kappa = 10\,000$.

Em seguida, a figura 4.10 mostra os perfis de extinção incluindo os aerossóis da moda de acumulação dentro da PBL ($M_{0,acc}$) na simulação do sinal. Esses aerossóis são responsáveis por atenuar mais o sinal do lidar na UT, diminuindo a razão S/N em relação ao caso anterior, e dificultando a detecção dos aerossóis ultrafinos. No entanto, a atenuação provocada por esses aerossóis é pequena, pois simulamos um AOD (355 nm) igual a 0,04, mais representativo de condições limpas na Amazônia (Baars et al., 2011; Artaxo et al., 2013). Portanto, não observamos diferenças significativas na incerteza da extinção recuperada na UT entre os dois casos. Esse resultado é um prelúdio do que será observado nas análises dos mapas de detecção, que não mostram diferenças sistemáticas claras entre os casos com e sem aerossóis da moda de acumulação. Como no caso anterior, a figura 4.10 mostra que a extinção dos aerossóis ultrafinos começa a ficar sistematicamente diferente de zero a partir de $\kappa = 100$. Porém, é importante lembrar que as figuras 4.9 e 4.10 são para uma concentração muito alta de aerossóis ultrafinos, praticamente impossível de ser atingido na região Amazônica. Fizemos isso para que o sinal das partículas na UT ficasse

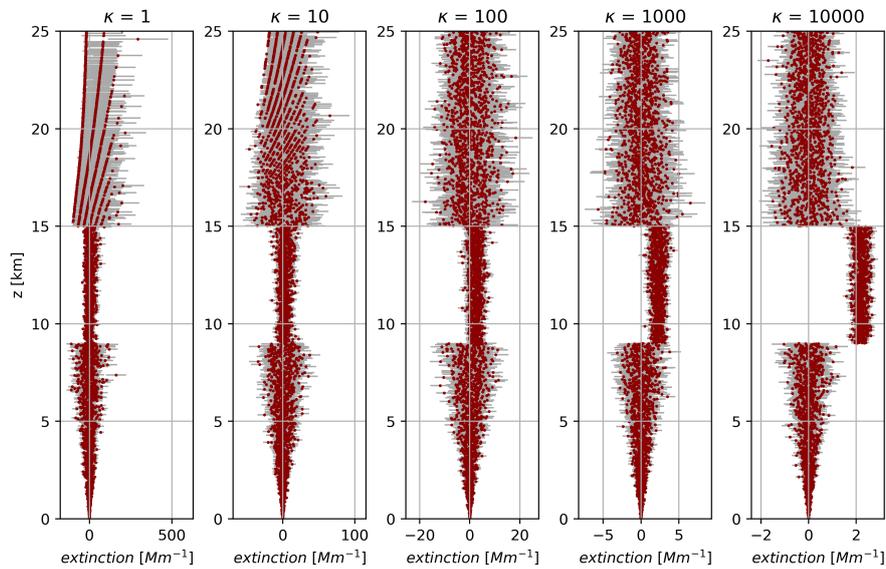


Figura 4.9: Perfis de extinção recuperados pela inversão dos sinais do lidar com eficiências κ . Os sinais invertidos foram simulados com apenas partículas da moda de Aitken na UT com concentração mássica aproximadamente 16 vezes maior que o valor mediano medido pela aeronave HALO.

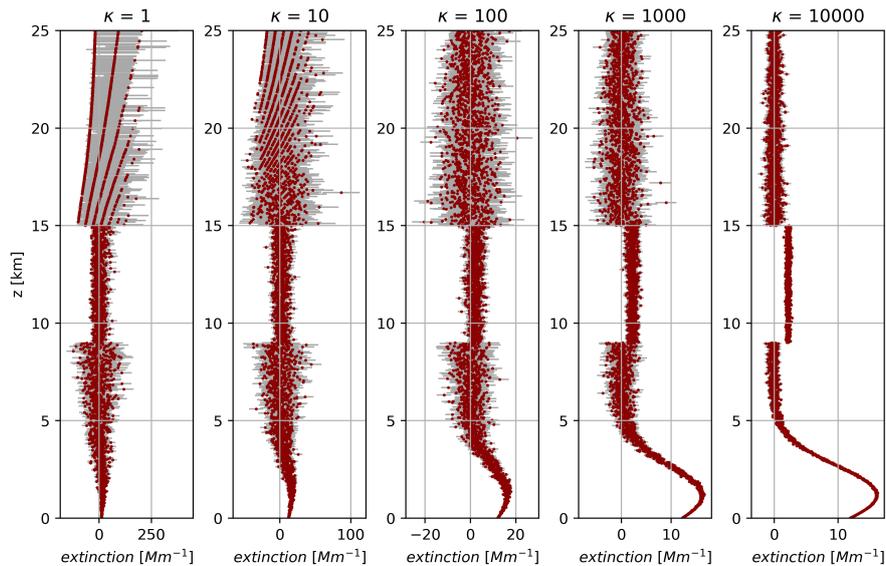


Figura 4.10: Igual a figura 4.9, mas considerando os aerossóis da moda de acumulação, com concentração aproximadamente igual ao valor mediano medido pela aeronave HALO.

bem visível, uma vez que o objetivo aqui era ilustrar o efeito do aumento da eficiência do lidar.

Passamos agora a estudar o efeito de aumentar a massa dos aerossóis na UT, mantendo uma eficiência fixa em $\kappa = 10\,000$. Assim como no caso anterior, isso foi feito para ilustrar o sinal dos aerossóis na UT no perfil de extinção. No caso em que consideramos apenas aerossóis ultrafinos na UT, a figura 4.11 mostra que o sinal dos aerossóis fica visível a partir de $M_{uf} = 2M_{0,uf}$. Porém, através da análise dos mapas de detecção que será feita mais à frente, veremos que para o teste estatístico baseado no AOD, a detecção para $\kappa = 10\,000$ ocorre a partir de $M_{uf} = 1M_{0,uf}$.

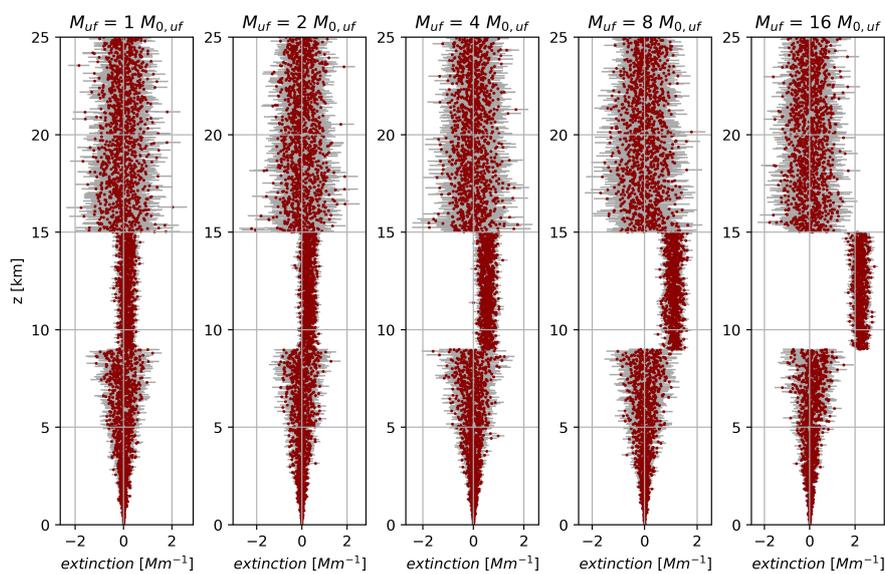


Figura 4.11: Igual a figura 4.9, mas fixando a eficiência do lidar em $\kappa = 10\,000$ e variando a concentração mássica dos aerossóis na UT (M_{uf}).

Por fim, a figura 4.12 mostra o caso considerando os aerossóis da moda de acumulação. Visualmente, é possível observar uma extinção significativamente diferente de zero a partir de $M_{uf} = 4M_{0,uf}$, contudo temos que considerar a mudança da escala horizontal em relação à figura anterior. Ajustando a escala para $\pm 2Mm^{-1}$ (não mostrado), é possível ver que essa diferença fica evidente a partir de $M_{uf} = 2M_{0,uf}$.

Note que as análises do perfil de extinção feitas até agora servem para conferirmos se os efeitos de aumento de massa dos aerossóis ultrafinos e da eficiência do lidar estão de acordo com o esperado, e de fato estão.

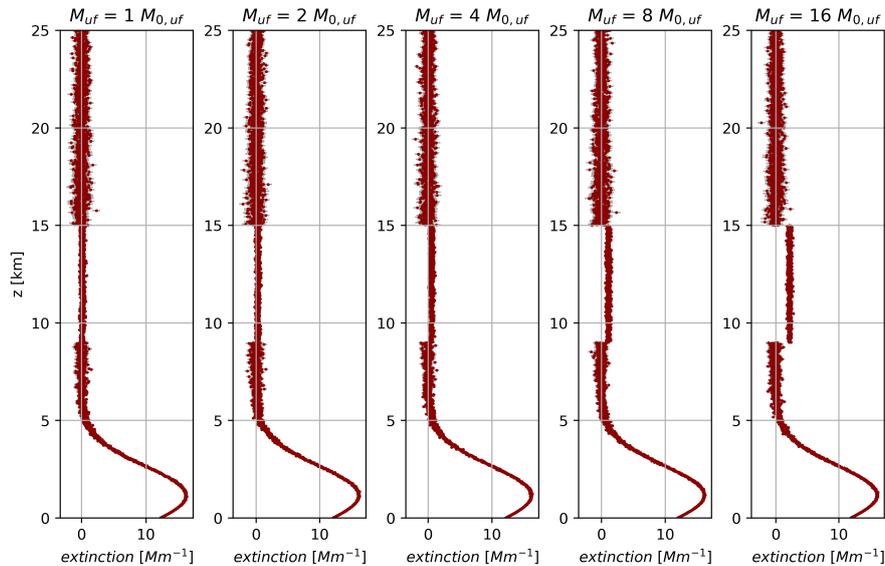


Figura 4.12: Igual a figura 4.11, mas considerando os aerossóis da moda de acumulação próximos da superfície.

4.4.2 Mapas de detecção dos aerossóis

Para determinar quantitativamente a detecção das partículas na UT, definimos 3 métodos estatísticos. Esses métodos estão explicados em maiores detalhes na seção 3.6.2. O primeiro deles verifica se $\alpha_{aer}/\sigma_{\alpha} > 3$ é satisfeito por pelo menos um bin (7,5 m) dentro da UT (entre 9 e 15 km). Para esse método, a figura 4.13 mostra os mapas de detecção sem (painel superior) e com as partículas da moda de acumulação (painel inferior), para todas as 25 situações de massa e eficiência do lidar simuladas. Lembrando que as cores dos mapas mostram a frequência de detecção dos aerossóis calculadas a partir dos 100 experimentos de Monte Carlo.

