

Universidade de São Paulo  
Instituto de Física

**Forçantes radiativas instantâneas devido ao  
primeiro efeito indireto de aerossóis antropogênicos  
durante o experimento GoAmazon 2014/5**

André Cezar Pugliesi da Silva

  
**Orientador:** Prof. Dr. Alexandre Lima Correia

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

**Banca Examinadora:**

Prof. Dr. Alexandre Lima Correia – Orientador (IF-USP)  
Profa. Dra. Luciana Varanda Rizzo – (IF-USP)  
Prof. Dr. Marco Aurélio de Menezes Franco – (IAG-USP)  
Prof. Dr. Alexandre Cacheffo – (UFU)  
Prof. Dr. Theotonio Mendes Pauliquevis Junior – (UNIFESP)

São Paulo  
2023

Autorizo a reprodução e divulgação total ou parcial deste trabalho, por qualquer meio convencional ou eletrônico, para fins de estudo e pesquisa, desde que citada a fonte.

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

Silva, André Cezar Pugliesi da

Forçantes radiativas instantâneas devido ao primeiro efeito indireto de aerossóis antropogênicos durante o experimento GoAmazon 2014/5. São Paulo, 2023.

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

Orientador: Prof. Dr. Alexandre Lima Correia

Área de Concentração: Física.

Unitermos: 1. Sensoriamento remoto; 2. Radiação atmosférica; 3. Microfísica de nuvens; 4. Aerossol

USP/IF/SBI-081/2023

University of São Paulo  
Physics Institute

**Instantaneous radiative forcings due to the first  
indirect effect of anthropogenic aerosols during the  
GoAmazon 2014/5 experiment**

André Cezar Pugliesi da Silva

  
**Supervisor:** Prof. Dr. Alexandre Lima Correia

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

**Examining Committee:**

Prof. Dr. Alexandre Lima Correia – Orientador (IF-USP)  
Prof. Dra. Luciana Varanda Rizzo – (IF-USP)  
Prof. Dr. Marco Aurélio de Menezes Franco – (IAG-USP)  
Prof. Dr. Alexandre Cacheffo – (UFU)  
Prof. Dr. Theotonio Mendes Pauliquevis Junior – (UNIFESP)

São Paulo  
2023

Este trabalho é dedicado à pequena Bianca, que a cada dia me faz buscar ser uma pessoa melhor.

## **Agradecimentos**

Ao Prof. Dr. Alexandre Lima Correia, por confiar na minha capacidade e aceitar ser meu orientador. Seus apontamentos e sugestões foram imprescindíveis para o desenvolvimento e a conclusão deste trabalho.

Ao Prof. Dr. Henrique de Melo Jorge Barbosa, pelas reuniões semanais realizadas durante o período mais difícil de isolamento social devido à pandemia de COVID-19.

Ao Prof. Dr. Vito Roberto Vanin, pelo fornecimento de material valiosíssimo acerca de análise estatística de dados em física experimental.

À Profa. Dra. Márcia Akemi Yamasoe, pelos ensinamentos e materiais fornecidos durante o curso de Radiação Atmosférica, os quais contribuíram enormemente para a elaboração da minha dissertação de mestrado e também desta tese de doutorado.

Ao Prof. Dr. Luiz Augusto Toledo Machado, pelas dicas, correções e apontamentos oferecidos durante o processo de qualificação do doutorado.

Aos amigos e colegas do IAG e do IF, pela convivência diária, pelas discussões acerca dos mais variados assuntos e também pelos diversos momentos de descontração.

À Maria Rosângela, por compreender os períodos de ausência e por sempre fornecer apoio e me incentivar a não desistir dos meus objetivos acadêmicos. Sua força e dedicação foram cruciais para que eu me mantivesse motivado durante os últimos 4 anos e meio.

Ao Instituto de Física da USP, pela oportunidade de realização do curso de doutorado e, conseqüentemente, desta tese.

A todos que contribuíram, técnica e emocionalmente, para que eu chegasse à conclusão deste trabalho, meus sinceros agradecimentos.

O presente trabalho foi realizado com apoio da Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior – Brasil (CAPES) - Código de Financiamento 001.

André Cezar Pugliesi da Silva

Agosto de 2023

*“A ciência é mais do que um corpo de conhecimento, é um modo de pensar.”*

Carl Sagan, em “O mundo assombrado pelos demônios: A ciência vista como uma vela no escuro” (1995).

## Resumo

O sistema climático global depende fundamentalmente da energia radiante proveniente do Sol. Ao atingir a atmosfera, a radiação solar interage diretamente com os aerossóis atmosféricos através de mecanismos de espalhamento e de absorção. A interação indireta, por sua vez, acontece quando os aerossóis modificam as propriedades micro e microfísicas de nuvens, as quais podem refletir mais ou menos radiação de volta ao espaço. Alterações na fração de cobertura do céu, mudanças na quantidade de aerossóis e alterações em nuvens devido à influência dos aerossóis afetam o equilíbrio radiativo global. Essas perturbações causam as forçantes radiativas climáticas (ou RF, de *Radiative Forcings*), diferenças na irradiância líquida no topo da atmosfera (ou TOA, de *Top of Atmosphere*) entre os estados atmosféricos de referência e perturbado. Algumas RF ocorrem devido ao primeiro efeito indireto de aerossóis em nuvens (efeito *Twomey*), que consiste em um aumento na quantidade de gotas pequenas de nuvens líquidas, acarretando a elevação da quantidade de radiação refletida de volta ao espaço. Esta pesquisa buscou obter estimativas localizadas de forçantes radiativas instantâneas devido ao primeiro efeito indireto de aerossóis ( $IRF_{aci}$ ) vinculado a nuvens quentes na Amazônia. Para isso foram utilizados conjuntos de dados obtidos a partir de medições realizadas *in situ* e através de sensoriamento remoto (a partir do solo) durante a campanha GoAmazon 2014/5. Essas medidas possibilitaram a configuração de modelos de nuvens quentes que serviram de *input* para que um código de transferência radiativa (*libRadtran*) calculasse valores diários de irradiância ascendente no TOA para 2014 e 2015. As  $IRF_{aci}$  foram calculadas segundo dois estados de referência atmosférica, a partir dos quais os resultados foram discriminados. O primeiro desses estados considerou os dias mais limpos (com relação a aerossóis) identificados durante os primeiros meses de 2014 e 2015, enquanto o segundo levou em conta também dois dias menos poluídos em Setembro de 2014. As distribuições anuais de  $IRF_{aci}$  obtidas para as duas referências indicam uma variação entre 2014 e 2015, sendo que, em geral, as forçantes referentes a 2014 são mais negativas que as de 2015. Os valores médios de  $IRF_{aci}$  para a campanha GoAmazon 2014/5 relativos aos dois estados de referência utilizados foram de  $-11.79$  [ $-23.0$ ;  $-2.44$ ]  $W/m^2$  e  $-1.30$  [ $-5.8$ ;  $0.59$ ]  $W/m^2$ , respectivamente. Tais valores são compatíveis com quantidades máximas de  $IRF_{aci}$  por unidade de profundidade óptica de aerossóis obtidas na literatura para a Amazônia. O valor obtido para o segundo estado de referência é equivalente a mais recente estimativa obtida pelo *Intergovernmental Panel on Climate Change*,  $-0.7 \pm 0.5$   $W/m^2$ . Além disso, os resultados indicam que a sensibilidade das  $IRF_{aci}$  em relação à variação na carga de aerossóis é maior na primeira metade do ano do que na segunda, períodos nos quais a atmosfera amazônica apresenta menores e maiores níveis de disponibilidade de aerossóis antropogênicos, respectivamente. As técnicas e resultados apresentados constituem uma abordagem única no que diz respeito ao cálculo de  $IRF_{aci}$  vinculado ao efeito *Twomey* de nuvens quentes sobre a Amazônia, colaborando para um melhor entendimento deste importante indicador da influência humana sobre o clima da região.

**Palavras-chave:** Forçante radiativa climática; Efeito *Twomey*; Nuvens quentes; libRadtran; Amazônia.





## Abstract

The global climate system depends fundamentally on the radiant energy coming from the Sun. Upon reaching the atmosphere, solar radiation interacts directly with atmospheric aerosols through scattering and absorption mechanisms. The indirect interaction, in turn, occurs when aerosols modify the micro and macrophysical properties of clouds, which can reflect more or less radiation back into space. Changes in the fractional sky cover, changes in the amount of aerosols, and in clouds due to the influence of aerosols affect the global radiative balance. These perturbations cause the climatic radiative forcings (RF), differences in net irradiance at the top of the atmosphere (TOA) between the reference and disturbed atmospheric states. Some RF occurs due to the first indirect effect of aerosols on clouds (the so-called Twomey effect), which consists of an increase in the number of small drops of liquid clouds, causing an increase in the amount of radiation reflected back to space. This research aims to obtain localized estimates of instantaneous radiative forcing due to the first indirect effect of aerosols ( $IRF_{aci}$ ) linked to warm clouds in the Amazon. For this, datasets obtained from *in situ* measurements and through remote sensing (from the ground) during the GoAmazon 2014/5 campaign were used. These measurements enabled the configuration of warm cloud models that served to feed a radiative transfer code (libRadtran) that calculated daily values of upward irradiance in the TOA for 2014 and 2015. The  $IRF_{aci}$  were calculated according to two atmospheric reference states, from which the results were discriminated. The first of these states considered the cleanest days (in terms of aerosols) identified during the first months of 2014 and 2015, while the second also took into account two less polluted days in September 2014. The annual  $IRF_{aci}$  distributions obtained for the two references indicate a variation between 2014 and 2015, and, in general, the resulting forcings for 2014 are more negative than those for 2015. The average  $IRF_{aci}$  values for the GoAmazon campaign relative to the two reference states used were  $-11.79$  [ $-23.0$ ;  $-2.44$ ]  $W/m^2$  and  $-1.30$  [ $-5.8$ ;  $0.59$ ]  $W/m^2$ , respectively. Such values are compatible with the maximum amounts of  $IRF_{aci}$  per unit of aerosol optical depth obtained in the literature for the Amazon. The result obtained for the second reference state is equivalent to the most recent estimate obtained by the Intergovernmental Panel on Climate Change,  $-0.7 \pm 0.5$   $W/m^2$ . In addition, the results indicate that the sensitivity of  $IRF_{aci}$  in relation to the variation in aerosol load is greater in the first half of the year than in the second, periods in which the Amazonian atmosphere presents lower and higher levels of availability of anthropogenic aerosols, respectively. The techniques and results presented constitute a unique approach concerning the calculation of  $IRF_{aci}$  linked to the Twomey effect of warm clouds over the Amazon, contributing to a better understanding of this important indicator of human influence on the region's climate.

**Keywords:** Climatic radiative forcing; Twomey effect; Warm clouds; libRadtran; Amazon.



## LISTA DE FIGURAS

- Figura 1 - Representação esquemática do balanço energético médio global da Terra. Os números indicam as melhores estimativas para as magnitudes dos componentes do balanço energético médio global em  $W/m^2$ , assim como suas faixas de incerteza entre parênteses (intervalo de confiança de 5 a 95%), representando as condições climáticas no início do século XXI (FORSTER et al., 2021).....27
- Figura 2 - Ilustração comparando (a) forçante radiativa instantânea, (b) forçante radiativa “ajustada”, a qual permite ajustes no perfil de temperatura estratosférico, (c) forçante radiativa efetiva quando a temperatura do solo é fixa, (d) forçante radiativa efetiva calculada com a temperatura dos oceanos fixa. Adaptação de HANSEN et al. (2005) realizada por IPCC (2013).....29
- Figura 3 - Distribuição de tamanhos, processos de produção, transformação e remoção das partículas de aerossol atmosférico (adaptado de SEINFELD & PANDIS, 2016).....31
- Figura 4 - Classificação (para latitudes médias) dos dez gêneros de nuvens de acordo com seu desenvolvimento vertical na atmosfera (WMO, 2023b). Disponível em <<https://cloudatlas.wmo.int/clouds-definitions.html>>. Acessado em 10/05/2023..33
- Figura 5 - O espectro eletromagnético em termos de comprimento e frequência de onda. Em destaque a região do espectro visível (Horst Frank, Jailbird, Alebergen, CC BY-SA 3.0 <<https://creativecommons.org/licenses/by-sa/3.0/>>, via Wikimedia Commons). Imagem disponível em <<https://commons.wikimedia.org/w/index.php?curid=18122584>>. Acessado em 10/05/2023.....47
- Figura 6 - Regiões de regime de espalhamento em função do parâmetro de tamanho  $\chi$ , o qual relaciona o raio da partícula espalhadora e o comprimento de onda incidente sobre ela (adaptação de SEINFELD & PANDIS, 2006, realizada por SENA, 2013).....52
- Figura 7 - Geometria para atmosferas plano paralelas, onde  $\theta$  é o ângulo zenital,  $\Phi$  representa o ângulo azimutal e  $s$  é o vetor posição (LIOU, 2002).....59
- Figura 8 - Sítios experimentais da GoAmazon 2014/5 nos arredores da cidade de Manaus ( $-3,1^\circ$ ,  $-60,0^\circ$ ), a qual está localizada na confluência dos rios Negro e Solimões, que juntos formam o rio Amazonas. O primeiro retângulo à esquerda (na