Podemos observar na figura 4.13 que nos dois casos existem várias situações de massa dos aerossóis ultrafinos e eficiência do lidar em que as partículas ultrafinas foram detectadas em 100% dos experimentos. Porém, estamos interessados nas situações com massa próxima do valor mediano medido pela HALO. De acordo com a figura 4.13, a detecção das partículas na UT em 100% dos experimentos começa a ocorrer para uma eficiência 10 000 vezes maior que a do lidar LFA IF-USP e massa dos aerossóis ultrafinos igual ao valor mediano da HALO ($M_{uf} = 1$). O mesmo acontece quando adicionamos as partículas da moda de acumulação na simulação do sinal do lidar, como mostra o painel inferior da figura 4.13. Como discutido anteriormente, isso era esperado, visto que a atenuação do sinal por essas partículas é muito pequena. Contudo, esse teste pode ser considerado fraco. Levando em consideração que na UT temos 800 bins, é muito provável que dentre eles, pelo menos um fique a mais de 3 desvios padrões de zero.

O próximo mapa de detecção é para o método estatístico que verifica se $\alpha_{aer}/\sigma_{\alpha} > 3$

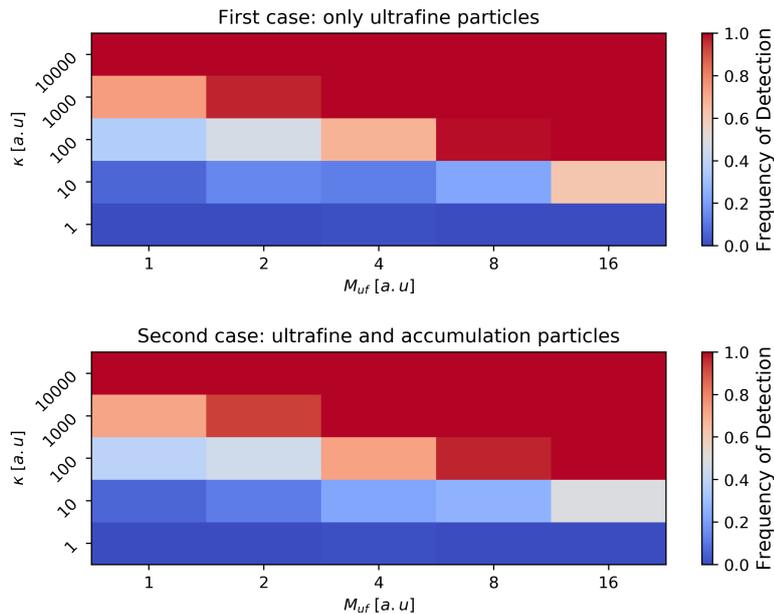


Figura 4.13: Mapa de frequência relativa de detecção dos aerossóis ultrafinos na UT. O painel superior mostra o mapa para os sinais simulados apenas com as partículas da moda de Aitken na UT, enquanto que o painel inferior inclui as partículas da moda de acumulação da PBL. Esse mapa foi feito para o teste estatístico que verifica se a condição $\alpha_{aer} / \sigma_{\alpha} > 3$ é satisfeita para pelo menos 1 bin dentro da UT.

em pelo menos 500 metros consecutivos na UT (figura 4.14). Esse é um teste bem mais rigoroso que o primeiro, onde a detecção em 100% dos experimentos só acontecem para um sistema lidar 10 000 vezes mais eficiente, e uma massa na UT a partir de 8 vezes o valor mediano. Para condições inferiores de massa e eficiência, a porcentagem de detecção é praticamente nula. No primeiro caso, só com partículas ultrafinas na UT (painel superior), existe uma porcentagem não nula, pouco maior que zero para $\kappa = 1000$ e $M_{uf} = 16$. Porém, para o segundo caso (painel inferior), com partículas da moda de acumulação na PBL, essa porcentagem é exatamente nula abaixo das condições identificadas com porcentagem 100%. Quando discutimos os perfis de extinção (figuras 4.11 e 4.12), foi possível identificar visualmente o sinal das partículas ultrafinas na UT para $\kappa = 10\,000$ e $M_{uf} = 4$, o que não condiz com o mapa de detecção desse segundo teste, que diz que não houve detecção alguma para essa situação. Observando novamente as figuras dos perfis, para $M_{uf} = 4$, vemos que há diversos pontos cuja barra de erro cruza o eixo y vertical, e por isso o segundo teste diz que a camada não foi detectada. Dessa forma, concluímos que esse teste estatístico é rigoroso demais.

O terceiro teste foi baseado no AOD calculado na UT. Ele considera que a camada de aerossóis foi detectada se $AOD / \sigma_{AOD} > 3$. A figura 4.15 mostra o mapa de detecção para este caso. Assim como no primeiro teste, a detecção em 100% dos experimentos começa a ocorrer para uma massa $M_{uf} = 1$ e para uma eficiência 10 000 vezes maior que a do

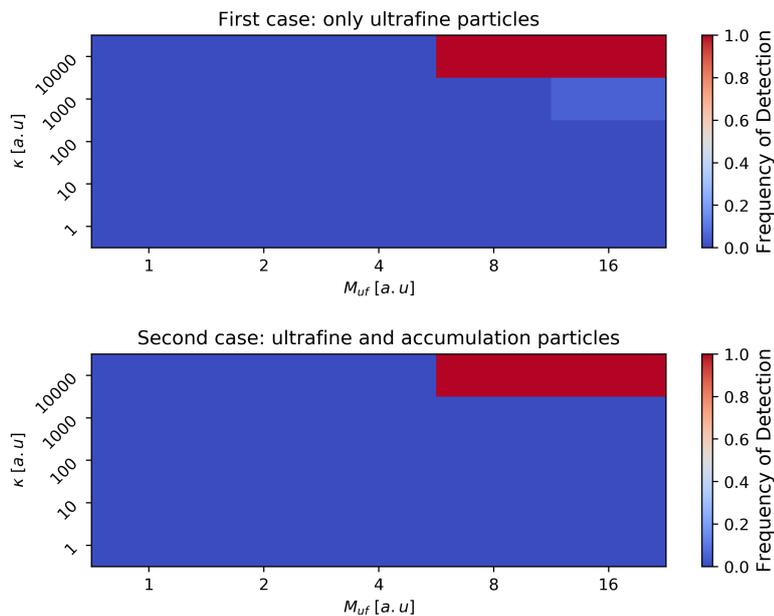


Figura 4.14: Igual ao mapa da figura 4.13. Porém, para o teste estatístico que verifica se $\alpha_{aer} / \sigma_{\alpha} > 3$ é satisfeito por pelo menos 500 metros consecutivos dentro da UT.

lidar LFA IF-USP. Isso acontece tanto no caso só com aerossóis ultrafinos na UT (painel superior), quanto no caso com os aerossóis da moda de acumulação próximos da superfície (painel inferior). Os dois mapas de detecção são praticamente idênticos, indicando que a diferença na razão S/N na UT não causa uma diferença significativa na detecção dos aerossóis ultrafinos. Esperamos que exista uma diferença, mas não conseguimos perceber porque temos apenas 5 valores de massa e 5 de eficiência do lidar. Assim como nos casos anteriores, isso só é verdade em condições limpas, ou seja, com pouco aerossol dentro da PBL. Durante a estação seca na Amazônia, a extinção aumenta muito com a presença de aerossóis provenientes da queima de biomassa (AOD ~ 1 a 5 segundo [Artaxo et al. \(2013\)](#)), atenuando consideravelmente o sinal do lidar na UT (fator de 0,36 a 0,007). Consequentemente, haveria uma diminuição considerável da razão S/N (fator de 0,6 a 0,08), dificultando a detecção dos aerossóis ultrafinos. Nessa situação, esperamos uma diferença significativa entre os mapas de detecção com e sem aerossóis de queima de biomassa.

Após avaliar os três testes estatísticos, concluímos que a detecção dos aerossóis na UT pode ser feita com maior confiabilidade pelo último. Esse teste não aceita perfis de extinção com muita flutuação estatística, que poderiam passar no primeiro teste, e nem recusa perfis que claramente tem um sinal de aerossol na UT, como no segundo teste. De acordo com esse teste, é possível detectar a concentração média de aerossóis ultrafinos na UT medida pela HALO com um instrumento com eficiência 10 000 vezes maior que o lidar LFA IF-USP, equivalente a uma razão S/N 100 vezes maior.

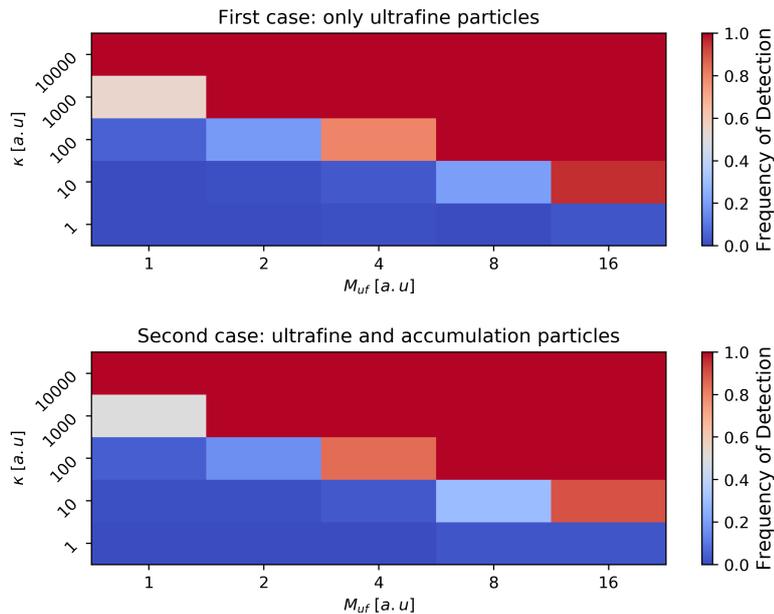


Figura 4.15: Igual ao mapa da figura 4.13. Porém, para o teste estatístico que verifica se $AOD/\sigma_{AOD} > 3$, onde o AOD foi calculado dentro da camada na UT (entre 9 e 15 km).

Pelas análises da seção 4.1, sabemos que podemos aumentar a razão S/N sem alterar o sistema lidar, apenas tomando um sinal médio ou acumulando bins. Tanto a média temporal, quanto o acúmulo de bins resultam numa melhora de $\sqrt{\delta}$ na razão S/N, onde δ pode ser o número de perfis da média, ou o número de bins acumulados. Dessa forma, apenas utilizando médias temporais de 1 h (120 perfis de 30 s) e um acúmulo de 40 bins (300 metros de resolução), já temos uma razão S/N 69 vezes maior (equivalente a $\sqrt{4800}$). Para chegar no aumento desejado, bastaria remover o filtro de densidade neutra do canal elástico (50% de transmissão) ou trocar o laser por outro com o dobro da potência, ou o dobro da taxa de repetição. Como estes fatores são multiplicativos da equação do lidar, irão causar um aumento de $\sqrt{2}$ na razão S/N, totalizando um aumento de 98 ($\sqrt{9600}$). Entretanto, estas modificações também aumentariam o sinal detectado dentro da PBL, que poderia se tornar maior que o máximo recomendado para a fotomultiplicadora.

Para entender como estas adaptações poderiam afetar o sistema de detecção, precisamos considerar o funcionamento das fotomultiplicadoras. A PMT converte o sinal luminoso em sinal elétrico que pode ser processado de duas maneiras. No modo AN, fazemos a leitura da diferença de potencial que se forma pela sobreposição dos pulsos elétricos, gerados pela chegada quase simultânea de vários fótons. Esta tensão analógica é convertida digitalmente de acordo com o número de bits da ADC, tipicamente 12 ou 16 bits, e com a escala do canal AN, que pode ser 500 mV, 100 mV ou 20 mV. Tipicamente só confiamos em metade dessa escala, pois acima disso a PMT funciona de maneira não linear. A tensão mínima é 5 vezes a resolução, sendo esta definida como a razão entre a escala e o número de bins da

ADC. No nosso caso, a ADC tem 12 bits e o número de bins é $2^{12} = 4096$. Portanto, na escala de 500 mV, a resolução do modo AN é $500 \text{ mV}/4096 \cong 0,12$, ou seja, a diferença entre duas medidas é um número inteiro desse valor. A tensão mínima é então 0,61 mV, mas tipicamente o canal AN possui um ruído eletrônico da ordem de 1-2 mV. Assim, o intervalo dinâmico do canal AN é da ordem de $250/1,5$, ou 166.

Por outro lado, o modo PC conta os fótons individualmente e é sensível a baixas intensidades de luz. A contagem mínima, não nula, do canal PC é de 0,067 MHz nos perfis de 30 s¹. Além disso, confiamos nas medidas tipicamente até 20 MHz. Segundo [Barbosa et al. \(2014\)](#), acima de 20 MHz o comportamento da PMT é não linear devido a chegada de muitos fótons simultaneamente e que não conseguem ser contados. Portanto, o intervalo dinâmico do canal PC para os perfis de 30 s é tipicamente da ordem de $20/0,067$, ou 300.

Para aumentar o intervalo dinâmico do sistema de detecção, ou seja, a razão entre o mínimo e máximo de luz detectada, normalmente se “cola” o sinal AN com o PC, num processo chamado *gluing*, do inglês ([Whiteman et al., 2006](#); [D’Amico et al., 2016](#)). Ou seja, combinam-se as medidas de baixa luminosidade do canal PC, com aquelas de alta luminosidade do canal AN. O intervalo dinâmico do canal AN+PC é tipicamente da ordem de 400 nos perfis de 30 s, o que ainda é muito pouco para a maioria das aplicações. Para aumentar ainda mais o intervalo dinâmico, é necessário aumentar a média temporal, o que diminui a contagem mínima do canal PC. Por exemplo, perfis de 5 min tem um intervalo dinâmico de 4000, e de 50 min, 40 000.

Para o caso com massa de aerossóis ultrafinos igual ao perfil mediano detectado pela aeronave HALO, a razão entre o sinal acima da UT e dentro da PBL ($P_{0,75km}/P_{20km}$) é 25 729, ou seja, o sistema lidar precisaria ter um o intervalo dinâmico entre quatro e cinco ordens de magnitude. Portanto, ao refletir sobre as alterações propostas acima, entendemos que definir a melhor estratégia de conseguir um aumento de 100 na razão S/N e um range dinâmico de 25 000 ficaria para uma continuação deste trabalho, em uma tese de doutorado.

Outra possibilidade é aumentar o tempo da tomada de dados para 1 h e 15 min (150 perfis de 30 s) e o acumular 67 bins verticais (495 metros). Dessa forma, sem nenhuma modificação no equipamento, alcançamos um aumento de 100 na razão S/N. Porém, aumentar o tempo de medidas pode ser uma estratégia ruim, visto que é preciso evitar a presença de nuvens, que “matam” o sinal antes de chegar na UT. Para isso, seria necessário estudar dados de nuvens na Amazônia e determinar períodos de baixa ocorrência, para ter uma ideia de quando é possível realizar uma tomada de dados mais extensa sem a presença de nuvens.

Esses resultados e discussões mostram que é sim possível detectar as partículas ultrafinas na UT, em condições limpas e sem nuvens. Não precisamos necessariamente alterar o lidar LFA IF-USP, mas seria necessário um estudo mais aprofundado sobre a frequência de

¹O limite mínimo do canal PC é dado pela frequência da aquisição de dados (20 Mhz) dividido pelo número de tiros do laser (300 em 30 s).

ocorrência de nuvens para avaliar o uso de grandes médias temporais. Para implementar melhorias no sistema, como troca do laser ou filtros, também seria necessário um estudo mais aprofundado, incluindo uma simulação completa de todos os componentes ópticos do lidar.

4.5 Efeitos de erros sistemáticos no lidar ratio

Nas simulações discutidas na seção acima, permitimos que o lidar ratio variasse em torno de um valor médio, de acordo com as observações da AERONET e o cálculo do código Mie (com parâmetros da tabela 3.1). Na inversão de cada um dos perfis, utilizamos o valor médio do lidar ratio, que portanto pode ser menor ou maior que o lidar ratio verdadeiro (i.e. utilizado na simulação) de cada um dos perfis. Isso foi feito para simular a situação real de análise de dados onde não conhecemos o lidar ratio exato das partículas. No entanto, nossa análise assumiu que conhecemos o valor médio do lidar ratio. Nessa seção, analisamos o efeito de se subestimar ou superestimar o valor médio do lidar ratio na detecção dos aerossóis ultrafinos na UT. Apresentaremos os resultados apenas para o caso sem aerossóis da moda de acumulação, pois vimos que seu efeito é pequeno, e apenas para o terceiro teste estatístico, que consideramos mais adequado. As figuras correspondentes ao caso com aerossóis da moda de acumulação e para os demais testes estatísticos estão no apêndice A.

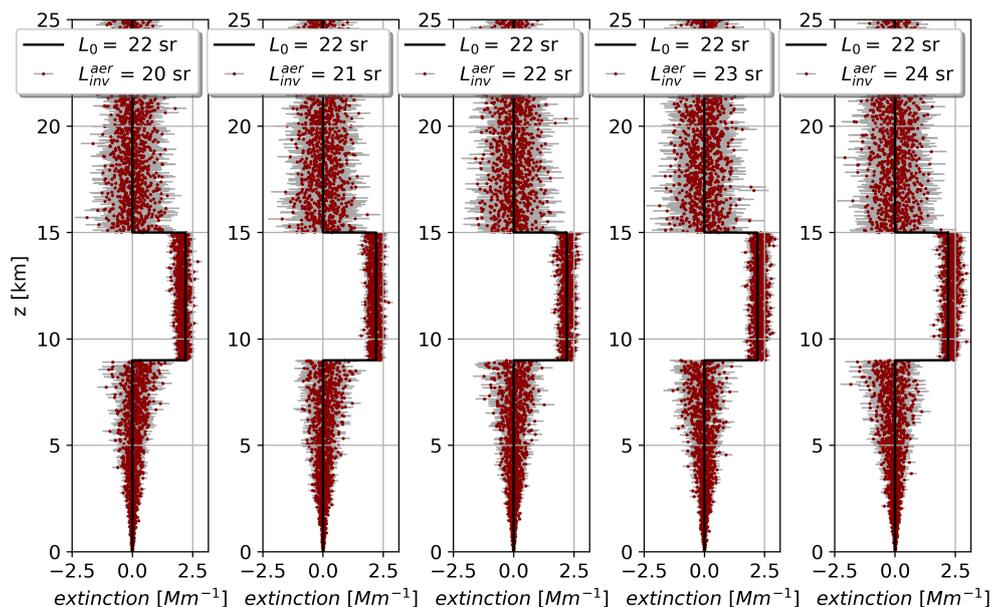


Figura 4.16: Perfis de extinção recuperados na inversão para um sinal com $\kappa = 10000$ e $M_{uf} = 16$. Cada painel mostra o valor do lidar ratio utilizado na inversão do sinal, que vai desde valores subestimados a superestimados. Note que o painel central usa o valor verdadeiro do lidar ratio na inversão.

A figura 4.16 mostra exemplos de perfis de extinção para o caso com apenas partículas da moda de Aitken na UT. A legenda de cada painel da figura mostra o lidar ratio usado na inversão do sinal (L_{inv}^{aer}), onde os painéis à esquerda subestimam seu valor, o central usa seu valor médio (22 sr), e os da direita os superestimam. Como o objetivo é analisar apenas o efeito do lidar ratio, consideramos apenas a situação com κ fixo em 10 000 e M_{uf} fixo em 16. No painel à esquerda, os valores de extinção na UT estão quase todos abaixo de $2,5 Mm^{-1}$, e conforme L_{inv}^{aer} aumenta, temos mais pontos acima de $2,5 Mm^{-1}$. Portanto, subestimar o lidar ratio faz a extinção ficar menor em relação ao seu valor verdadeiro, enquanto que superestimá-lo faz a extinção ficar maior. Embora isso seja difícil de visualizar graficamente, podemos perceber essa diferença pelo AOD da camada de aerossóis na UT (AOD_{UT}), como mostrado na tabela 4.1. Utilizar um L_{inv}^{aer} subestimado diminui a extinção e o AOD na UT em até 6%, enquanto que um L_{inv}^{aer} superestimado aumenta a extinção e o AOD em até 5%.

Tabela 4.1: AODs recuperados (acompanhado da sua incerteza) e seu erro para cada perfil de extinção da figura 4.16, de acordo com o lidar ratio usado na inversão do sinal do lidar. Onde L_{inv}^{uf} e L_{inv}^{acc} são os lidar ratios das partículas ultrafinas e da moda de acumulação respectivamente. Como comentado no texto da seção anterior (seção 4.4), também usamos os lidar ratios da moda de acumulação na inversão do sinal simulado só com aerossóis ultrafinos na UT, por essa razão estamos indicando os dois valores de lidar ratio na inversão.

$L_{inv}^{uf}, L_{inv}^{acc}$	20, 65 sr	21, 66 sr	22, 68 sr	23, 69 sr	24, 71 sr
AOD_{UT}	0,01240 (8)	0,01290 (8)	0,01320 (9)	0,0136 (1)	0,0138 (1)
Erro [%]	- 6	- 2	- 0,04	3	5

A priori, a análise acima sugere que lidar ratios superestimados poderiam facilitar a detecção das partículas na UT, uma vez que superestimam a extinção e o AOD. Porém, os testes avaliam a significância estatística dos valores não nulos de extinção e AOD, ou seja, consideram as incertezas dessas grandezas. Como observado na discussão da seção 4.4, o L_{aer} tem uma influência forte na propagação de incertezas do α_{aer} e consequentemente do AOD. Assim, precisamos avaliar se estes efeitos se compensam, ou se um erro sistemático no L_{aer} causa impacto na detecção. Em função disso, calculamos novamente o mapa de detecção 3 utilizando os mesmos lidar ratios da figura 4.16, ou seja, subestimando e superestimando seu valor. Podemos ver pela figura 4.17, que a diferença entre os mapas (para cada lidar ratio), apesar de existir, é bastante sutil. O gráfico no canto inferior direito dessa figura reforça essa ideia. Ele representa um corte nos mapas na posição de massa igual à mediana medida pela aeronave ($M_{uf} = 1$). Nesse caso, para os lidar ratios utilizados, o efeito aleatório é predominante e não parece haver uma diferença sistemática.