parte superior) mostra a localização do domínio experimental dentro América do Sul, e o mais escuro à direita mostra a iluminação noturna nos arredores de Manaus para o ano de 2010 (MARTIN et al., 2016).....	64
Figura 9 - Padrão climatológico e distribuição da precipitação mensal acumulada (mm) para os anos de 2014 e 2015 (CARNEIRO & FISCH, 2020).....	65
Figura 10 - Avião Gulfstream-159 (G-1), utilizado pelo ARM entre 2009 e 2018 para obter medidas de diversas variáveis atmosféricas ao redor do globo. Imagem disponível em < <a href="https://www.arm.gov/capabilities/observatories/aaf/manned">https://www.arm.gov/capabilities/observatories/aaf/manned</a> >. Último acesso em 17/05/2023.....	67
Figura 11 - Trajetórias (linhas na cor azul) diárias de todos os voos que o G-1 realizou durante a IOP 1. O "X" indica a localização geográfica do ponto de partida (Manaus) do G-1, enquanto o círculo vermelho mostra a localização do sítio T3. A área interna à marcação pontilhada na cor verde (60,75° O, 3,3° S, 60,45° O, 3,1° S) indica a região de estudo, ou seja, somente os voos que atravessaram esta área delimitada em torno do T3 (plotagens com título na cor preta) tiveram seus dados aqui considerados. Fonte: Autor.....	68
Figura 12 - Trajetórias (linhas na cor azul) diárias de todos os voos que o G-1 realizou durante a IOP 2. Assim como exposto na Figura 11, somente os dados referentes às plotagens com título na cor preta foram aqui utilizados. Fonte: Autor..	69
Figura 13 - Sensor WCM-2000, que mediu valores de LWC e TWC. Foto obtida pela pesquisadora Jennifer Comstock, responsável pela manutenção do instrumento e pela curadoria dos dados obtidos pelo WCM-2000 durante as IOP's 1 e 2.....	71
Figura 14 - FCDP acoplada a uma sonda AIMMS-20, a qual obteve medidas de $N_g$ e $n_g$ . Imagem obtida em < <a href="http://www.specinc.com/node/123">http://www.specinc.com/node/123</a> >. Último acesso em 22/05/2023.....	71
Figura 15 - Trajetórias de todos os voos realizados pelo HALO durante o mês de Setembro de 2014 (WENDISCH et al., 2016).....	72
Figura 16 - Trajetórias (linhas na cor azul) dos voos que o avião HALO realizou nos dias 11/09/2014 (voo AC09) e 28/09/2014 (voo AC18), durante a IOP 2. O "X" indica a localização geográfica de Manaus, enquanto o círculo vermelho mostra a do T3. Fonte: Autor.....	73

Figura 17 - Instrumentos utilizados para obtenção de CBH e CTH no T3. O intervalo de amostragem foi de 5 s. Da esquerda para a direita: Radar de nuvens (WACR), LIDAR de micropulsos (MPL) e Ceilômetro (CEIL). Fonte: ARM.....	74
Figura 18 - Radiômetro de micro-ondas MWR. Fonte: < <a href="https://www.arm.gov/capabilities/instruments/mwr">https://www.arm.gov/capabilities/instruments/mwr</a> >. Último acesso em 22/05/2023. ....	75
Figura 19 - Fotômetro solar da rede AERONET. Fonte: < <a href="https://aeronet.gsfc.nasa.gov/new_web/system_descriptions.html">https://aeronet.gsfc.nasa.gov/new_web/system_descriptions.html</a> >. Último acesso em 23/05/2023.....	77
Figura 20 - CCNPC-100 operacional (esquerda) e aberto para manutenção (direita). Imagens retiradas do <i>website</i> (< <a href="https://dropletmeasure.wpenginepowered.com/wp-content/uploads/2020/02/DOC-0086-Rev-M-CCN-Manual.pdf">https://dropletmeasure.wpenginepowered.com/wp-content/uploads/2020/02/DOC-0086-Rev-M-CCN-Manual.pdf</a> >) do fabricante do aparelho.....	79
Figura 21 - Médias diárias de $\beta_{\text{esp.}}$ e AOD para 2014. A legenda indica os instrumentos responsáveis pela aquisição de dados. As linhas verticais delimitam os meses de 2014, enquanto as regiões azul claro e marrom indicam os intervalos marcados como "limpo" e "poluído", respectivamente. Fonte: Autor.....	81
Figura 22 - Médias diárias de $\beta_{\text{esp.}}$ , Org. e CCN para 2014. A legenda indica os instrumentos responsáveis pela aquisição de dados das variáveis em questão. As regiões pintadas nas cores azul claro e marrom indicam os intervalos (mais restritivos com relação àqueles mostrados na Figura 21) marcados como "limpo" e "poluído", respectivamente. As linhas verticais num tom azulado mais intenso indicam os dias mais limpos dentro do intervalo limpo; a técnica utilizada para selecionar tais dias será exposta ao longo deste Capítulo. Fonte: Autor.....	82
Figura 23 - Médias diárias de $\beta_{\text{esp.}}$ , AOD e Org. para 2015. As regiões pintadas nas cores azul claro e marrom indicam os intervalos marcados como "limpo" e "poluído", respectivamente. Fonte: Autor.....	83
Figura 24 - Análise das medianas de acordo com o número de <i>clusters</i> para os conjuntos de dados de $\beta_{\text{esp.}}$ , Org. e AOD (somente do MFRSR, uma vez que para a AERONET havia muitos NaN's) colhidos em 2015. A quantidade ótima de grupos foi de $k = 2$ , pois para $k = 3$ há sobreposição das medianas entre os grupos. Fonte: Autor.....	85

Figura 25 - Análise das medianas de acordo com o número de <i>clusters</i> para $\beta_{esp.}$ , Org. e CCN colhidos em 2014. A quantidade ótima de grupos foi de $k = 3$ . Fonte: Autor.....	86
Figura 26 - Grupos (medianas de 2015) discriminados pelo <i>K-Means</i> representados no espaço bidimensional obtido pela técnica PCA. A porcentagem de variância total mantida após a PCA foi de 93%. Fonte: Autor.....	87
Figura 27 - Mesmo que a Figura 26, só que para dados de 2014. A porcentagem de variância total mantida neste caso foi de 90.1%. Fonte: Autor.....	87
Figura 28 - Dispersão de pontos (LWC x $r_{eff}$ ) referentes a nuvens líquidas atravessadas pelo G-1 durante as IOP 1 e 2 (esquerda e direita, respectivamente) de 2014. Fonte: Autor.....	90
Figura 29 - Dispersão das medianas (para IOP 1 e 2, à esquerda e à direita, respectivamente) calculadas para as 20 faixas de LWC. A reta vermelha representa o ajuste linear para as medianas referentes aos pontos colhidos durante a IOP 2. A legenda mostra a qualidade do ajuste ( $R^2$ ), assim como os valores dos coeficientes linear e angular obtidos. Fonte: Autor.....	90
Figura 30 - Dispersão das medianas calculadas (para as 20 faixas) a partir dos dados medidos durante a IOP 1. A curva vermelha representa a função (olhar legenda) que melhor se ajustou aos pontos. Fonte: Autor.....	91
Figura 31 - Dispersão de $r_{eff}$ x LWC e das medianas para os valores obtidos através das equações 4.3 e 4.4 para todos os dias da IOP 2. Fonte: Autor.....	92
Figura 32 - Dispersão das medianas calculadas (para as 20 faixas) a partir dos dados oriundos das equações 4.3 e 4.4 para medições feitas durante a IOP 2. A curva vermelha representa a função (olhar legenda) que melhor se ajustou aos pontos. Fonte: Autor.....	93
Figura 33 - Zonas microfísicas de nuvens convectivas e seu comportamento em função de diferentes concentrações volumétricas de aerossóis na atmosfera. A curva mais clara à direita corresponde a ambientes marítimos com baixa concentração de CCN e IN. A curva central representa ambientes com concentrações moderadas de aerossóis na atmosfera e a curva mais escura à esquerda corresponde a ambientes continentais muito poluídos. (Adaptado por MARTINS et al., 2011, de ROSENFELD & WOODLEY, 2003).....	95

Figura 34 - Perfis de temperatura (à esquerda) e pressão (à direita) para a atmosfera tropical padrão (arquivo afglt.dat) disponível no pacote <i>LibRadtran</i> . Fonte: Autor.....	97
Figura 35 - Densidades volumétricas (ar, O <sub>2</sub> , O <sub>3</sub> , NO <sub>2</sub> , CO <sub>2</sub> e vapor d'água) para a atmosfera tropical padrão disponibilizada pelo <i>LibRadtran</i> . Fonte: Autor.....	97
Figura 36 - Perfis verticais de, N <sub>2</sub> O, CH <sub>4</sub> e CO para a "atmosfera tropical padrão" disponibilizada pela Universidade de Oxford. Fonte: Autor.....	98
Figura 37 - Componentes direta (descendente) e difusa (ascendente) simuladas no TOA para o sítio T3 no dia 15/02/2014 às 12:00 (horário local) e com albedo de superfície igual a 14%. Fonte: Autor.....	98
Figura 38 - Exemplo de configuração utilizada para realizar as simulações no <i>LibRadtran</i> . Fonte: Autor.....	99
Figura 39 - Variação diária da distância entre a Terra e o Sol para o ano de 2014. Os dados foram localizados para o sítio T3 e os resultados de d (em Unidades Astronômicas, UA) calculados pelas planilhas ofertadas pela NOAA. Fonte: Autor. .....	101
Figura 40 - Histogramas e <i>boxplots</i> de LWC e $r_{\text{eff}}$ para o cenário limpo de 2014. Fonte: Autor.....	103
Figura 41 - Histogramas e <i>boxplots</i> de LWC e $r_{\text{eff}}$ para a "transição 1" de 2014. Fonte: Autor.....	103
Figura 42 - Histogramas e <i>boxplots</i> de LWC e $r_{\text{eff}}$ para o cenário poluído de 2014, com todos os pontos de "poluído 1" e "poluído 2" incluídos. Fonte: Autor.....	103
Figura 43 - Histogramas e <i>boxplots</i> de LWC e $r_{\text{eff}}$ para a "transição 2" de 2014. Fonte: Autor.....	104
Figura 44 - Histogramas e <i>boxplots</i> de LWC e $r_{\text{eff}}$ para a "transição 3" de 2014. Fonte: Autor.....	104
Figura 45 - Histogramas e <i>boxplots</i> de LWC e $r_{\text{eff}}$ para o cenário limpo de 2015. Fonte: Autor.....	105
Figura 46 - Histogramas e <i>boxplots</i> de LWC e $r_{\text{eff}}$ para a "transição" de 2015. Fonte: Autor.....	105
Figura 47 - Histogramas e <i>boxplots</i> de LWC e $r_{\text{eff}}$ para o cenário poluído de 2015. Fonte: Autor.....	106
Figura 48 - Medianas diárias (2014) de F integrada para comprimentos de onda entre 300 e 1000 nm. Fonte: Autor.....	107

Figura 49 - Medianas diárias (2015) de F integrada para comprimentos de onda entre 300 e 1000 nm. Fonte: Autor.....	107
Figura 50 - Irradiâncias (F) espectrais ascendentes no TOA para dias selecionados de 2014. O gráfico à direita se refere aos dias que apresentaram distribuições de F deslocadas para valores mais altos, enquanto o à esquerda se refere aos dias cujas distribuições estão deslocadas para os valores mínimos. Fonte: Autor.....	108
Figura 51 - Distribuições de Irradiâncias espectrais ascendentes no TOA para os dias selecionados de 2015. Fonte: Autor.....	108
Figura 52 - Irradiâncias espectrais médias para os períodos limpo, transição 1 e poluído do ano de 2014. O período poluído contempla todas as medidas obtidas nos cenários “poluído 1” e “poluído 2”. Todas as simulações consideram o meio-dia local. Fonte: Autor.....	109
Figura 53 - Irradiâncias espectrais médias para os períodos limpo e poluído (e a transição entre eles) do ano de 2015. Todas as simulações consideram o meio-dia local. Fonte: Autor.....	110
Figura 54 - Irradiâncias ascendentes integradas no TOA para 2014 e 2015. Os valores (que foram calculados para cada dia e correspondem ao meio dia solar local no sítio T3) não são afetados pela variação orbital da Terra, de modo que a variação ao longo dos anos são devidas a mudanças nas propriedades das nuvens. As áreas destacadas na cor azul (marrom) representam os períodos limpos (poluídos) para os dois anos. As linhas verticais num tom azulado mais intenso indicam os dias considerados mais limpos segundo os critérios de clusterização apresentados na seção 4.3 do Capítulo 4. Dias que não mostram valores de F integrada continham conjuntos de dados (medidos a partir do solo) incompletos de propriedades de nuvem (CBH, CTH ou LWP), impossibilitando a modelagem de nuvens quentes e, conseqüentemente, o cálculo de irradiâncias e também de forçantes radiativas. Fonte: Autor.....	111
Figura 55 - IRF calculadas a partir do valor de referência fixo e obtidas ao meio-dia solar no T3. As áreas nas cores azul e marrom indicam os períodos limpo e poluído, respectivamente. Fonte: Autor.....	113
Figura 56 - Fração de cobertura do céu (incluindo todos os tipos de nuvens) média diurna para cada dia dos anos de 2014 e 2015 no T3. Fonte: Autor.....	114