Mesmo aumentando a resolução desse gráfico, na figura 4.18, o resultado foi o mesmo. Essa figura também mostra as barras de erro da frequência relativa, obtidas a partir da variância de uma função de probabilidade binomial, onde a estimativa da probabilidade de

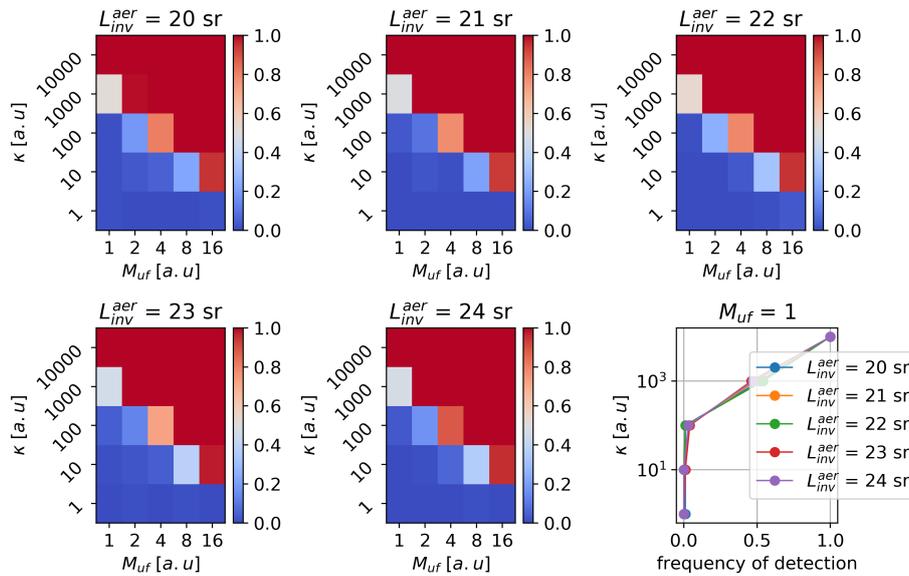


Figura 4.17: Mapas de frequência relativa de detecção correspondentes aos lidar ratios de cada painel da figura 4.16. Esses mapas foram feitos para o teste estatístico que verifica se a condição $AOD/\sigma_{AOD} > 3$ é satisfeita, com AOD calculado dentro da camada na UT (entre 9 e 15 km).

detecção é a própria frequência. Também é possível perceber que a detecção em 100% dos experimentos, na verdade, ocorre para uma eficiência do lidar 6000 vezes maior. Enfim, nenhum dos lidar ratios testados na inversão se mostrou significativamente melhor para detectar as partículas na UT neste teste.

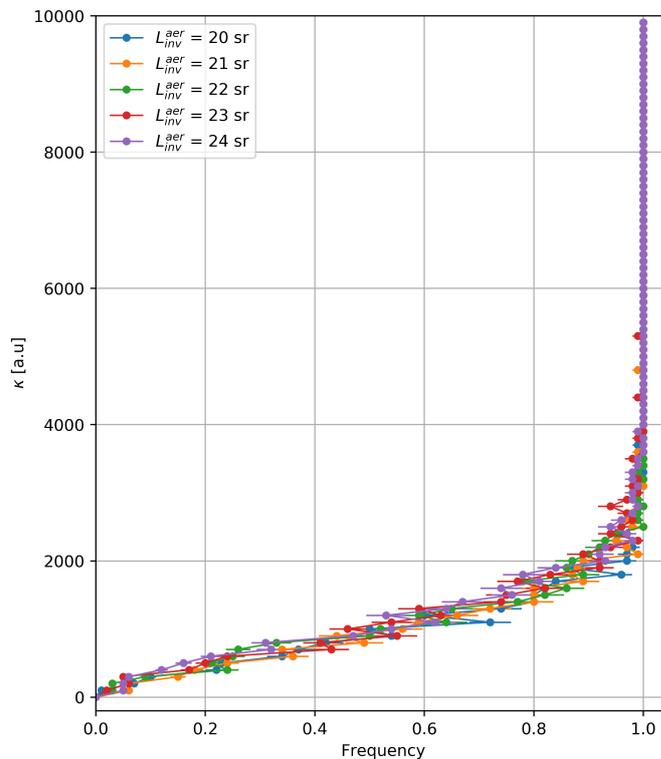


Figura 4.18: Gráfico de frequência de detecção (ou porcentagem de detecção) do terceiro teste estatístico em função da eficiência do lidar para uma massa $M_{uf} = 1$.

4.6 Discussões

Os resultados discutidos acima mostram de forma clara a sensibilidade de detecção das partículas na UT, para um sistema lidar como o do LFA IF-USP, que realiza medidas a partir do solo. A nossa metodologia, baseada em simulações e inversões do sinal lidar, foi inspirada em alguns artigos que nos ajudaram, particularmente, na elaboração das análises do AOD e dos testes de hipóteses.

Gouveia (2018) fez uma análise parecida com a nossa, porém para detectar nuvens cirrus na Amazônia. Ele utilizou tanto o método da transmitância (Chen et al., 2002) como o de Klett-Fernald para calcular as propriedades ópticas das nuvens. Este trabalho mostrou que, em média, o método de Klett usando o lidar ratio verdadeiro é pouco sensível à razão S/N, possuindo uma exatidão muito boa. Porém, como nas nossas análises, ele observou que subestimar ou superestimar o lidar ratio na inversão causa um viés na profundidade óptica das nuvens (COD, do inglês *Cloud Optical Depth*). Em específico, um L_{inv}^{aer} menor ou maior que o verdadeiro causa um erro negativo ou positivo no COD (ou AOD no nosso caso) respectivamente. Além disso, o autor reportou que quanto menor a

razão S/N, maior o erro relativo no COD, similar ao que observamos nas nossas análises. Vimos que para valores de eficiência do instrumento menores, as incertezas na extinção, e consequentemente no AOD, são maiores. Nossos mapas de detecção mostram claramente essa relação, que se origina na dificuldade de detectar os aerossóis na UT com baixa razão S/N.

Contudo, a análise do autor focou no algoritmo de detecção de nuvens, que depende fundamentalmente da razão S/N abaixo dela, e do pico de retroespalhamento β_{cloud} . Para estudar a sensibilidade de detecção do algoritmo, Gouveia fez 40 experimentos de Monte Carlo e calculou a frequência de detecção em função do COD para 5 valores de retroespalhamento e 8 de razão S/N abaixo da nuvem. Fizemos praticamente a mesma coisa, porém calculamos essa frequência (em 100 experimentos) em termos da massa dos aerossóis na UT (que poderia ser traduzida em termos de retroespalhamento, extinção ou AOD) e da eficiência do lidar (que poderia ser traduzida em termos da razão S/N). No caso de Gouveia (2018), 100% das nuvens simuladas em 16 km com $\beta_{cloud} > 1 \text{ Mm}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ e razão S/N > 1 foram detectadas a partir de um COD > 0,005. Analogamente, observamos que as partículas na UT são detectadas em 100% dos experimentos para uma razão S/N \cong 400 em 10 km, com um AOD de 0,0008.

Outro trabalho que inspirou nossa análise de sensibilidade de detecção dos aerossóis foi o de Torres et al. (2012), que fez simulações de medidas de satélite no UV-próximo (388 nm) para caracterizar a forçante radiativa de aerossóis acima das nuvens. O estudo foi feito através da reflectância no topo da atmosfera (TOA, do inglês *Top of Atmosphere*), que depende do AOD dos aerossóis acima das nuvens e do COD delas. Foi observado que essas propriedades ópticas dependem do expoente de absorção de Ångström (AAE, do inglês *Angstrom Absorption Exponent*), albedo simples (SSA, do inglês *Single Scattering Albedo*) e da separação aerosol-nuvem. Logo, a análise de erros do AOD e COD foi feita em termos da subestimação e superestimação dessas propriedades. A partir disso, e do trabalho do Gouveia (2018), fomos inspirados a calcular o erro no AOD a partir de erros sistemáticos no lidar ratio. Contudo, diferente dos dois trabalhos, que calcularam o erro relativo em relação ao valor médio de COD (Gouveia, 2018) e em relação ao valor verdadeiro (Torres et al., 2012) simulado, discutimos o erro de uma medida simulada (entre 100) com eficiência do instrumento muito alta. Em outras palavras, não foi necessário calcular um AOD médio para mostrar o efeito do erro sistemático no lidar ratio pois utilizamos uma simulação com razão S/N elevada.

Thorsen et al. (2017) também explorou o erro no AOD obtido por medidas de um lidar acoplado ao satélite CALIPSO (Winker et al., 2009, 2010, CALIOP). Ele observou que o CALIOP não consegue detectar todos os aerossóis com influência radiativa significativa, subestimando o AOD médio global. Em específico, casos com perfis denominados de transparentes (quando o laser atravessa totalmente as camadas de nuvens e aerossóis) e sem nuvens, a subestimação durante o dia foi de 54% e 47% respectivamente. À noite, o bias

diminui e a subestimação cai para 38% e 22% respectivamente. Os autores então utilizaram medidas de um HSLR (do inglês, *High Spectral Resolution Lidar*) (Hair et al., 2008) a bordo de avião e também de Raman lidars do departamento de energia ARM (do inglês *Atmospheric Radiation Measurement program*) (Goldsmith et al., 1998; Ferrare et al., 2006) para estimar a sensibilidade de detecção necessária para corrigir essa subestimação. Obteve-se que seria necessário um lidar com sensibilidade capaz de detectar um coeficiente de retroespalhamento de $1-2 \text{ km}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ em 532 nm para reduzir o bias algo em torno de 1%. Contudo, apesar de importante, nada se falou a respeito das melhorias na razão S/N ou na eficiência que seriam necessárias para conseguir isso com o CALIOP. Também não deixaram claro qual é, de fato, o menor valor de coeficiente de retroespalhamento que pode ser medido com este instrumento.

Não temos conhecimento de trabalhos parecidos com o nosso na literatura, ou seja, com análises de detecção de aerossóis em termos da sua massa, eficiência e razão sinal-ruído do instrumento. A metodologia que desenvolvemos, inspirada nos trabalhos discutidos acima, nos permitiu entender as dificuldades para detectar as partículas ultrafinas na UT. Mostramos que a razão S/N necessária para a detecção desta camada de aerossóis pode ser alcançada, mesmo em um sistema lidar otimizado para a baixa troposfera. Futuros estudos observacionais poderão explorar essa metodologia, que poderia ser aplicada para a detecção de camadas de aerossóis de qualquer natureza.

Capítulo 5

Conclusões e Perspectivas Futuras

A floresta Amazônica é um *hotspot* para os balanços globais de carbono, energia, e água, e por isso tem havido um grande esforço científico nos últimos 30 anos para compreender o ciclo de vida das nuvens e dos aerossóis na região. Recentemente, foi descoberto que as partículas orgânicas na UT, formadas por nucleação de VOC's emitidos pela floresta, servem como CCN na camada limite planetária. Foi neste contexto que se inseriu este trabalho.

Nós utilizamos simulações numéricas para estimar em que condições um sistema lidar de solo poderia detectar essas partículas na UT. Isso foi feito analisando a probabilidade de detecção destas partículas a partir da inversão do sinal lidar com o método Klett-Fernald, ou seja, emulando realisticamente o processo de análise das medidas experimentais. As simulações foram repetidas para diferentes situações, onde variamos a eficiência do sistema lidar e a concentração em massa dos aerossóis na UT. Consideramos dois casos: apenas com partículas da moda de Aitken na UT ($AOD \sim 0,0008 - 0,013$), ou incluindo também as partículas da moda de acumulação na PBL ($AOD = 0,04$). Como critério de detecção da camada de aerossóis na UT, comparamos três diferentes testes estatísticos. Por fim, testamos o efeito de erros sistemáticos no lidar ratio, usado no algoritmo de inversão, na estimativa da probabilidade de detecção.

Para desenvolver as simulações, tivemos que analisar a distribuição estatística das medidas do lidar LFA IF-USP, e confirmamos que de fato seguem uma distribuição de Poisson. Com isso, pudemos mostrar, a partir dos dados, que a razão sinal-ruído (S/N) cresce com raiz quadrada de δ , sendo δ o número total de perfis utilizados na média temporal ou o número de bins acumulados verticalmente. Também questionamos a equação do ajuste molecular utilizado no algoritmo de inversão. Para casos onde não há ruído de fundo, como medidas noturnas com o canal PC que estamos simulando, mostramos que o ajuste deve ser feito sem o termo linear. A presença desse termo piora o ajuste, mesmo utilizando 5 km de referência molecular. Além disso, mostramos que esse ajuste deve ser feito sem considerar a incerteza do sinal em cada bin. Primeiro porque estas incertezas não tem uma distribuição gaussiana, e segundo porque a incerteza diminui com a altitude, puxando o ajuste para pontos mais altos na atmosfera, onde a razão S/N é menor. Isso contribui para aumentar o erro nos coeficientes ajustados, que são propagados para a extinção e o AOD.

Nossas análises sugerem que é possível detectar os aerossóis na UT com o sistema lidar do LFA IF-USP. Vimos que para a mesma quantidade de massa de aerossóis ultrafinos detectados pela HALO ($M_{uf} = 1$), seria necessário uma eficiência 10 000 vezes maior, em outras palavras, uma razão S/N 100 vezes maior. Em uma situação realista de tomada de dados, podemos atingir o aumento necessário na razão S/N apenas tomando uma média temporal de 1 h e 15 min e acumulando 67 bins na vertical (resolução vertical de 500 metros). Porém, seria necessário evitar a presença de nuvens nesse intervalo de tempo longo, o que pode ser complicado na Amazônia. Recomenda-se, portanto, que futuros estudos avaliem a cobertura de nuvens na região e determinem a frequência de “janelas” sem nuvens nos dados do lidar. Outra alternativa seria através de uma modificação no sistema, por exemplo, trocando o laser por um mais potente, os filtros por elementos com maior transmissão, o modelo da fotomultiplicadora por um com maior eficiência quântica de detecção, etc. Entretanto, estas modificações também aumentariam o sinal detectado dentro da PBL, que poderia se tornar maior que o máximo recomendado para a fotomultiplicadora. Para implementar este tipo de melhoria ou modificação no sistema lidar, seria necessário um estudo mais aprofundado, incluindo uma simulação completa de todos os componentes ópticos. Em particular, a razão entre o sinal em 750 m e 20 km é da ordem de 25 000, e este intervalo dinâmico precisa ser considerado na avaliação das possíveis modificações no sistema, ou na metodologia de análise.

Estes resultados são válidos tanto para as simulações considerando apenas aerossóis ultrafinos na UT, quanto para as simulações incluindo os aerossóis da moda de acumulação na PBL. A explicação é que a atenuação causada pelos aerossóis na PBL, com AOD de 0,04 em 355 nm, não é suficiente para gerar diferenças significativas na detecção das partículas. Em seguida, consideramos possíveis erros sistemáticos no lidar ratio e verificamos que não há diferenças significativas na detecção das partículas na UT. A explicação é que apesar do perfil de extinção e do AOD diminuírem e crescerem quando o lidar ratio utilizado na inversão é subestimado e superestimado respectivamente, suas incertezas também são afetadas da mesma maneira. Com os três testes estatísticos consideramos tanto a grandeza (α ou AOD) quanto sua incerteza (σ_α ou σ_{AOD}) para verificar se o valor é ou não compatível com zero, não observamos diferenças claras entre os mapas de detecção. Novamente, esse resultado foi confirmado nos dois casos de estudo (com e sem aerossóis da moda de acumulação).

Existem algumas análises que podem complementar o estudo apresentado aqui, ficando para uma possível continuação deste trabalho. Uma delas envolve repetir a análise para diferentes comprimentos de onda do lidar, em 532 e 1064 nm. O espalhamento molecular em 355 nm é forte devido a sua dependência espectral ($\sim \lambda^{-4}$), enquanto que o expoente de Ångström dos aerossóis é em torno de 1. Dessa forma, talvez o sinal em 532 nm seja o mais adequado para a detecção das partículas na UT, visto que ele não é atenuado tanto pelas moléculas, mantendo uma razão S/N maior. Há que se verificar, mas em

1064 nm a interação com as partículas ultrafinas, provavelmente, é pouco significativa. Outra análise é simular uma quantidade pequena de aerossóis, como 10% da mediana, e determinar o ganho necessário na razão S/N. Nesse caso, certamente mais alterações no sistema seriam necessárias, mas a detecção de qualquer camada de aerossóis na UT estaria garantida. Também vimos perfis de voos individuais em [Andreae et al. \(2018\)](#) mostrando altas concentrações de partículas em camadas bem finas na UT. Assim, seria interessante simular camadas de aerossóis com espessuras mais finas do que consideramos neste trabalho. Por fim, simular um aerossol na PBL com tamanho, concentrações e AOD característicos da estação de queimada, que poderiam afetar a razão S/N na UT. Essas são algumas das análises que podem ser feitas como perspectivas futuras, além de modificações mais elaboradas no sistema lidar que podem surgir a partir de novas descobertas.

Apêndice A

Análise complementar da detecção dos aerossóis ultrafinos

Por causa das conclusões acima, na análise dos erros sistemáticos no lidar ratio, decidimos não mostrar os mapas de detecção de todos os testes estatísticos. Também não mostramos os casos que consideramos aerossóis da moda de acumulação próximos da superfície, visto que eles não mudam significativamente a detecção das partículas na UT. Então, deixamos para mostrar essas análises complementares neste apêndice. Começamos mostrando os mapas para os dois primeiros testes estatísticos que faltaram nas análises acima, no caso com apenas partículas da moda de Aitken na UT. Depois mostramos a mesma análise para o caso com partículas da moda de acumulação.

A.1 Mapas de detecção com apenas partículas da moda de Aitken na UT

O primeiro teste ($\alpha_{aer}/\sigma_{\alpha} > 3$ em um bin) está sendo mostrado na figura A.1. Assim como para o terceiro teste, a diferença entre os mapas é bastante sutil, indicando que aqui, também não há diferença sistemática entre os lidar ratios usados. Podemos ver que as situações em que a frequência é 100 % são praticamente as mesmas nos cinco mapas. O painel inferior direito da figura A.1 também mostra que a diferença entre as curvas de frequência não são significativas e variam aleatoriamente. O gráfico no painel direito da figura A.3 mostra em detalhes, para $M_{uf} = 1$ e maior resolução na frequência, que as diferenças entre as curvas de cada lidar ratio não são significativas de fato. Contudo, o aumento na resolução da eficiência do lidar possibilitou observar que a detecção em 100 % dos casos ocorre antes de uma eficiência 10 000 vezes maior, em aproximadamente 6000 vezes já é suficiente (como no teste 3, discutido na seção 4.5). Como este primeiro teste não é sensível às diferenças no L_{inv}^{aer} , sendo o menos rigoroso dos três, os outros também devem seguir esse mesmo comportamento.

E de fato, o segundo teste ($\alpha_{aer}/\sigma_{\alpha} > 3$ em 500 metros consecutivos), na figura A.2, mostra que também não há diferença significativa entre os mapas para cada lidar ratio. Apesar do mapa para $\kappa = 10\,000$ e $M_{uf} = 16$ ter uma frequência maior, pode ser uma coincidência da flutuação estatística e não uma diferença sistemática significativa. Além

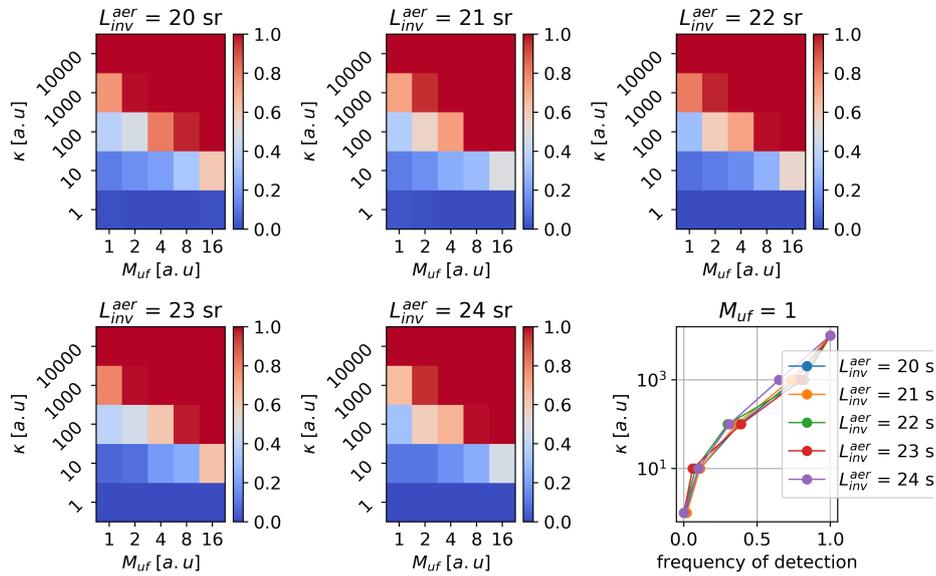


Figura A.1: Mapas de frequência relativa de detecção correspondentes aos lidar ratios de cada painel da figura 4.16. Esses mapas foram feitos para o teste estatístico que verifica se a condição $\alpha_{aer}/\sigma_{\alpha} > 3$ é satisfeita para pelo menos 1 bin dentro da UT.

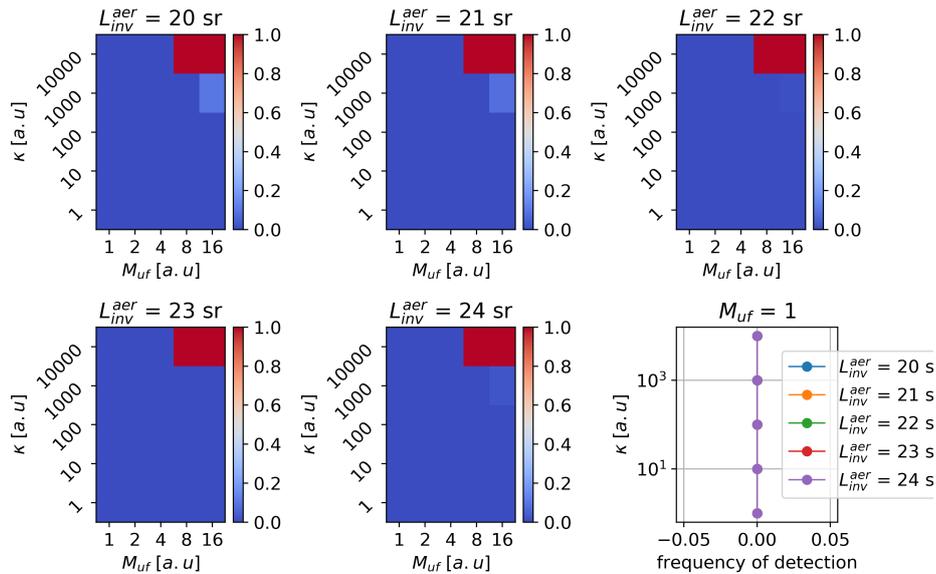


Figura A.2: Igual aos mapas da figura A.1, porém, para o teste estatístico que verifica se $\alpha_{aer}/\sigma_{\alpha} > 3$ é satisfeito por pelo menos 500 metros consecutivos dentro da UT.

disso, como este teste é o mais rigoroso, a detecção em 100 % dos casos só acontece a partir de uma eficiência 10 000 vezes maior e uma massa 8 vezes maior que a mediana medida pela aeronave. Também é possível observar que as situações onde a frequência é 100 % são as mesmas em todos os mapas. Além disso, o corte nos mapas para $M_{uf} = 1$, aumentando a resolução da eficiência do lidar (painel central da figura A.3), mostra que de fato houve 0% de detecção até mesmo para $\kappa = 10\,000$. Porém, a figura 4.11 mostra visualmente que é possível ver o sinal dos aerossóis na UT para $M_{uf} = 4$, ao contrário dos mapas, que acusam 0% de detecção. Logo, como discutido anteriormente, este teste é muito rigoroso e pouco sensível à massa dos aerossóis, deixando passar situações que seriam possíveis atingir a detecção.