Figura 57 - Forçantes radiativas instantâneas diurnas. A indicação “Sem $f_c$ ” (linha azul) na legenda significa que as IRF não foram multiplicadas pela média diurna de $f_c$ , enquanto a “Com $f_c$ ” (linha dourada) aponta para a existência do produto $f_c \times IRF_{diurna}$ . Fonte: Autor.....	115
Figura 58 - Forçantes radiativas instantâneas diárias considerando ou não a média de $f_c$ sobre o T3. Fonte: Autor.....	115
Figura 59 - Forçantes radiativas instantâneas (IRF) diurnas calculadas segundo a equação 5.1 e separadas conforme as estações de 2014. Os extremos inferior e superior indicam, respectivamente, os valores $Q_1 - 1.5 \times IQR$ e $Q_3 + 1.5 \times IQR$ , onde $Q_1$ é o 1º quartil, $Q_3$ é o 3º quartil e $IQR = Q_3 - Q_1$ é a distância interquartil, ou InterQuartile Range, em inglês. Já os limites inferior e superior das caixas mostram os valores de $Q_1$ e $Q_3$ (respectivamente), enquanto a linha verde contínua (vermelha pontilhada) indica o valor da mediana (média). Fonte: Autor.....	116
Figura 60 - IRF diárias separadas conforme as estações chuvosa, de transição e seca de 2014. Fonte: Autor.....	117
Figura 61 - IRF diurnas separadas conforme as estações chuvosa e seca de 2015. Durante o período de transição, Julho, não foi possível realizar o cálculo de IRF, e por isso um diagrama de caixa não é mostrado. Fonte: Autor.....	118
Figura 62 - IRF diárias separadas conforme as estações chuvosa e seca de 2015. Durante o período de transição, Julho, não foi possível realizar o cálculo de IRF, e por isso um <i>boxplot</i> não é mostrado. As linhas pontilhadas vermelhas indicam os valores das médias, e as contínuas verdes mostram os valores das medianas. Fonte: Autor.....	118
Figura 63 - IRF diurnas separadas conforme os cenários resultantes para o ano de 2014. Durante alguns dias do período poluído foram observadas quedas significativas nas médias de concentrações volumétricas de $\beta_{sp.}$ , Org. e CCN, e por isso o cenário poluído foi dividido em 2 subintervalos, dando assim origem ao cenário "transição 2". As linhas pontilhadas vermelhas indicam os valores das médias, e as contínuas verdes mostram os valores das medianas. Fonte: Autor....	119
Figura 64 - IRF diárias conforme os cenários de 2014. Fonte: Autor.....	120
Figura 65 - IRF diurnas separadas de acordo com os cenários configurados para o ano de 2015. Fonte: Autor.....	121

Figura 66 - IRF diárias discriminadas de acordo com os cenários configurados para o ano de 2015. Fonte: Autor.....	121
Figura 67 - <i>Boxplots</i> e histogramas de frequências relativas de IRF diurnas para 2014 e 2015 sem considerar a $f_c$ no T3. As linhas pontilhadas vermelhas indicam o valor da média, e as linhas verdes mostram os valores das medianas. Fonte: Autor. ....	122
Figura 68 - <i>Boxplots</i> e histogramas de frequências relativas de IRF diurnas para 2014 e 2015 levando em conta a $f_c$ no T3. As linhas pontilhadas vermelhas indicam o valor da média, e as linhas contínuas verdes mostram os valores das medianas. Fonte: Autor.....	123
Figura 69 - <i>Boxplots</i> e histogramas de frequências relativas de IRF diárias para 2014 e 2015 sem considerar a $f_c$ no T3. As linhas pontilhadas vermelhas indicam o valor da média, e as linhas verdes mostram os valores das medianas. Fonte: Autor.....	124
Figura 70 - <i>Boxplots</i> e histogramas de frequências relativas de IRF diárias para 2014 e 2015 levando em conta a $f_c$ no T3. Fonte: Autor.....	124
Figura 71 - F ascendentes para 2014 e 2015. Os valores foram calculados para cada dia e correspondem ao meio dia solar local no T3. A linha vermelha indica a variação do valor de referência "limpa" de acordo os cenários de 2014 e 2015. Fonte: Autor. ....	128
Figura 72 - Forçantes radiativas instantâneas diárias calculadas de acordo com os valores de referência representados pela linha vermelha mostrada na Figura 71. Fonte: Autor.....	128
Figura 73 - IRF diárias calculadas de acordo com valores de irradiância de referência variáveis e separadas conforme as estações de 2014.....	130
Figura 74 - IRF diárias calculadas de acordo com valores de irradiância de referência variáveis e separadas conforme as estações de 2015. As linhas pontilhadas vermelhas (contínuas verdes) indicam os valores das médias (medianas). Fonte: Autor.....	130
Figura 75 - IRF diárias calculadas de acordo com valores de irradiância de referência variáveis e separadas conforme os cenários de disponibilidade de aerossóis em 2014. Fonte: Autor.....	131

Figura 76 - IRF diárias calculadas de acordo com valores de irradiância de referência variáveis e separadas conforme os cenários de disponibilidade de aerossóis em 2015. Fonte: Autor.....	132
Figura 77 - IRF diárias calculadas de acordo com valores de irradiância de referência variáveis e separadas conforme os trimestres de 2014.....	133
Figura 78 - IRF diárias calculadas de acordo com valores de irradiância de referência variáveis e separadas conforme os trimestres de 2015.....	133
Figura 79 - <i>Boxplots</i> e histogramas de frequências relativas de IRF diárias para 2014 e 2015 sem considerar a $f_c$ no T3 e de acordo com as irradiâncias de referência variáveis apresentadas na Figura 71. As linhas pontilhadas vermelhas indicam o valor da média, e as linhas verdes mostram os valores das medianas. Fonte: Autor. .....	134
Figura 80 - <i>Boxplots</i> e histogramas de frequências relativas de IRF diárias para 2014 e 2015 (considerando a $f_c$ ) e de acordo com as irradiâncias de referência variáveis apresentadas na Figura 71. Fonte: Autor.....	134



## LISTA DE QUADROS

Quadro 1 - Definição das estações seca e chuvosa para o período completo deste estudo.....	66
Quadro 2 - Concentrações de $N_a$ e CCN medidas durante alguns voos do HALO....	73
Quadro 3 - Propriedades de nuvens e aerossóis analisadas neste trabalho.....	80
Quadro 4 - Dias que delimitam os períodos limpo e poluído para os anos da campanha GoAmazon 2014/5.....	83
Quadro 5 - Dias mais limpos dentro dos cenários limpos de 2014 e 2015. Esses dias serão usados como uma referência para o cálculo de forçantes radiativas.....	88
Quadro 6 - Configuração da nuvem para o dia 11/03/2014, durante a estação limpa. Os valores foram obtidos conforme exposto ao longo desta seção.....	95
Quadro 7 - Médias, medianas e percentis (25 e 75) calculados para as IRF diárias (unidades de $W/m^2$ ) referentes aos diferentes períodos, cenários e trimestres de 2014. Os diagramas de caixa que ilustram as estatísticas referentes aos trimestres de 2014 são exibidos no Apêndice B deste trabalho.....	125
Quadro 8 - Médias, medianas e percentis (25 e 75) calculados para as IRF diárias (unidades de $W/m^2$ ) referentes aos diferentes períodos, cenários e trimestres de 2015. Os diagramas de caixa que ilustram as estatísticas referentes aos trimestres de 2015 são exibidos no Apêndice B deste trabalho.....	126
Quadro 9 - Médias, medianas e percentis calculados para as IRF diárias de 2014 (unidades de $W/m^2$ ) calculadas segundo a irradiância de referência sazonal exibida na Figura 71.....	135
Quadro 10 - Médias, medianas e percentis calculados para as IRF diárias de 2015 (unidades de $W/m^2$ ) calculadas segundo a irradiância de referência sazonal exibida na Figura 71.....	136
Quadro 11 - Variações percentuais de AOD e sensibilidades de $IRF_{aci}$ diárias de acordo com os períodos limpos e poluídos de 2014 e 2015. Os valores médios de AOD para os dias constituintes das referências limpa e poluída foram iguais a 0.07 e 0.20, respectivamente. O módulo da média de $IRF_{aci}$ diária para o período poluído de 2014 equivale à média* dos valores mostrados nas linhas "Poluído_1" e "Poluído_2" no Quadro 9.....	139



## LISTA DE ABREVIATURAS E SIGLAS

ACI	- <i>Aerosol-Cloud Interactions</i> (Interações entre aerossóis e nuvens)
ACSM	- <i>Aerosol Chemical Speciation Monitor</i> (Monitor de Especificação Química de Aerossóis)
AERONET	- <i>AEROSOL ROBOTIC NETWORK</i> (Rede de Medidas de Aerossol)
AGL	- <i>Above Ground Level</i> (Acima do nível do solo)
AIMMS-20	- <i>Aircraft-Integrated Meteorological Measurement System</i> (Sistema de medição meteorológica integrado em aeronave)
AMF-1	- <i>ARM Mobile Facility 1</i> (Instalação Móvel do ARM)
AOD	- <i>Aerosol Optical Depth</i> (Profundidade Óptica dos Aerossóis)
AOT	- <i>Aerosol Optical Thickness</i> (Espessura Óptica dos Aerossóis)
AR5	- <i>Assessment Report 5</i> (Relatório de avaliação número 5)
AR6	- <i>Assessment Report 6</i> (Relatório de avaliação número 6)
ARI	- <i>Aerosol-Radiation Interactions</i> (Interações entre aerossóis e radiação)
ARM	- <i>Atmospheric Radiation Measurement</i> (Pesquisa de medição de radiação atmosférica)
ARSCL	- <i>Active Remote Sensing of Clouds</i> (Sensoriamento Remoto Ativo de Nuvens)
BAHAMAS	- <i>Basic HALO Measurement and Sensor System</i>
BC	- <i>Black Carbon</i> (Carbono Negro)
CAS-DPOL	- <i>Cloud and Aerosol Spectrometer, with Detector for Polarization</i>
CBH	- <i>Cloud Base Height</i> (Altura da base da nuvem)
CCN	- <i>Cloud Condensation Nuclei</i> (Núcleos de condensação de nuvens)
CCNPC	- <i>Cloud Condensation Nuclei Particle Counter</i> (Contador de partículas de CCN)
CF	- <i>Cloud Fraction</i> (Fração de cobertura do céu)
CN	- <i>Corpo Negro</i>
COD	- <i>Cloud Optical Depth</i> (Profundidade Óptica da Nuvem)
CTH	- <i>Cloud Top Height</i> (Altura do topo da nuvem)
DoE	- <i>Department of Energy of USA</i> (Departamento de Energia dos EUA)
DISORT	- <i>DIScrete Ordinate Radiative Transfer solver</i>
ERF	- <i>Effective Radiative Forcing</i> (Forçante radiativa efetiva)
ETR	- <i>Equação de Transferência Radiativa</i>
EODG	- <i>Earth Observation Data Group</i> (Grupo de observação de dados da Terra, departamento de física da Universidade de Oxford)
ESRL	- <i>Earth System Research Laboratories</i> (Laboratórios de Pesquisa do Sistema Terrestre da NOAA)
FCDP	- <i>Fast Cloud Droplet Probe</i> (Sonda Rápida de Gotículas de Nuvem)
G-1	- <i>Avião Gulfstream-159</i>
GoAmazon	- <i>Green ocean Amazon</i>
HALO	- <i>High Altitude and Long Range Research Aircraft</i> (Aeronave de Pesquisa de Elevada Altitude e Longo Alcance)
IN	- <i>Ice Nuclei</i> (Núcleos de gelo)
IPCC	- <i>Intergovernmental Panel on Climate Change</i> (Painel Intergovernamental de Mudanças Climáticas)