Como resultado, o painel central da figura A.3 (que mostra a curva de frequência para os 3 testes, com $M_{uf} = 1$), mostra com clareza que não houve qualquer detecção das partículas ultrafinas na UT, para nenhum dos lidar ratios até $\kappa = 10\,000$.

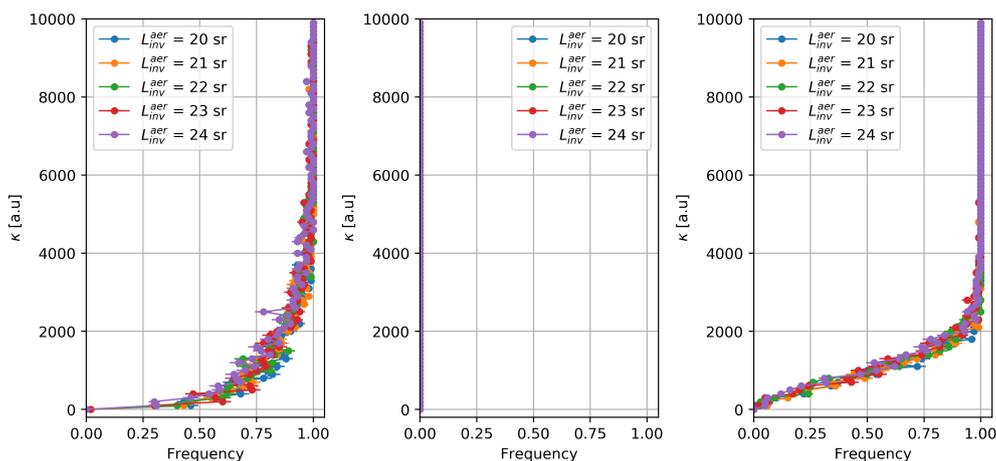


Figura A.3: Gráfico de frequência de detecção (ou porcentagem de detecção) em função da eficiência do lidar para uma massa $M_{uf} = 1$. Da esquerda para a direita, cada painel corresponde ao primeiro, segundo e terceiro teste estatístico respectivamente.

A.2 Mapas de detecção com aerossóis da moda de acumulação

Uma vez que estudamos o efeito dos erros sistemático do lidar ratio nos perfis recuperados de extinção e mapas de detecção, só com aerossóis ultrafinos na UT, o próximo passo foi simular os aerossóis da moda de acumulação dentro da PBL (abaixo de 2 km), e fazer a mesma análise. Isso representa uma situação mais realista, onde é muito comum observar a presença desses aerossóis, principalmente na estação seca na Amazônia, que tem a PBL influenciada pelos aerossóis de queima de biomassa (Artaxo et al., 2013).

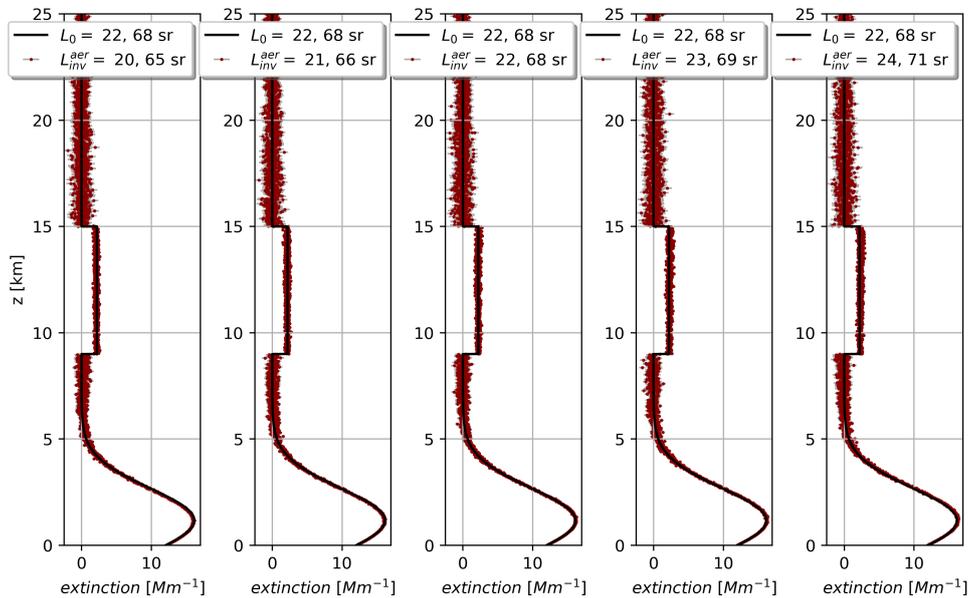


Figura A.4: Igual aos perfis de extinção da figura 4.16, porém incluindo os aerossóis da moda de acumulação na PBL. Lembrando que a eficiência do lidar está fixa em $\kappa = 10000$ e massa das partículas na UT em $M_{uf} = 16$. Nesse caso, a legenda dos painéis mostram o lidar ratio das partículas da moda de Aitken e de acumulação respectivamente, os verdadeiros (L_0) e usados na inversão do sinal (L_{inv}^{aer}).

Como mostrado na figura 3.7b, esses aerossóis foram simulados com um perfil de massa gaussiano, com máximo em 1,1 km. Portanto, é possível observar a mesma gaussiana nos perfis de extinção da figura A.4. Agora, a legenda de cada painel dessa figura mostra o valor do L_{inv}^{aer} da moda de Aitken e acumulação, usados na recuperação da extinção. O painel central continua mostrando o perfil obtido com o valor exato de lidar ratio simulado (22 e 68 sr), enquanto que à esquerda e à direita, seus valores são subestimados e superestimados respectivamente. Dessa vez é ainda mais difícil ver a variação na extinção na UT para os diferentes lidar ratios. Isso porque a extinção dos aerossóis da moda de acumulação em baixos níveis são maiores, aumentando a escala da figura. Porém, o efeito é o mesmo que

no caso só com aerossóis na UT. A tabela A.1 mostra os valores de AOD obtidos para cada perfil da figura A.4, onde podemos observar o valor crescendo com o L_{inv}^{aer} . A diferença é que nesse caso, a atenuação do sinal vai ser maior na UT, diminuindo a razão sinal-ruído (S/N). Consequentemente, como o sinal é mais ruidoso, a incerteza da extinção e do AOD recuperados na UT serão maiores, aumentando a dificuldade de detecção em comparação ao caso só com aerossóis ultrafinos na UT.

Tabela A.1: AODs recuperados em cada perfil de extinção da figura A.4, de acordo com o lidar ratio usado na inversão do sinal do lidar. Onde L_{inv}^{uf} e L_{inv}^{acc} são os lidar ratios das partículas ultrafinas e da moda de acumulação respectivamente.

$L_{inv}^{uf}, L_{inv}^{acc}$	20, 65 sr	21, 66 sr	22, 68 sr	23, 69 sr	24, 71 sr
AOD _{UT}	0,01261 (9)	0,0128 (1)	0,0131 (1)	0,0137 (1)	0,0138 (1)
Erro [%]	- 4	- 3	- 0,8	3	5

Contudo, como explicado na seção 4.4, a extinção dos aerossóis da moda de acumulação ainda assim é baixa (AOD de 0,04), fazendo a diferença entre a razão S/N na UT, com o caso sem esses aerossóis, ser pequena. Como essa diferença é pequena, a incerteza do AOD_{UT}, sem aerossóis da moda de acumulação na vertical pode ser até maior em alguns casos, devido a sua flutuação estatística. Além de tudo, como esperado, a tabela A.1 mostra que o AOD recuperado com lidar ratio exato de 22 e 68 sr é o mais próximo do verdadeiro (igual a 0,0132).

Depois, analisamos o mapa de detecção para cada lidar ratio em busca de diferenças sistemáticas. A figura A.5 mostra os mapas de detecção para o primeiro teste estatístico, análogo a figura A.1, porém, considerando os aerossóis dentro da PBL. Podemos ver que as diferenças entre os mapas também são muito sutis e provavelmente aleatórias. O gráfico do painel inferior direito reforça essa ideia, visto que as curvas para cada lidar ratio se cruzam várias vezes. A figura A.8 mostra o mesmo gráfico, porém, com maior resolução na eficiência do lidar e com as incertezas na probabilidade. Lembrando que essas incertezas foram propagadas a partir da incerteza de uma função de probabilidade binomial, aproximando a probabilidade de sucesso pela frequência de detecção. Através dessa figura podemos ver em detalhes que as curvas crescem aleatoriamente, se cruzando várias vezes e sem diferenças significativas em muitos casos. Isso mostra que de fato não há uma diferença sistemática na frequência entre os lidar ratios usados na inversão do sinal. Sendo assim, as pequenas variações na frequência dos mapas de detecção são devido a flutuações aleatórias da extinção na UT. Portanto, a propagação do erro sistemático no lidar ratio não está afetando consideravelmente a detecção das partículas na UT neste teste estatístico. Além de tudo, é possível observar na figura A.8 que a detecção em 100% dos experimentos já ocorre para uma eficiência 8000 vezes maior que a do lidar LFA IF-USP.

A figura A.6 mostra os mapas de detecção de cada lidar ratio para o segundo teste

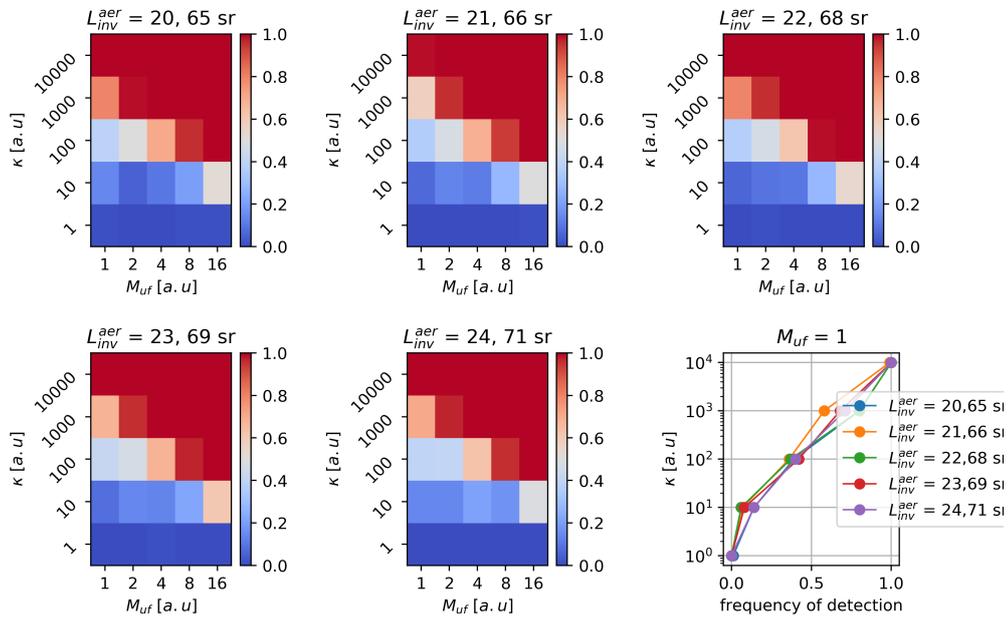


Figura A.5: Mapas de frequência relativa de detecção correspondentes aos lidar ratios de cada painel da figura A.4. Esses mapas foram feitos para o teste estatístico que verifica se a condição $\alpha_{aer} / \sigma_{\alpha} > 3$ é satisfeita para pelo menos 1 bin dentro da UT.

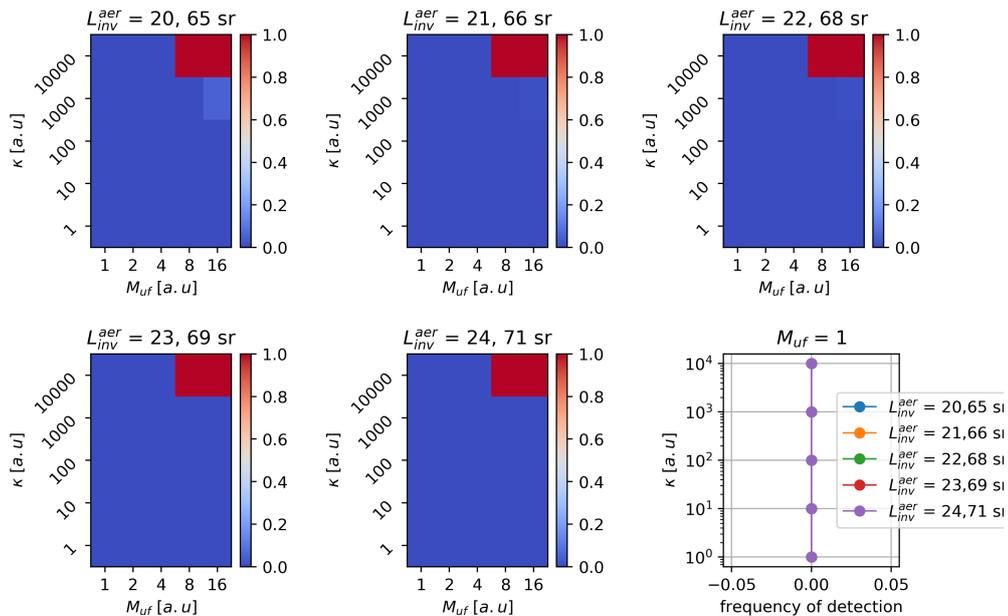


Figura A.6: Igual aos mapas da figura A.5, porém, para o teste estatístico que verifica se $\alpha_{aer} / \sigma_{\alpha} > 3$ é satisfeito por pelo menos 500 metros consecutivos dentro da UT.

estatístico. Assim como no caso anterior, com apenas partículas ultrafinas na UT, a detecção em 100% dos experimentos de Monte Carlo ocorre para uma eficiência 10 000 vezes maior que a do lida LFA IF-USP e massa dos aerossóis ultrafinos a partir de 8 vezes o valor mediano medido pela aeronave na UT. Abaixo desses valores, a probabilidade de detecção é praticamente zero para os cinco lida ratios escolhidos. Também não foi possível observar uma diferença sistemática entre os mapas, visto que todos são praticamente idênticos. O corte dos mapas para $M_{uf} = 1$, no canto inferior direito da figura A.6 e em maior resolução no painel central da figura A.8, também mostram que não há qualquer sinal de detecção das partículas ultrafinas, mesmo para uma eficiência 10 000 vezes maior. Enfim, esse teste estatístico é ainda menos sensível ao erro sistemático no lidar ratio, e a detecção só é alcançada com uma eficiência do lidar alta e uma concentração mássica elevada.

Por último, a figura A.7 mostra os mapas de detecção de cada lidar ratio para o terceiro teste estatístico. Assim como nos testes anteriores, não observamos diferenças sistemáticas entre os mapas. Portanto, a diferença entre eles pode ser atribuída a flutuações aleatórias do AOD e sua incerteza. No fim, o erro sistemático no lidar ratio não causou uma diferença sistemática significativa nesse teste estatístico. O gráfico no canto inferior direito da figura A.7, em maior resolução no painel direito da figura A.8, mostra que as curvas para cada lidar ratio crescem aleatoriamente, se cruzando diversas vezes até atingirem 100%, em $\kappa = 6000$. Isso mostra que, assim como no caso sem aerossóis da moda de acumulação, não foi possível observar uma diferença sistemática na detecção dos aerossóis na UT para os lidar ratios estudados.

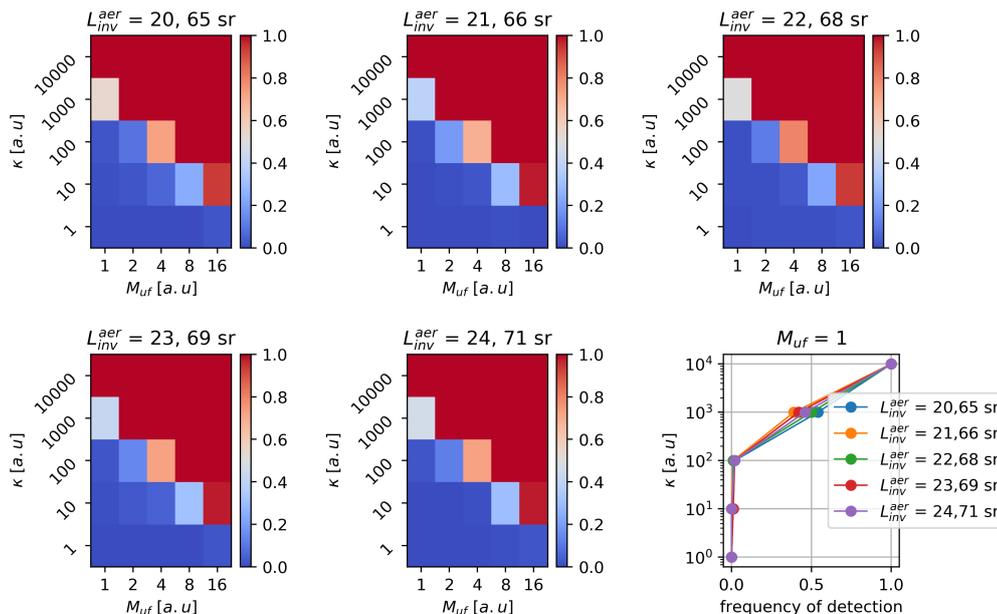


Figura A.7: Igual aos mapas da figura A.5, porém, para o teste estatístico que verifica se $AOD/\sigma_{AOD} > 3$, onde o AOD foi calculado dentro da camada na UT (entre 9 e 15 km).

Em geral, mesmo subestimando e superestimando o lidar ratio da moda de Aitken na UT e acumulação dentro da PBL, não observamos diferenças sistemáticas em nenhum dos três testes estatísticos. Porém, assim como comentado anteriormente, seria necessário testar erros sistemáticos maiores no lidar ratio para poder verificar se existe ou não um efeito significativo nos mapas de detecção. Depois disso seria necessário avaliar se com o erro sistemático, a detecção dos aerossóis na UT fica mais difícil. Pois o esperado é que a detecção funcione melhor quando usamos o lidar ratio mais próximo do verdadeiro no algoritmo de inversão. Contudo, para os lidar ratio estudados aqui, tanto no caso sem aerossóis da moda de acumulação, quanto no caso com esses aerossóis, não houve diferença significativa nos mapas de detecção em todos os testes. Assim, nossa análise mostrou que a razão S/N do sinal, que é a fonte de erros aleatórios na recuperação da extinção e do AOD, foi mais relevante para a detecção dos aerossóis na UT.

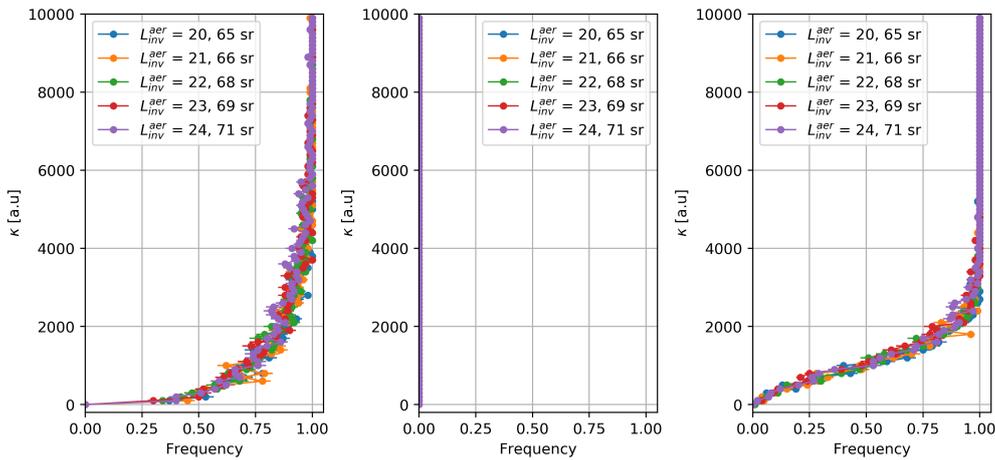


Figura A.8: Gráfico de frequência de detecção (ou porcentagem de detecção) em função da eficiência do lidar para uma massa $M_{uf} = 1$. Da esquerda para a direita, cada painel corresponde ao primeiro, segundo e terceiro teste estatístico respectivamente.

Apêndice B

Participação em eventos científicos e publicações

Participei de quatro eventos científicos internacionais, sendo duas oficinas e duas conferências, listados abaixo. A participação presencial não foi possível em respeito ao isolamento social no período de pandemia. As duas apresentações orais foram a pedido dos próprios organizadores.

1. *European Lidar Conference 2020*, ocorrido virtualmente entre os dias 18 e 20 de novembro de 2020. **Seção de pôster:** Detection Limits of a Ground-Based Lidar for New Particles Formed in the Upper Troposphere.
2. *ATTO workshop 2021*, ocorrido virtualmente entre 4 a 8 de outubro de 2021. **Seção de pôster:** Theoretical study of how a Lidar system could detect upper troposphere particles at the ATTO site.
3. *XI Workshop on Lidar Measurements in Latin America*, ocorrido virtualmente entre 20 e 22 de outubro de 2021. **Apresentação Oral:** Lidar Detection Sensitivity for Amazonian Upper Tropospheric Ultrafine Aerosols.
4. *European Lidar Conference 2021*, ocorrido virtualmente entre os dias 16 e 18 de novembro de 2021. **Apresentação Oral:** Sensitivity Analysis of a Ground-Based Lidar System for Detecting Ultrafine Particles in the Amazon Upper Troposphere.