IQR	- <i>InterQuartile Range</i> (Distância Interquartil, dada pela diferença entre os percentis 75 e 25 de uma distribuição de valores)
IRF	- <i>Instantaneous Radiative Forcing</i> (Forçante radiativa instantânea)
ITCZ	- <i>InterTropical Convergence Zone</i> (Zona de Convergência InterTropical, ZCIT)
IWC	- <i>cloud Ice Water Content</i> (Conteúdo de gelo na nuvem)
libRadtran	- <i>library for Radiative transfer</i>
LIDAR	- <i>Light Detection and Ranging</i> (Sistema de detecção e alcance de luz)
LWC	- <i>cloud Liquid Water Content</i> (Conteúdo de água líquida na nuvem)
LWP	- <i>cloud Liquid Water Path</i> (Conteúdo integrado de água líquida na nuvem)
MAOS	- <i>ARM Mobile Aerosol Observing System</i> (Sistema Móvel de Observação de Aerossóis do ARM)
MFRSR	- <i>MultiFilter Rotating Shadowband Radiometer</i> (Radiômetro Rotativo Multi-Filtro)
MPL	- <i>MicroPulse LIDAR</i> (LIDAR de micropulsos)
MWR	- <i>MicroWave Radiometer</i> (Radiômetro de micro-ondas)
NaN	- <i>Not a Number</i>
NASA	- <i>National Aeronautics and Space Administration</i> (Agência espacial norte-americana)
NOAA	- <i>National Oceanic and Atmospheric Administration</i> (Administração Oceânica e Atmosférica norte-americana)
OPC	- <i>Optical Particle Counter</i> (Contador Óptico de Partículas)
Org.	- Concentração mássica total de partículas orgânicas
PBL	- <i>Planetary Boundary Layer</i> (Camada Limite Planetária)
PCA	- <i>Principal Component Analysis</i> (Análise de Componentes Principais)
RF	- <i>Radiative Forcing</i> (Forçante radiativa)
SEA	- <i>Science Engineering Associates</i>
SSA	- <i>Single Scattering Albedo</i> (Albedo de Espalhamento Simples)
SZA	- <i>Solar Zenith Angle</i> (Ângulo Zenital Solar)
TOA	- <i>Top of Atmosphere</i> (Topo da atmosfera)
TWC	- <i>cloud Total Water Content</i> (Conteúdo Total de Água na nuvem)
UTC	- <i>Coordinated Universal Time</i> (Tempo Universal Coordenado)
UA	- Unidade Astronômica
VAP	- <i>Value-Added Product</i> (Produto de valor agregado)
WACR	- <i>W-band ARM Cloud Radar</i> (Radar de nuvens na banda W do ARM)
WMO	- <i>World Meteorological Organization</i> (Organização Meteorológica Mundial)
F	- Irradiância
$F_0$	- Irradiância solar total ou Constante Solar
$f_c$	- Fração de cobertura do céu
$N_g$	- Concentração total de gotas na nuvem
$n_g$	- Distribuição de gotas na nuvem
$r_{eff}$	- Raio efetivo de gotas de nuvens líquidas
$\beta_{esp.}$	- Coeficiente linear de espalhamento dos aerossóis
$\% \Delta$	- Variação percentual



## SUMÁRIO

Capítulo 1 - Introdução.....	26
1.1 - O equilíbrio radiativo global.....	26
1.2 - Forçantes radiativas climáticas.....	28
1.3 - Nuvens e aerossóis atmosféricos.....	30
1.4 - Efeitos direto e semidireto dos aerossóis no clima.....	34
1.5 - Efeitos indiretos dos aerossóis no clima.....	35
1.6 - Revisão: $RF_{aci}$ devido a efeitos indiretos dos aerossóis.....	37
Capítulo 2 - Objetivos.....	44
Capítulo 3 - Fundamentação Teórica.....	46
3.1 - Radiação atmosférica.....	46
3.1.1 - Grandezas radiométricas básicas.....	47
3.1.2 - Radiação de corpo negro.....	50
3.1.3 - Extinção de radiação por constituintes atmosféricos.....	51
3.2 - Equação de transferência radiativa (ETR).....	57
Capítulo 4 - Instrumentação e Metodologia.....	62
4.1 - O experimento GoAmazon 2014/5.....	63
4.1.1 - Caracterização do sítio T3.....	66
4.2 - Instrumentação.....	66
4.2.1 - <i>In situ</i> com aviões.....	68
4.2.2 - Sensoriamento remoto a partir do solo.....	74
4.3 - Identificação e caracterização dos cenários limpo e poluído.....	81
4.4 - Obtenção de parâmetros microfísicos de nuvens.....	88
4.5 - Modelagem de nuvens quentes.....	94
4.6 - Simulações de transferência radiativa na atmosfera.....	96
4.7 - Cálculo de forçantes radiativas instantâneas.....	100
Capítulo 5 - Resultados e discussões.....	102

5.1 - LWC e raio efetivo de gotas em nuvens quentes.....	102
5.2 - Irradiâncias espectrais ascendentes no TOA.....	106
5.3 - Irradiâncias integradas ascendentes no TOA.....	110
5.4 - Forçantes radiativas instantâneas devido ao efeito indireto de aerossóis...112	
5.4.1 - IRF segundo referência fixa dos dias limpos de 2014-2015.....	112
5.4.1.1 - Ângulo solar zenital nulo.....	112
5.4.1.2 - Distribuições chuvosas/secas e segundo cenários limpo/poluído.113	
5.4.1.3 - Distribuições anuais.....	122
5.4.2 - IRF de acordo com fluxo radiativo de referência sazonal.....	126
5.4.2.1 - Distribuições chuvosas/secas e segundo cenários limpo/poluído.129	
5.4.2.2 - Distribuições trimestrais.....	132
5.4.2.3 - Distribuições anuais.....	134
5.5 - Discussões.....	137
5.5.1 - Considerações acerca dos estados de referência adotados.....	137
5.5.2 - Sensibilidades com relação aos aerossóis.....	138
5.5.3 - Comparação com resultados selecionados.....	139
Capítulo 6 - Conclusões.....	142
Referências.....	148
Apêndice A.....	157
Apêndice B.....	161
Apêndice C.....	163
Anexo A.....	164

## Capítulo 1 - Introdução

A vida existente na Terra, bem como a regulação do clima terrestre e do ciclo hidrológico, depende fundamentalmente da energia radiante proveniente do Sol. As evoluções temporal e espacial dos processos atmosféricos são governados pelas interações existentes entre essa energia e os constituintes da atmosfera, sendo estes o ar atmosférico (porção gasosa seca), o vapor d'água (porção gasosa úmida) e as partículas sólidas e líquidas em suspensão, os denominados aerossóis atmosféricos. Cerca de 99% da atmosfera seca é formada por nitrogênio ( $N_2$ , ~78%) e oxigênio ( $O_2$ , ~21%), sendo a porção restante constituída por gases traço dentre os quais o argônio (Ar) representa 0,93% do total (SEINFELD & PANDIS, 2016).

A presença de nuvens na atmosfera exerce um papel fundamental no equacionamento da radiação global pois, além de participar do ciclo hidrológico, as nuvens refletem, absorvem e emitem radiação em direção ao espaço e também à superfície. Quando comparadas ao volume de água nos oceanos e às porções de terra cobertas por gelo, as nuvens exercem esta influência em uma curta escala de tempo, mas não por isso são menos importantes. Segundo o Painel Intergovernamental de Mudanças Climáticas (*Intergovernmental Panel on Climate Change* ou IPCC, do inglês), as interações entre aerossóis e nuvens podem exercer impactos importantes sobre o clima, constituindo uma das grandes fontes de incertezas em modelos de previsão climática (FORSTER et al., 2021).

### 1.1 - O equilíbrio radiativo global

O diagrama mostrado na Figura 1 ilustra de forma simplificada os mecanismos que fazem parte do balanceamento radiativo terrestre. De acordo com esse diagrama, a quantidade de energia solar média incidente sobre o planeta Terra por segundo e por unidade de área é de  $\sim 340 \text{ W/m}^2$ . Desse total, cerca de 30% da radiação é refletida de volta ao espaço por partículas, gases, nuvens e pela superfície terrestre, totalizando assim cerca de  $100 \text{ W/m}^2$  refletidos. Da quantidade restante ( $240 \text{ W/m}^2$ ), cerca de  $80 \text{ W/m}^2$  são absorvidos diretamente pela atmosfera e  $\sim 160 \text{ W/m}^2$  pela superfície, aparentemente equilibrando a quantidade de radiação global. Os valores apresentados anteriormente correspondem, contudo, somente à radiação de ondas curtas (que fazem parte do “espectro solar”), onde os

comprimentos de onda (letra grega lambda,  $\lambda$ ) vão de  $\sim 0,3 \mu\text{m}$  a  $\sim 4 \mu\text{m}$ . A superfície terrestre, por sua vez, transfere uma grande parte da energia solar incidente para a atmosfera na forma de emissão de radiação de ondas longas, as quais têm  $\lambda$  indo de  $\sim 4 \mu\text{m}$  a  $\sim 100 \mu\text{m}$  e pertencem ao chamado “espectro terrestre” (YAMASOE & CORRÊA, 2016).

As nuvens, partículas e gases na atmosfera refletem e emitem radiação de ondas longas para o espaço e de volta para a superfície terrestre, sendo que podem haver novas interações entre a radiação infravermelha e os componentes da atmosfera. Esse sistema complexo e ininterrupto de múltiplas reflexões, emissões e absorções de energia em diferentes  $\lambda$  é mantido em equilíbrio pois aproximadamente a mesma quantidade de radiação solar absorvida pelo sistema Terra atmosfera é irradiada de volta ao espaço em  $\lambda$  na região do infravermelho.

Partículas de aerossol antropogênico influenciam a evolução microfísica de hidrometeoros em nuvens, as quais podem refletir mais ou menos radiação solar de volta ao espaço. A contabilidade da radiação em situações mais ou menos poluídas proporciona a avaliação das denominadas “forçantes radiativas climáticas”, conceito essencial para o entendimento da influência humana sobre o clima.

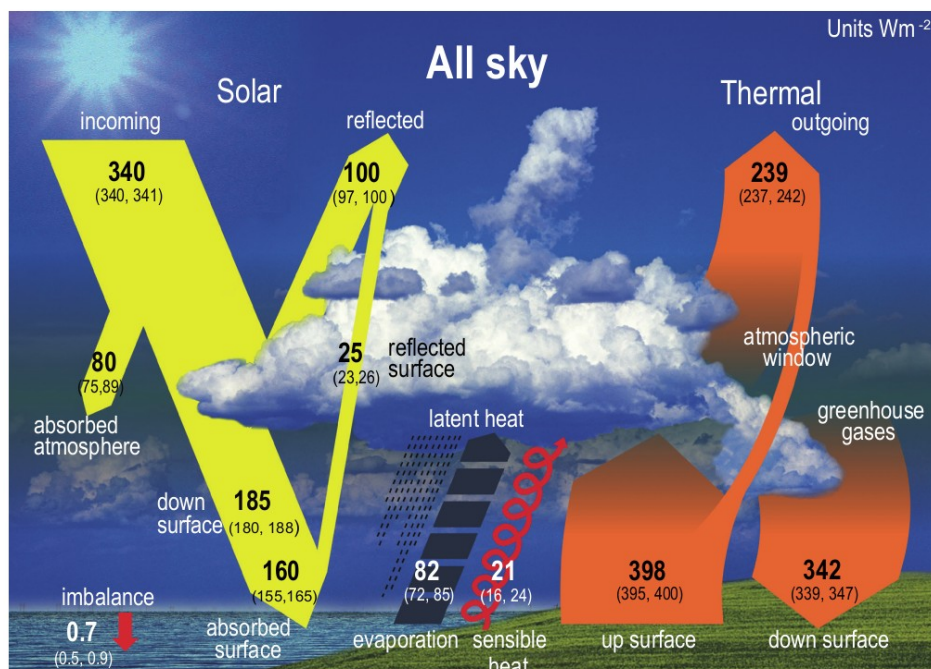


Figura 1 - Representação esquemática do balanço energético médio global da Terra. Os números indicam as melhores estimativas para as magnitudes dos componentes do balanço energético médio global em  $\text{W/m}^2$ , assim como suas faixas de incerteza entre parênteses (intervalo de confiança de 5 a 95%), representando as condições climáticas no início do século XXI (FORSTER et al., 2021).