Durante o período do mestrado, também publiquei um artigo científico, e estou finalizando a escrita de outros dois artigos, listados a seguir.

1. Silva, M., Barbosa, H., and Pauliquevis Júnior, T., 2020: Thermodynamic indexes during the GOAmazon2014/5 campaign and comparison with ERA-Interim reanalysis data. *Ciência e Natura*, 42, e19
2. Silva, M. T., J.-L. Rascado, H. M. J. Barbosa, 2022: Mie derived aerosols lidar ratios from in-situ measurements of size distribution and AERONET retrievals in the Amazon region. *Holos Environment* (in prep.)

3. Silva, M. T., J.-L. Rascado, H. M. J. Barbosa, 2022: Numerical study of the sensitivity of a ground-based tropospheric lidar Aitken-mode aerosol particles in the upper troposphere. *Remote Sensing* (in prep.)

Referências

- Anderson, G., S. Clough, F. Kneizys, et al., 1986: Aogl atmospheric constituent profiles (0.120km), 46.
- Andreae, M. O., A. Afchine, R. Albrecht, et al., 2018: Aerosol characteristics and particle production in the upper troposphere over the amazon basin. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **18**, 921–961, doi:10.5194/acp-18-921-2018.
- Antuña-Marrero, J. C., E. Landulfo, R. Estevan, et al., 2017: Lalinet: The first latin american–born regional atmospheric observational network. *Bulletin of the American Meteorological Society*, **98**, 1255 – 1275, doi:10.1175/BAMS-D-15-00228.1.
- Artaxo, P., L. V. Rizzo, J. F. Brito, et al., 2013: Atmospheric aerosols in amazonia and land use change: from natural biogenic to biomass burning conditions. *Faraday Discussions*, **165**, 203, doi:10.1039/c3fd00052d.
- Baars, H., A. Ansmann, D. Althausen, et al., 2011: Further evidence for significant smoke transport from africa to amazonia. *Geophysical Research Letters - GEOPHYS RES LETT*, **38**, doi:10.1029/2011GL049200.
- 2012: Aerosol profiling with lidar in the amazon basin during the wet and dry season. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, **117**, doi:https://doi.org/10.1029/2012JD018338.
- Barbosa, H. M. J., B. Barja, T. Pauliquevis, et al., 2014: A permanent raman lidar station in the amazon: description, characterization, and first results. *Atmospheric Measurement Techniques*, **7**, 1745–1762, doi:10.5194/amt-7-1745-2014.
- Betts, A. K., M. Köhler, and Y. Zhang, 2009: Comparison of river basin hydrometeorology in era-interim and era-40 reanalyses with observations. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, **114**, doi:https://doi.org/10.1029/2008JD010761.
- Bodhaine, B. A., N. B. Wood, E. G. Dutton, and J. Slusser, 1999: On rayleigh optical depth calculations. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, **16**, 1854–1861.
- Bohren, C. and E. Clothiaux, 2006: *Fundamentals of Atmospheric Radiation: An Introduction with 400 Problems*. Physics textbook, Wiley.
- Boucher, O., D. Randall, P. Artaxo, et al., 2013: *Clouds and Aerosols*, Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, book section 7. 571–658.

- Bucholtz, A., 1995: Rayleigh-scattering calculations for the terrestrial atmosphere. *Appl. Opt.*, **34**, 2765–2773, doi:10.1364/AO.34.002765.
- Chen, W.-N., C.-W. Chiang, and J.-B. Nee, 2002: Lidar ratio and depolarization ratio for cirrus clouds. *Appl. Opt.*, **41**, 6470–6476, doi:10.1364/AO.41.006470.
- Collow, A. B. M. and M. A. Miller, 2016: The seasonal cycle of the radiation budget and cloud radiative effect in the amazon rain forest of brazil. *Journal of Climate*, **29**, 7703 – 7722, doi:10.1175/JCLI-D-16-0089.1.
- D'Amico, G., A. Amodeo, I. Mattis, et al., 2016: Earlinet single calculus chain – technical – part 1: Pre-processing of raw lidar data. *Atmospheric Measurement Techniques*, **9**, 491–507, doi:10.5194/amt-9-491-2016.
- Fernald, F. G., 1984: Analysis of atmospheric lidar observations: some comments. *Appl. Opt.*, **23**, 652–653, doi:10.1364/AO.23.000652.
- Ferrare, R., D. Turner, M. Clayton, et al., 2006: Evaluation of daytime measurements of aerosols and water vapor made by an operational raman lidar over the southern great plains. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, **111**, doi:https://doi.org/10.1029/2005JD005836.
- Goldsmith, J. E. M., F. H. Blair, S. E. Bisson, and D. D. Turner, 1998: Turn-key raman lidar for profiling atmospheric water vapor, clouds, and aerosols. *Appl. Opt.*, **37**, 4979–4990, doi:10.1364/AO.37.004979.
- Gouveia, D. A., 2018: *Forçante radiativa, propriedades ópticas e físicas das nuvens cirrus na Amazônia*. Tese (doutorado em física), Instituto de Física, Universidade de São Paulo, doi:10.11606/T.43.2019.tde-08022019-141530.
- Hair, J. W., C. A. Hostetler, A. L. Cook, et al., 2008: Airborne high spectral resolution lidar for profiling aerosol optical properties. *Appl. Opt.*, **47**, 6734–6752, doi:10.1364/AO.47.006734.
- Holben, B., T. Eck, I. Slutsker, et al., 1998: Aeronet—a federated instrument network and data archive for aerosol characterization. *Remote Sensing of Environment*, **66**, 1–16, doi:https://doi.org/10.1016/S0034-4257(98)00031-5.
- Klett, J. D., 1985: Lidar inversion with variable backscatter/extinction ratios. *Appl. Opt.*, **24**, 1638–1643, doi:10.1364/AO.24.001638.
- Kovalev, V. and W. Eichinger, 2004: *Elastic Lidar: Theory, Practice, and Analysis Methods*. Wiley.

- Kulmala, M., A. Asmi, H. K. Lappalainen, et al., 2011: General overview: European integrated project on aerosol cloud climate and air quality interactions (eucaari); integrating aerosol research from nano to global scales. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **11**, 13061–13143, doi:10.5194/acp-11-13061-2011.
- Laurance, W. F., 1999: Gaia's lungs: Are rainforests inhaling earth's excess carbon dioxide?. *Natural History*, **108**, 96–96.
- Lincel, 2021: *Licel PM-HV Photomultiplier Module R9880U*.
- Liou, K., 2002: *An Introduction to Atmospheric Radiation*. International Geophysics, Elsevier Science.
- Liou, K.-N., 1986: Influence of cirrus clouds on weather and climate processes: A global perspective. *Monthly Weather Review*, **114**, 1167 – 1199, doi:10.1175/1520-0493(1986)114<1167:IOCCOW>2.0.CO;2.
- Liu, L., Y. Cheng, S. Wang, et al., 2020: Impact of biomass burning aerosols on radiation, clouds, and precipitation over the amazon: relative importance of aerosol–cloud and aerosol–radiation interactions. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **20**, 13283–13301, doi:10.5194/acp-20-13283-2020.
- Marengo, F., B. Johnson, J. M. Langridge, et al., 2016: On the vertical distribution of smoke in the Amazonian atmosphere during the dry season. *ATMOSPHERIC CHEMISTRY AND PHYSICS*, **16**, 2155–2174, doi:10.5194/acp-16-2155-2016.
- Marengo, J., 2005: Characteristics and spatio-temporal variability of the amazon river basin water budget. *Climate Dynamics*, **24**, 11–22, doi:10.1007/s00382-004-0461-6.
- 2006: On the hydrological cycle of the amazon basin: A historical review and current state-of-the-art. *Revista Brasileira de Meteorologia*, **21**.
- Martin, S. T., M. O. Andreae, D. Althausen, et al., 2010: An overview of the amazonian aerosol characterization experiment 2008 (amaze-08). *Atmospheric Chemistry and Physics*, **10**, 11415–11438, doi:10.5194/acp-10-11415-2010.
- Martin, S. T., P. Artaxo, L. A. T. Machado, et al., 2016: Introduction: Observations and modeling of the green ocean amazon (goamazon2014/5). *Atmospheric Chemistry and Physics*, **16**, 4785–4797, doi:10.5194/acp-16-4785-2016.
- Mayer, B. and A. Kylling, 2005: Technical note: The libradtran software package for radiative transfer calculations - description and examples of use. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **5**, 1855–1877, doi:10.5194/acp-5-1855-2005.

- Nobre, C. A., P. J. Sellers, and J. Shukla, 1991: Amazonian deforestation and regional climate change. *Journal of Climate*, **4**, 957 – 988, doi:10.1175/1520-0442(1991)004<0957:ADARCC>2.0.CO;2.
- Rocadenbosch, F., S. Frasier, D. Kumar, et al., 2012: Backscatter error bounds for the elastic lidar two-component inversion algorithm. *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, **50**, 4791–4803, doi:10.1109/TGRS.2012.2194501.
- Seinfeld, J. and S. Pandis, 2006: *Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change*. Wiley; 2nd ed., 1326 pp.
- Stein, A. F., R. R. Draxler, G. D. Rolph, et al., 2015: NOAA's hysplit atmospheric transport and dispersion modeling system. *Bulletin of the American Meteorological Society*, **96**, 2059 – 2077, doi:10.1175/BAMS-D-14-00110.1.
- Thorsen, T. J., R. A. Ferrare, C. A. Hostetler, et al., 2017: The impact of lidar detection sensitivity on assessing aerosol direct radiative effects. *Geophysical Research Letters*, **44**, 9059–9067, doi:10.1002/2017gl074521.
- Torres, O., H. Jethva, and P. K. Bhartia, 2012: Retrieval of aerosol optical depth above clouds from omi observations: Sensitivity analysis and case studies. *Journal of the Atmospheric Sciences*, **69**, 1037–1053, doi:10.1175/jas-d-11-0130.1.
- Wang, J., R. Krejci, S. Giangrande, et al., 2016: Amazon boundary layer aerosol concentration sustained by vertical transport during rainfall. *Nature*, **539**, 416–419, doi:10.1038/nature19819.
- Weitkamp, C., 2006: *Lidar: Range-Resolved Optical Remote Sensing of the Atmosphere*. Springer Series in Optical Sciences, Springer New York.
- Wendisch, M., U. Pöschl, M. O. Andreae, et al., 2016: Acridicon–chuva campaign: Studying tropical deep convective clouds and precipitation over amazonia using the new german research aircraft halo. *Bulletin of the American Meteorological Society*, **97**, 1885 – 1908, doi:10.1175/BAMS-D-14-00255.1.
- Whiteman, D. N., B. Demoz, K. Rush, et al., 2006: Raman lidar measurements during the international h2o project. part i: Instrumentation and analysis techniques. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, **23**, 157 – 169, doi:10.1175/JTECH1838.1.
- Winker, D. M., J. Pelon, J. A. Coakley, et al., 2010: The calipso mission: A global 3d view of aerosols and clouds. *Bulletin of the American Meteorological Society*, **91**, 1211 – 1230, doi:10.1175/2010BAMS3009.1.

-
- Winker, D. M., M. A. Vaughan, A. Omar, et al., 2009: Overview of the calipso mission and caliop data processing algorithms. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, **26**, 2310 – 2323, doi:10.1175/2009JTECHA1281.1.