## 1.2 - Forçantes radiativas climáticas

O equilíbrio radiativo global pode ser perturbado por fatores naturais ou antrópicos. Dentre os naturais estão incluídas as mudanças na órbita terrestre, as variações na intensidade de irradiância solar e as erupções vulcânicas. Com relação aos fatores de origem antrópica, as variações na concentração de gases de efeito estufa na atmosfera é o mais significativo. Mudanças de albedo terrestre devido aos diversos modos de uso do solo, alterações na fração de cobertura do céu, mudanças na quantidade de aerossóis antropogênicos disponíveis na atmosfera e mudanças de propriedades de nuvens devido à influência de aerossóis também podem alterar o equilíbrio radiativo global. Essas perturbações causam as “forçantes radiativas climáticas” (ou RF, de *Radiative Forcings*, em inglês), diferenças na irradiância líquida (unidades de  $W/m^2$ ) no topo da atmosfera (*Top of Atmosphere* ou TOA) entre um estado de referência (geralmente o início da revolução industrial, no século XVIII) e um estado perturbado por um agente climático externo (IPCC, 2013).

Muitos estudos têm buscado quantificar forçantes devido aos diversos agentes antrópicos (e.g. CHEN et al., 2014; WANG et al., 2023), sendo que cada um deles adota um estado de referência atmosférica para representar uma atmosfera totalmente limpa, quando a quantidade de aerossóis antropogênicos disponíveis é praticamente nula. Dada a impossibilidade de conhecimento detalhado acerca de propriedades de nuvens e aerossóis no século XVIII, por exemplo, uma caracterização climática dessa época depende de um conjunto de hipóteses e suposições para sua modelagem, fazendo com que as propriedades atmosféricas da referência considerada carreguem algum grau de arbitrariedade (CORREIA et al., 2014). Isso faz com que estudos de RF realizados com definições diferentes sobre o estado de referência resultem em valores diversos para a mesma forçante, portanto qualquer comparação entre estimativas de RF deve explicitar se a mesma referência está sendo utilizada. No caso das RF devido às interações entre aerossóis e nuvens, uma avaliação detalhada das condições dos aerossóis no estado de referência pode levar a uma redução nas incertezas vinculadas às estimativas obtidas (GRYSPEERDT et al., 2023).

As RF afetam o sistema Terra atmosfera, ocasionando um desequilíbrio radiativo que, por sua vez, faz com que o sistema busque um novo estado de equilíbrio através da variação da sua temperatura interna, que é descrita pela

temperatura da superfície (continente e/ou oceano) e pelos perfis de temperatura troposférico e estratosférico. As RF são denominadas *instantâneas* (IRF, de *Instantaneous Radiative Forcings*) quando nenhuma mudança nos perfis de temperatura troposférico e estratosférico é considerada, ou seja, quando somente as diferenças de fluxo radiativo são analisadas. As forçantes radiativas *efetivas* (ERF, de *Effective Radiative Forcings*), por sua vez, são obtidas quando se considera perturbações nos perfis de temperatura da troposfera e da estratosfera, sendo que os cálculos devem ser realizados somente após essas camadas atmosféricas voltarem ao seu equilíbrio radiativo. Uma vez atingido esse equilíbrio, os cálculos de ERF podem ainda admitir uma temperatura fixa para toda a superfície continental ou então somente para os oceanos, conforme ilustrado na Figura 2. As forçantes radiativas positivas indicam um efeito líquido de aquecimento do sistema Terra atmosfera, enquanto as negativas indicam um resfriamento (IPCC, 2013).

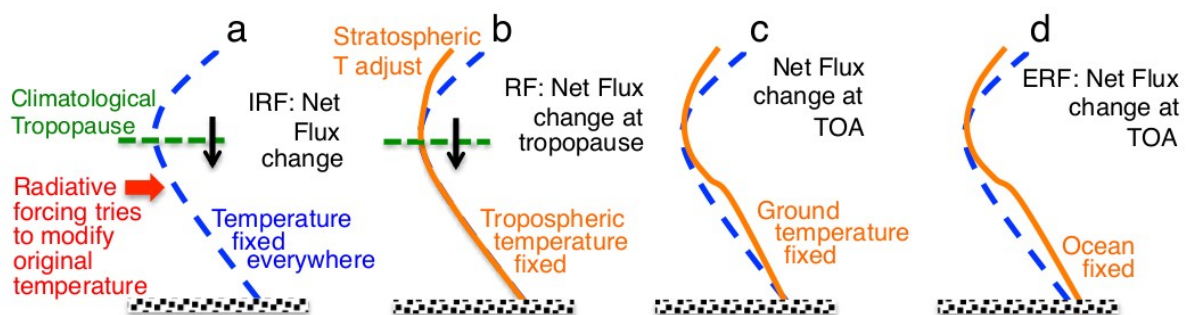


Figura 2 - Ilustração comparando (a) forçante radiativa instantânea, (b) forçante radiativa “ajustada”, a qual permite ajustes no perfil de temperatura estratosférico, (c) forçante radiativa efetiva quando a temperatura do solo é fixa, (d) forçante radiativa efetiva calculada com a temperatura dos oceanos fixa. Adaptação de HANSEN et al. (2005) realizada por IPCC (2013).

O sexto relatório de avaliação (ou AR6, de *Assessment Report 6*, do inglês) produzido pelo IPCC indica uma forçante radiativa efetiva devido às interações entre aerossóis e nuvens ( $EFR_{aci}$ , de *Effective Radiative Forcing due to Aerosol-Cloud Interactions*) negativa ( $ERF_{aci} = -1.3 \pm 0.7 \text{ W/m}^2$ ) que, segundo um nível de confiança alto, contribui de 75% a 80% para as estimativas atuais das forçantes efetivas devido ao efeito total do aerossol (FORSTER et al., 2021). Isso mostra a importância que as interações entre aerossóis e nuvens têm na quantificação dos efeitos dos aerossóis sobre a radiação atmosférica, sendo tema recorrente em estudos que

buscam avaliar o papel que os ajustes de nuvens devido a alterações na quantidade de aerossóis antropogênicos têm sobre o clima (DAGAN et al., 2015).

### **1.3 - Nuvens e aerossóis atmosféricos**

Os aerossóis atmosféricos consistem em um conjunto de partículas sólidas ou líquidas em suspensão na atmosfera, as quais possuem diferentes formas, tamanhos, composições químicas e propriedades físicas (SEINFELD & PANDIS, 2016). A maioria dessas partículas não é visível a olho nu, porém, devido às concentrações extremamente elevadas na atmosfera, é possível perceber seu efeito coletivo em dias secos, por exemplo. Por esta razão, é usual caracterizar fisicamente e quimicamente uma população de aerossol em vez de estudar as partículas individualmente (BOUCHER, 2015).

As propriedades dos aerossóis são determinadas pelas fontes emissoras e pelos processos de formação das partículas, as quais podem ter origem natural (ressuspensão de poeira do solo, spray marinho, emissões biogênicas, erupções vulcânicas, dentre outros) ou antrópica (emissões de fumaça por indústrias, veículos automotivos e queimadas, por exemplo). As partículas podem ser divididas, de acordo com a maneira que são introduzidas na atmosfera, em dois grupos. O primeiro grupo é o dos aerossóis primários, que são aqueles emitidos diretamente na atmosfera em forma de partículas. Nesse grupo podemos incluir os aerossóis produzidos pelos oceanos, a poeira terrestre carregada pelo vento e as partículas produzidas na ocasião de uma combustão incompleta, por exemplo (BOUCHER, 2015). O segundo grupo é o dos aerossóis secundários, que são formados na atmosfera a partir de transformações e reações físico-químicas de gases precursores (CHARLSON & HEINTZENBERG, 1995; GENTNER et al., 2017).

O tamanho típico das partículas de aerossol vai de 0,001 a ~50 micrômetros ( $\mu\text{m}$ ) e, de acordo com o diâmetro, os aerossóis podem ser classificados como pertencentes às modas grossa ou fina. A primeira dessas é formada pelas partículas de diâmetros maiores que 2,5  $\mu\text{m}$ , enquanto a moda fina abrange partículas com diâmetros abaixo deste valor (Figura 3). A moda fina, por sua vez, é subdividida em moda de nucleação (diâmetros menores que ~0,1  $\mu\text{m}$ ), núcleos de Aitken e moda de acumulação (partículas com diâmetros entre ~0,1  $\mu\text{m}$  e 2,5  $\mu\text{m}$ ), região que inclui as partículas que apresentam a maior probabilidade de serem transportadas a longas

distâncias (PÖSCHL et al., 2010). As partículas pertencentes à moda de acumulação são formadas pela coagulação de diversos núcleos menores ou então produzidas diretamente durante processos de combustão, e as da moda grossa são produzidas predominantemente pela erosão mecânica da superfície terrestre ou marinha ou então através de emissão pela própria vegetação, caso em que os aerossóis são chamados de *biogênicos primários* (MARTIN et al., 2010).

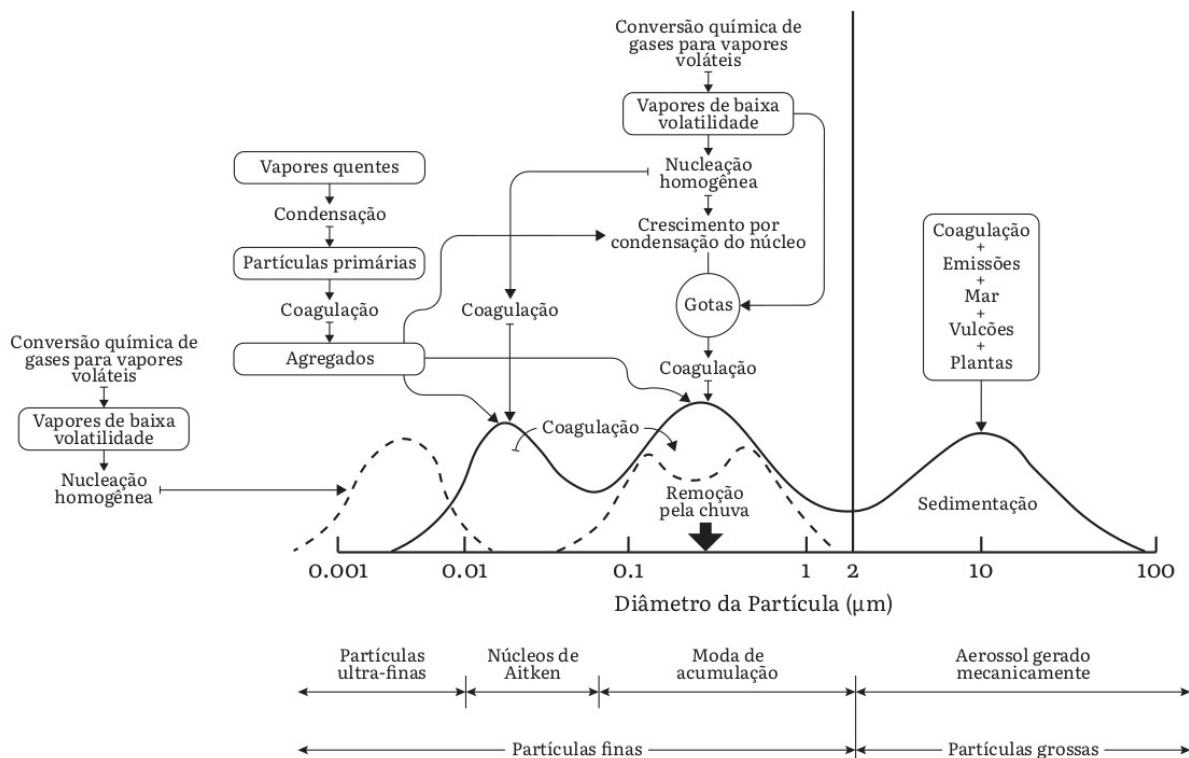


Figura 3 - Distribuição de tamanhos, processos de produção, transformação e remoção das partículas de aerossol atmosférico (adaptado de SEINFELD & PANDIS, 2016).

O tempo de residência dos aerossóis na atmosfera depende das suas propriedades físicas e químicas, das interações com outros aerossóis e também das interações com as nuvens. Esse tempo pode variar de segundos até semanas na troposfera (SEINFELD & PANDIS, 2016). Os aerossóis são removidos através de processos de deposição seca (sedimentação) ou de deposição úmida. No segundo caso, especificamente, os processos podem ocorrer tanto dentro das nuvens (através de formação de gotas ou de cristais de gelo, os hidrometeoros) quanto abaixo delas (eventos de precipitação) (ROGERS & YAU, 1989).



As partículas de aerossol têm um ciclo de vida característico, que envolve diferentes processos de emissão, transformação e deposição (Figura 3). Grande parcela delas é higroscópica e, quando sua composição e tamanho permitem, os aerossóis fazem a nucleação de gotas e de partículas de gelo em nuvens, atuando assim como núcleos de condensação de nuvens e núcleos de gelo (*Cloud Condensation Nuclei*, CCN, e *Ice Nuclei*, IN, respectivamente). Dado isso, o ciclo de vida dos aerossóis está intimamente vinculado ao das nuvens, sendo o processamento de partículas de aerossóis no interior de nuvens um dos principais mecanismos de alterações físico-químicas das próprias nuvens.

Gotas de água líquida e partículas de cristais de gelo formam as nuvens, as quais cobrem, em média, 66% da superfície terrestre (MAO et al., 2019). Segundo a Organização Meteorológica Mundial (ou WMO, de *World Meteorological Organization*), elas podem ser classificadas de acordo com a altura da sua base (*Cloud Base Height* ou CBH), sua morfologia, sua transparência e os seus padrões de desenvolvimento vertical e/ou horizontal (WMO, 2023a). Todos os gêneros de nuvens resultam de combinações entre prefixos e sufixos latinos que descrevem atributos particulares, como “amontoadas” (nuvens *Cumulus*, que apresentam desenvolvimento vertical controlado por convecção de camadas instáveis de ar), “plana” e “horizontal” (*Stratus*, nuvens com elevado desenvolvimento horizontal), “fina”, “suave” e “fibrosa” (*Cirrus*), “de níveis médios” (*Alto*) e “que contém chuva” (*Nimbus*) (WMO, 2023a). No total existem dez gêneros de nuvens (Figura 4), os quais podem ainda ser subdivididos em diferentes espécies e variedades.

Com relação à altura, as nuvens que possuem base acima de 5 km são classificadas como altas, caso das *Cirrus* (Ci), *Cirrocumulus* (Cc) e *Cirrostratus* (Cs). Já as baixas são aquelas que têm base localizada entre o nível do solo e 2 km de altura, enquanto a altura do seu topo (CTH, de *Cloud Top Height*, do inglês) não ultrapassa os 3 km de altitude. Neste grupo estão as *Stratus* (St), as *Stratocumulus* (Sc) e as *Cumulus* (Cu) “de bom tempo”, essas últimas não apresentando precipitação. As *Altostratus* (As) e *AltoCumulus* (Ac) são consideradas médias, pois possuem base localizada entre 2 e 7 km de altura. Nuvens *Nimbostratus* (Ns) e *Cumulonimbus* (Cb) (as que apresentam o maior grau de convecção) possuem sua base localizada a altitudes baixas, porém seu topo pode alcançar altitudes bastante elevadas, até os primeiros quilômetros da estratosfera, como ocorre com as *Cumulonimbus* (WMO, 2023a).

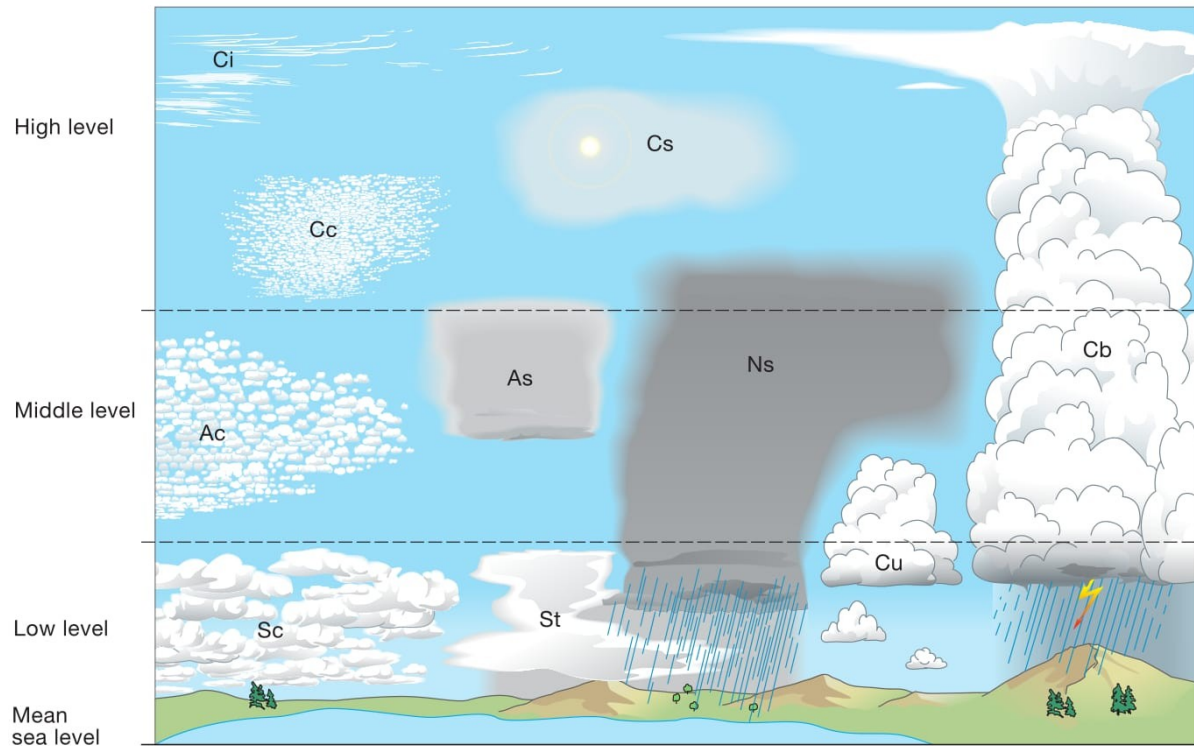


Figura 4 - Classificação (para latitudes médias) dos dez gêneros de nuvens de acordo com seu desenvolvimento vertical na atmosfera (WMO, 2023b). Disponível em <<https://cloudatlas.wmo.int/clouds-definitions.html>>. Acessado em 10/05/2023.

Além das classificações que levam em conta a morfologia e o desenvolvimento vertical, as nuvens também podem ser estudadas de acordo com a sua temperatura média e a fase termodinâmica predominante. As nuvens líquidas ou quentes têm temperatura acima de  $0^{\circ}\text{C}$  em toda sua extensão vertical ( $Z$ ), e contêm apenas gotas de água líquida em seu interior. Já as frias são aquelas com temperaturas médias abaixo de  $0^{\circ}\text{C}$ , podendo conter, além de gelo, gotas de água líquida no estado super-resfriado ou metaestável. No caso de uma nuvem fria possuir simultaneamente gotas super-resfriadas e cristais de gelo, diz-se que ela é uma nuvem mista e, caso seja composta somente por gelo, a nuvem é dita glaciada (WALLACE & HOBBS, 2006).

Além de fazer parte do ciclo hidrológico, as nuvens impactam a redistribuição de energia ao redor do globo. Isso ocorre pois elas refletem, absorvem e transmitem radiação solar (ondas curtas, com  $\lambda$  indo de  $\sim 0,3 \mu\text{m}$  a  $\sim 4 \mu\text{m}$ ) e terrestre (ondas longas, com  $\lambda$  entre  $\sim 4 \mu\text{m}$  e  $\sim 100 \mu\text{m}$ ) e também emitem radiação terrestre, influenciando diretamente o balanceamento radiativo global. O estudo adequado desse balanço radiativo depende não só do conhecimento de propriedades de

aerossóis e nuvens, mas também de conceitos básicos relativos aos processos radiativos na atmosfera. Algumas dessas definições serão apresentadas no capítulo de fundamentação teórica.

## 1.4 - Efeitos direto e semidireto dos aerossóis no clima

A forçante radiativa devido às interações entre a radiação e o aerossol antrópico (ou  $RF_{ari}$ , de *Radiative Forcings due to Aerosol-Radiation Interactions*, em inglês) quando todas as outras variáveis ambientais permanecem não afetadas constitui o que é conhecido na literatura por “efeito direto dos aerossóis no clima”. O *Assessment Report 5 (AR5)* produzido pelo IPCC em 2013 apontou uma estimativa média para a  $RF_{ari}$  igual a  $-0,35$  ( $-0,85$  a  $+0,15$ )  $W/m^2$ , que foi calculada utilizando diversos modelos, dados de sensoriamento remoto e medidas a partir da superfície (IPCC, 2013).

Uma análise mais completa do efeito radiativo devido a aerossóis antropogênicos é levada a cabo quando a resposta a um agente que perturba o clima é conduzida diretamente pelo agente perturbador, independentemente de qualquer mudança na temperatura média global da superfície. Aerossóis muito absorvedores, por exemplo, esquentam o entorno das nuvens, afetando assim as taxas de aquecimento da atmosfera, o que pode aumentar a evaporação e reduzir a nebulosidade (ACKERMAN et al., 2000). No caso de aerossóis absorvedores estarem acima do topo das nuvens, esse aumento na taxa de aquecimento da atmosfera pode fortalecer a inversão de temperatura e reduzir o entranhamento de ar seco no topo das nuvens, o que leva a um aumento da nebulosidade (JOHNSON et al., 2004). Tais mudanças também afetam os processos de formação de precipitação, os quais podem, por sua vez, influenciar propriedades dinâmicas das nuvens de diversas maneiras não lineares (ROSENFELD et al., 2014). Essas alterações em propriedades da atmosfera, as quais são iniciadas por quantidades elevadas de aerossóis altamente absorvedores, acabam afetando o equilíbrio radiativo global, no que é conhecido como “efeito semidireto dos aerossóis no clima”. Quando os efeitos direto e semidireto dos aerossóis são levados em consideração nos cálculos de forçantes radiativas temos as denominadas forçantes radiativas efetivas devido às interações entre radiação e aerossol (ou  $ERF_{ari}$ , do inglês *Effective Radiative Forcing due to Aerosol-Radiation Interactions*). O valor de  $-0,45$  (-

0,95 a +0,05)  $W/m^2$ , estimativa de  $ERF_{ari}$  obtido pelo AR5, foi atualizado para -0,3 (-0,6 a 0,0)  $W/m^2$  em 2021 (IPCC, 2021).

## 1.5 - Efeitos indiretos dos aerossóis no clima

Conforme exposto anteriormente, os aerossóis podem agir como CCN e IN, e perturbações em suas propriedades afetam as características microfísicas e a evolução das nuvens, podendo assim causar desbalanceamento radiativo. O forçamento radiativo resultante de interações entre aerossóis e nuvens tem sido tradicionalmente atribuído a numerosos efeitos indiretos do aerossol no clima, ou seja, efeitos radiativos mediados por nuvens, porém causados por perturbações antrópicas em populações de aerossóis. Esse forçamento pode acontecer para uma quantidade de água líquida (ou LWC, de *Liquid Water Content*, em inglês) constante na nuvem, caso da forçante radiativa devido a interações aerossol-nuvem ( $RF_{aci}$ , de *Radiative Forcing due to Aerosol-Cloud Interactions*). O forçamento radiativo eficaz devido às interações entre aerossóis e nuvens ( $ERF_{aci}$ ), por sua vez, considera diversos ajustes iniciais em variáveis troposféricas, inclusive aquelas relacionadas a nuvens. Dentre os ajustes possíveis estão a taxa de formação de gotas ou cristais de gelo na nuvem, mudanças na intensidade da convecção, eficiência da precipitação, fração de cobertura do céu ( $f_c$  ou CF, de *Cloud Fraction*), tempo de vida das nuvens, conteúdo total de água nas nuvens, além da formação ou supressão de nuvens em áreas remotas devido a circulações alteradas (IPCC, 2013).

HEYN et al. (2017) destacam que as nuvens quentes, que cobrem em média um terço do planeta (LOHMANN et al., 2016), são consideradas o mediador primário do forçamento radiativo do aerossol via interações aerossol-nuvem, e que a maioria dos impactos nas nuvens quentes é causada por meio de mudanças na concentração numérica de gotas da nuvem ( $N_g$ ). Nuvens formadas em ambientes que possuem altas concentrações de CCN têm mais e menores gotas do que aquelas que possuem a mesma quantidade de água, porém formadas em um ambiente mais limpo. A maior quantidade de gotas pequenas aumenta a área de superfície total das gotas e a profundidade óptica da nuvem, a qual eleva o albedo (brilho) da nuvem. Nuvens mais refletivas permitem que menos radiação alcance o solo e, portanto, resfriam a superfície terrestre. Esse mecanismo é conhecido como

“efeito nuvem-albedo”, “primeiro efeito indireto dos aerossóis” ou “efeito *Twomey*” (TWOMEY, 1959; TWOMEY, 1974; TWOMEY, 1977).

Um número elevado de CCN e, portanto, de  $N_g$ , reduz o tamanho médio das gotas de nuvem. Quanto maior o número de gotas pequenas e mais homogênea a distribuição de tamanhos delas, mais partículas de igual tamanho são carregadas pelas correntes de ar dentro da nuvem, diminuindo assim a eficiência das colisões entre gotas de tamanhos diferentes. Isso reduz a formação de precipitação (pois menos gotas atingem o tamanho característico de garoa/chuvisco), aumenta o conteúdo de água líquida e prolonga o tempo de vida médio da nuvem (ALBRECHT, 1989; ROSENFELD, 1999), ou seja, a nuvem permanece por mais tempo na atmosfera. Esse tempo de vida aumentado da nuvem ocasiona então um aumento na quantidade de radiação sendo refletida de volta ao espaço, em um mecanismo conhecido como “efeito do tempo de vida” (“*Lifetime effect*”, em inglês) da nuvem ou então como “segundo efeito indireto dos aerossóis no clima”. WANG et al. (2020) apontam que, por outro lado, um número maior de gotículas de nuvem pode também levar a um maior espectro de tamanho de gotas (“efeito de dispersão” ou “*Dispersion effect*”), fortalecendo a eficiência dos processos de colisão-coalescência na nuvem e reduzindo a sua vida útil, o que poderia resultar em menos radiação sendo refletida de volta ao espaço.

Um outro aspecto a ser considerado no caso de nuvens em ambientes poluídos é que, se o ar acima da camada limite planetária (ou PBL, de *Planetary Boundary Layer*) é seco, o esfriamento pronunciado do topo da nuvem e o aumento de entranhamento desse ar causa evaporação mais rápida das gotas da nuvem. Esse efeito leva à redução no LWC em nuvens formadas em ambientes mais poluídos (ACKERMAN et al., 2004). Além disso, diversos estudos mostraram que, dependendo do tipo de nuvem, condições meteorológicas, dinâmicas e de mecanismos de retroalimentação, a evaporação de gotas pode se tornar o efeito dominante, levando à supressão de precipitação (e.g. STEVENS et al., 1998; LU & SEINFELD, 2005; SMALL et al., 2009). Sendo assim, há diversos mecanismos que governam e modificam a estrutura microfísica das nuvens, muitas vezes com efeitos opostos, os quais demandam mais investigação. Algumas evidências sugerem que os efeitos de aerossóis geralmente ocorrem de maneira que uma perturbação do sistema em um sentido cria um efeito compensatório em outro. De acordo com STEVENS & FEINGOLD (2009), apesar de décadas de pesquisa, estabelecer

relações climaticamente significativas entre aerossóis, nuvens e precipitação é uma tarefa extremamente difícil. Somado a isso, a existência e a importância do efeito sobre o tempo de vida das nuvens têm sido questionadas em estudos de modelagem que encontraram tempos de vida médios estatisticamente similares para nuvens formadas em ambientes limpos e em poluídos (ACKERMAN et al., 2004; JIANG et al., 2006). A magnitude e a extensão dos efeitos de aerossóis sobre o albedo e o tempo de vida das nuvens de água líquida ainda é uma questão em aberto, e os efeitos sobre as nuvens mistas, frias e glaciadas são ainda mais complexos (e.g. FAN et al., 2016; ANSMANN et al., 2019; CORREIA et al., 2021).

## 1.6 - Revisão: $RF_{aci}$ devido a efeitos indiretos dos aerossóis

Os estudos dos efeitos de aerossóis sobre nuvens e a quantificação das forçantes radiativas devido aos efeitos indiretos de aerossóis dependem de diversos fatores, como o efeito indireto avaliado, o tipo de nuvem analisado, as naturezas química e física dos aerossóis, o intervalo espectral considerado (ondas curtas ou longas), a maneira com que as irradiâncias ascendentes no TOA são obtidas (a partir de observações em satélites ou a partir de modelagem em códigos de transferência radiativa), e a natureza da superfície considerada (marítima ou terrestre, sendo que essa última pode ou não ser coberta inteiramente por gelo/neve). Outros fatores também podem ser citados, como a consideração ou não da presença de aerossóis acima, dentro e/ou abaixo das nuvens avaliadas, o modo como as variáveis pertinentes são obtidas (inteiramente a partir de modelos, mistura entre dados modelados e observados, somente dados observados), as características, restrições e qualidades inerentes aos instrumentos utilizados para medição de propriedades de nuvens e de carga/variáveis de aerossóis, a plataforma e a distância relativa entre os instrumentos de medição e os objetos avaliados (observações *in-situ*, sensoriamento remoto a partir do solo ou do espaço), além das abrangências espacial (global ou regional) e temporal (anual, diurna, diária, mensal, etc) consideradas. Em adição a isso, a divisão entre forçantes instantâneas e efetivas aumenta ainda mais a já elevada miríade de estudos passíveis de realização. Dado isso, uma primeira e modesta tentativa de obter uma espécie de “linha do tempo” acerca das forçantes radiativas devido ao primeiro efeito indireto de aerossóis antropogênicos sobre nuvens quentes é aqui apresentada.

No que diz respeito especificamente a formações estratiformes, WETZEL; & STOWE (1999) já destacavam em 1999 que tais nuvens eram afetadas por quantidades crescentes de aerossóis na atmosfera, o que culminaria, no caso de ondas curtas, em forçantes radiativas globais negativas. HAYWOOD & BOUCHER (2000) realizaram no ano de 2000 uma compilação de trabalhos referentes ao estudo do primeiro e segundo efeitos indiretos de aerossóis, concluindo que, em escala global, forçantes entre  $-0.3 \text{ W/m}^2$  e  $-1.8 \text{ W/m}^2$  (médias anuais) seriam ocasionadas devido ao efeito *Twomey* (primeiro efeito indireto de aerossóis) relacionado a aerossóis de sulfato, os quais recebiam maior atenção nos estudos de forçantes radiativas realizados àquela época. DONG & MACE (2003) utilizaram observações a partir de instrumentação em solo para estimar efeitos radiativos de nuvens *stratus* baixas (CTH < 3 km) na região do Alasca, considerando ondas curtas e obtendo médias mensais indo de  $-15.0 \text{ W/m}^2$  a  $-188.1 \text{ W/m}^2$ , porém considerando irradiâncias medidas no nível da superfície, e não no TOA. KEIL & HAYWOOD (2003), por sua vez, utilizaram medidas *in situ* (instrumentação a bordo de avião) realizadas em um dia específico de 2000 para observar camadas de aerossóis (provenientes de queima de biomassa) acima de nuvens *stratus* (nesse caso, com CTH até 1 km) e obter forçantes no TOA indo de  $-42.4 \text{ W/m}^2$  a  $-51.8 \text{ W/m}^2$ , incluindo, além do efeito indireto, o efeito direto de aerossóis. Assim como HAYWOOD & BOUCHER (2000), LOHMANN & FEICHTER (2005) realizaram uma nova pesquisa de compilação e análise de resultados relativos a forçantes globais relacionadas aos dois primeiros efeitos indiretos de aerossóis em nuvens quentes, porém separando os resultados instantâneos dos efetivos. As pesquisas analisadas consideraram modelos de circulação global e valores de irradiâncias no TOA medidos através de instrumentos em satélites. LOHMANN & FEICHTER (2005) concluíram que ambos os efeitos indiretos (efeito *Twomey* e efeito no tempo de vida médio da nuvem) atuam para esfriar o sistema Terra atmosfera, reduzindo a radiação solar líquida na superfície e no TOA. Esses autores também concluíram que as forçantes eram, em geral, mais elevadas para os estudos que se concentraram em regiões continentais em detrimento de áreas oceânicas.

MACE et al. (2006) utilizaram instrumentação em solo em um local específico nos Estados Unidos para obter medidas de diversos tipos de nuvens e então inserir os dados em modelos de transferência radiativa visando a obtenção de valores de forçante radiativa no TOA (média para o ano de 2000) calculados em condições de

céu totalmente coberto ( $f_c = 1$ ). O resultado (para ondas curtas) para nuvens baixas,  $-37.0 \text{ W/m}^2$ , mostra que o módulo obtido em estudos regionais tende a ser maior que aqueles obtidos quando a abrangência das análises é global, apesar de MACE et al. (2006) não terem especificado se o seu resultado corresponde somente ao efeito *Twomey*. LEBSOCK et al. (2008), por sua vez, utilizaram dados oriundos de instrumentação a bordo de satélites para medir características de nuvens quentes sobre o oceano e calcular a média da forçante radiativa global devido especificamente ao efeito *Twomey*,  $-0.42 \text{ W/m}^2$ . Uma combinação entre dados medidos por instrumentos em satélites e modelagem de irradiâncias ascendentes no TOA foi levada a cabo por KIM & RAMANATHAN (2008) para analisar a forçante radiativa instantânea global total, resultando em uma média de  $-47.5 \pm 4.0 \text{ W/m}^2$  (calculada com os dados colhidos entre os anos de 2000 e 2002, não discriminando os tipos de nuvens e considerando somente ondas curtas). O emprego de 10 diferentes modelos de circulação global foi realizado por QUAAS et al. (2009), que consideraram parametrizações globais (áreas continentais) de aerossóis e também de nuvens quentes estratiformes e estimaram irradiâncias no TOA para obter médias anuais entre  $-0.7 \text{ W/m}^2$  e  $-2.3 \text{ W/m}^2$  relacionadas aos efeitos indiretos combinados de aerossóis.

Além dos conceitos de forçante instantânea e efetiva já evidenciados ao longo deste texto, CHEN et al. (2014) apresentaram os conceitos de efeitos radiativos (de aerossóis em nuvens) “intrínsecos” e “extrínsecos”, os quais correspondem a mudanças de albedo (das nuvens) causadas por: variações no LWP e na distribuição numérica de gotas (efeito intrínseco); variações na  $f_c$  (efeito extrínseco). Esses autores utilizaram então uma combinação de dados oriundos de satélites e modelos colhidos (ou configurados, no caso de modelagem) entre 2006 e 2011 para estimar médias de forçantes radiativas instantâneas intrínsecas e extrínsecas globais de camadas de nuvens quentes sobre o oceano, obtendo valores iguais a  $-0.49 \pm 0.33 \text{ W/m}^2$  e  $-0.46 \pm 0.31 \text{ W/m}^2$ , respectivamente. O resultado anterior relativo à componente intrínseca (que inclui o primeiro efeito indireto de aerossóis) é bastante próximo ao obtido ( $-0.36 \pm 0.21 \text{ W/m}^2$ ) para nuvens estratiformes por CHRISTENSEN et al. (2016), os quais utilizaram conjuntos de medidas semelhantes aos empregados por CHEN et al. (2014). CHRISTENSEN et al. (2017) mais uma vez utilizaram medidas (neste caso, de 2002 a 2012) provenientes de instrumentos a bordo de satélites para atualizar os valores anteriores e diminuir as incertezas de



forçantes intrínsecas e extrínsecas globais relacionadas a nuvens quentes ( $-0.49 \pm 0.18 \text{ W/m}^2$  e  $-0.60 \pm 0.24 \text{ W/m}^2$ , respectivamente) sobre o oceano, além de apontar as dificuldades relacionadas à observação simultânea de *pixels* de nuvens e aerossóis próximos a partir do sensoriamento remoto orbital. As estimativas de forçante apresentadas por CHEN et al. (2014), CHRISTENSEN et al. (2016), e CHRISTENSEN et al. (2017) correspondem a áreas oceânicas. HASEKAMP et al. (2019) empregaram uma nova técnica de observação de variáveis de aerossol a partir de satélites para derivar uma forçante radiativa global efetiva relacionada aos efeitos indiretos de aerossóis em nuvens quentes entre  $-0.84 \text{ W/m}^2$  e  $-1.72 \text{ W/m}^2$  para regiões continentais, de certo modo corroborando a conclusão de (LOHMANN & FEICHTER (2005) de que forçantes calculadas a partir de medidas relativas a áreas continentais apresentam maiores módulos que aqueles vinculados a regiões oceânicas.

As forçantes radiativas globais devido aos efeitos radiativos intrínsecos de diversas plumas/rastros provenientes de diferentes fontes de aerossóis (vulcões, queimadas, indústrias e queima de combustível fóssil em navios) em nuvens *stratus* e *cumulus* líquidas foram avaliadas separadamente por TOLL et al. (2019), os quais utilizaram medidas produzidas por sensoriamento remoto a bordo de satélites e concluíram que os ajustes devido a variações no LWP se cancelavam, fazendo com que a porção relativa ao efeito *Twomey* ( $-0.52 \text{ W/m}^2$ ) correspondesse a praticamente 100% da  $RF_{aci}$  de nuvens quentes. MCCOY et al. (2020) apontaram que, no caso de estudos que utilizam modelos climáticos de circulação global, a maior causa de incerteza nas estimativas de forçante radiativa (direta e indireta) de aerossóis reside na inferência que deve ser realizada para derivar a concentração numérica de aerossóis ( $N_a$ ) característica e representativa do período pré-industrial (por volta de 1850). Esses autores contornaram essa dificuldade utilizando uma combinação de modelagem e de observações de  $N_a$  para obter médias referentes à área oceânica nos hemisférios norte e sul e considerar os valores obtidos como representativos dos estados atmosféricos (globais) perturbado e de referência, respectivamente. As forçantes instantâneas devido ao efeito *Twomey* causado pelas diferenças de  $N_a$  em nuvens líquidas com CTH até 3.2 km acima da superfície oceânica foram então examinadas, resultando em valores indo de  $-0.6$  a  $-1.2 \text{ W/m}^2$ . Aproximadamente como realizado por MCCOY et al. (2020), DIAMOND et al. (2020) utilizaram uma abordagem que combinou dados modelados e observados (estes últimos, através de

instrumentação em satélites) entre 2003 e 2015 para avaliar diferenças de  $N_a$  entre os hemisférios norte e sul, assim como estimar forçantes radiativas instantâneas e efetivas devido ao efeito indireto de aerossóis (provenientes de queima de combustível em navios) sobre nuvens *cumulus* e *stratus* baixas localizadas sobre o oceano e o continente. As forçantes instantâneas relacionadas conjuntamente a esses dois tipos de nuvens e devido especificamente ao primeiro efeito indireto foram de  $-0.69$  ( $-0.99$  a  $-0.44$ )  $W/m^2$ ,  $-0.45$  ( $-0.67$  a  $-0.29$ )  $W/m^2$  e  $-0.23$  ( $-0.37$  a  $-0.14$ )  $W/m^2$  para médias globais (incluindo oceano e continente), médias somente sobre o oceano e médias somente sobre o continente, respectivamente.

JIA et al. (2021) compararam estimativas de forçantes instantâneas devido ao primeiro efeito indireto de aerossóis ( $IRF_{aci}$ ) obtidas através de conjuntos de dados oriundos de observações em satélites e através de parametrizações em modelos de circulação global e indicaram que os resultados baseados em satélites eram consistentemente menores que aqueles derivados a partir de modelagem. Esses autores exprimiram que a discrepância nas estimativas de  $IRF_{aci}$  ocorre devido ao descarte artificial de cenários (com valores elevados de  $f_c$ ) que comumente é realizado em medidas baseadas em satélites e que, ao considerar tais eventos, as estimativas de  $IRF_{aci}$  podem aumentar em até 133% para nuvens localizadas sobre áreas continentais. GRYSPEERDT et al. (2023) também exibiram a importância das diferenças existentes entre as estimativas de  $IRF_{aci}$  originadas através de modelagens e através de observações orbitais, indicando que tais discrepâncias são reduzidas quando os comportamentos e características de aerossóis e nuvens nas condições de atmosfera mais limpa (com aerossóis “de fundo” ou “de *background*”) são melhor observados, estudados e parametrizados.

WALL et al. (2023) utilizaram novamente uma combinação de dados oriundos de modelagem (gases de efeito estufa, aerossóis e gases precursores entre 1850 a 2014) e de satélites (entre 2003 e 2020, médias mensais) para recalcular estimativas das componentes intrínsecas e extrínsecas de forçantes (somente para ondas curtas) instantâneas globais de camadas de nuvens quentes sobre o oceano. Os valores obtidos ( $-0.77 \pm 0.25$   $W/m^2$  devido ao efeito *Twomey* e  $-1.02 \pm 0.43$   $W/m^2$  relativo aos ajustes de  $f_c$ , respectivamente) são mais negativos que aqueles derivados por CHEN et al. (2014), CHRISTENSEN et al. (2016) e CHRISTENSEN et al. (2017), fazendo com que WALL et al. (2023) concluíssem que a importância da componente vinculada aos ajustes de  $f_c$  é maior do que até o momento acreditado.

Apesar da coleção de trabalhos aqui realizada mostrar que grande parte das pesquisas referentes à obtenção e à análise de  $RF_{aci}$  e  $ERF_{aci}$  se concentra na escala global, alguma atenção têm sido dada, mais recentemente, à escala regional (e.g. MARSING et al. (2023); HERBERT & STIER (2023); WANG et al. (2023)). WANG et al. (2023), por exemplo, utilizaram dados de diversas características de nuvens obtidos (entre 2013 e 2019) através de sensoriamento remoto baseado no solo em uma região específica da China continental para construir modelos de nuvens de diversos tipos e parametrizá-los em um código de transferência radiativa na atmosfera para então calcular estimativas diurnas, mensais e anuais de forçantes radiativas vinculadas a cada tipo de nuvem, obtendo uma média anual igual a  $-5.3 \text{ W/m}^2$  referente (somente ondas curtas, irradiâncias simuladas no TOA) a uma camada totalmente nublada ( $f_c = 1$ ) constituída somente de nuvens líquidas. HERBERT & STIER (2023), por sua vez, lançaram mão de 17 anos (2012 a 2019) de medidas (AOD, propriedades de nuvens, precipitação, conteúdo integrado de vapor d'água e fluxos radiativos no TOA) colhidas por instrumentação a bordo de satélites sobre a bacia Amazônica e durante o período diurno nos meses mais influenciados por altas concentrações de aerossóis originados por queima de biomassa. Os resultados obtidos por esses autores mostraram que altas concentrações deste tipo de aerossol exercem uma grande influência sobre o comportamento diurno de propriedades do campo de nuvens na região. A cobertura de nuvens *cirrus* e as respostas de propriedades de nuvens baixas à pluma de queimadas resulta em um aumento pronunciado do fluxo de radiação ascendente no TOA, o qual pode originar forçantes (ondas curtas) instantâneas totais capazes de atingir os  $-50 \text{ W/m}^2$  para um AOD igual à unidade.

Conforme evidenciado ao longo deste tópico, grande parcela dos estudos supracitados buscou quantificar e analisar  $RF_{aci}$  e  $ERF_{aci}$  vinculadas a nuvens estratiformes sobre o oceano, nem sempre com o foco no primeiro efeito indireto de aerossóis antropogênicos. Além disso, somente HERBERT & STIER (2023) lidaram especificamente com  $IRF_{aci}$  vinculadas a nuvens quentes na Amazônia, o que foi realizado a partir de dados obtidos a partir de sensoriamento remoto orbital. Isso mostra que a investigação de forçantes instantâneas devido ao efeito *Twomey* vinculado a nuvens quentes sobre a floresta amazônica consiste em um campo de estudo ainda pouco explorado, justificando assim a existência da presente pesquisa.

Este Capítulo apresentou a motivação e o contexto científico no qual este trabalho está inserido. A partir daqui, a tese divide-se conforme elencado a seguir: o Capítulo 2 evidencia os objetivos principal e específicos que devem ser atingidos pelo estudo, enquanto os Capítulos 3 e 4 apresentam o arcabouço teórico e a metodologia utilizados para atingir tais objetivos, respectivamente. O Capítulo 5, por sua vez, exhibe os resultados obtidos, enquanto o sexto e último apresenta as conclusões alcançadas.

## Capítulo 2 - Objetivos

O principal objetivo deste trabalho consiste em obter estimativas localizadas de forçantes radiativas instantâneas devido ao primeiro efeito indireto de aerossóis antropogênicos ( $IRF_{aci}$ ) vinculado a nuvens quentes baixas na Amazônia. Para alcançar este objetivo, as seguintes questões devem ser respondidas:

- i. De que maneira ocorre a variabilidade diária nas concentrações de aerossóis durante os períodos de medida nos anos de 2014 e 2015 na área de estudo? A partir das técnicas empregadas é possível identificar e caracterizar os diferentes cenários de disponibilidade de aerossóis na região?*
- ii. De que modo obter os parâmetros microfísicos necessários para que seja realizada a modelagem de nuvens quentes influenciadas por diferentes quantidades de aerossóis? Há possibilidade de construir modelos de nuvens que reflitam essa influência?*
- iii. Quais são as considerações mais importantes na escolha do estado de referência atmosférico quando do cálculo de forçantes radiativas devido ao primeiro efeito indireto dos aerossóis? Uma vez que essa escolha envolve algum grau de arbitrariedade, como se comportam, para as diferentes referências e escalas de tempo, as estimativas de  $IRF_{aci}$  obtidas?*
- liii. As estimativas finais de  $IRF_{aci}$  vinculadas a nuvens quentes na Amazônia indicam, em média, o resfriamento da superfície terrestre? Como se dá a sensibilidade de tais forçantes em cenários de atmosfera mais e menos poluída por aerossóis antropogênicos?*



## Capítulo 3 - Fundamentação Teórica

Os efeitos indiretos de aerossóis antropogênicos sobre o balanceamento radiativo são a maior fonte de incerteza acerca da influência humana sobre o sistema climático global (IPCC, 2021), o que eleva a demanda por conhecimento nessa área. Este Capítulo tem o objetivo de apresentar conceitos e definições concernentes ao estudo de radiação atmosférica, como a extinção de radiação por constituintes atmosféricos e a equação (em 1 dimensão) de transferência radiativa.

### 3.1 - Radiação atmosférica

Radiação é emissão ou propagação de energia na forma de ondas eletromagnéticas. Qualquer corpo que tenha temperatura acima do zero absoluto (zero Kelvin) emite radiação. A esta energia  $Q$ , propagada na forma de fótons, são relacionados o comprimento de onda  $\lambda$  e a frequência de oscilação  $\nu$ . Por convenção os diferentes valores de  $\lambda$  da radiação são divididos de acordo com a quantidade de energia carregada pela onda daquele  $\lambda$  específico. O conjunto total de valores de  $\lambda$  é denominado espectro eletromagnético (Figura 5), sendo que o Sol emite radiação em praticamente todo o seu domínio. Apenas 1% do total emitido pelo Sol é constituído por raios-X, raios Gama, infravermelho térmico (3500 nm a 1 mm), micro-ondas e ondas de rádio (LIOU, 2002). O restante dessa energia é dividido entre os intervalos do ultravioleta, do visível ( $\lambda$  de ~380 nm a ~700 nm) e do infravermelho próximo, esse último compreendendo comprimentos de onda entre 780 e 3500 nm. A maioria da radiação emitida pelo Sol apresenta  $\lambda$  menores que 4  $\mu\text{m}$ , e por isso a radiação solar também é conhecida como “radiação de onda curta”. Ao atingir o topo da atmosfera terrestre (TOA) a radiação proveniente do Sol passa a interagir significativamente com os componentes atmosféricos, sendo necessário então conhecer as principais grandezas radiométricas utilizada nesse campo de estudo.

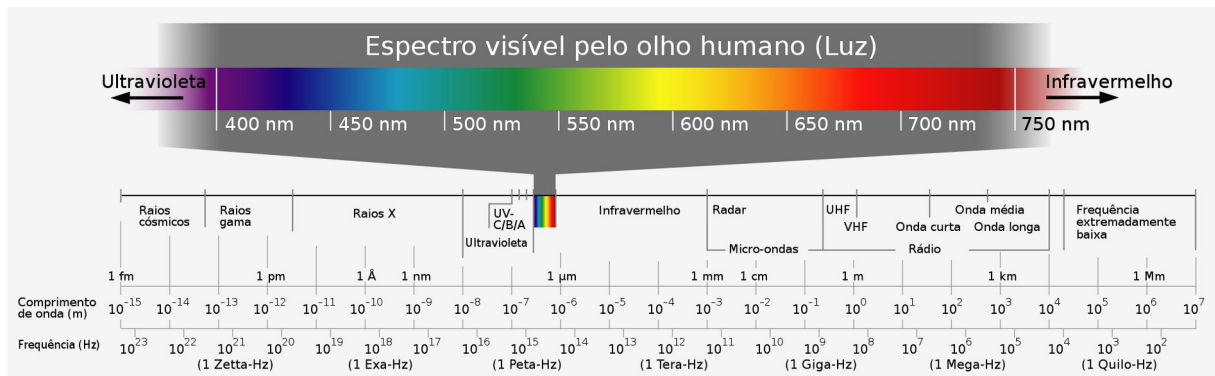


Figura 5 - O espectro eletromagnético em termos de comprimento e frequência de onda. Em destaque a região do espectro visível (Horst Frank, Jailbird, Alebergen, CC BY-SA 3.0 <<https://creativecommons.org/licenses/by-sa/3.0>>, via Wikimedia Commons). Imagem disponível em <<https://commons.wikimedia.org/w/index.php?curid=18122584>>. Acessado em 10/05/2023.

### 3.1.1 - Grandezas radiométricas básicas

Para analisar o campo de radiação que atinge o TOA é necessário considerar a quantidade de energia radiante contida em um elemento infinitesimal de um ângulo sólido. Lembrando que em um espaço bidimensional um arco de comprimento  $L$  sobre um círculo de raio  $R$  corresponde a um ângulo  $\alpha$  através da relação  $\alpha = L/R$ , o equivalente em um espaço tridimensional é o ângulo sólido  $\Omega$ , que corresponde a uma superfície de área  $\sigma$  sobre uma esfera de raio  $R$  (equação 3.1).

$$\Omega = \frac{\sigma}{R^2} \tag{3.1}$$

A unidade do ângulo sólido é o esterradiano (sr). Para uma esfera de raio  $R$  centrada em  $O$ , com um ponto qualquer sobre sua superfície denotado através das coordenadas polares esféricas  $\theta$  (ângulo zenital) e  $\varphi$  (ângulo azimutal), a área infinitesimal na superfície da esfera é dada pela equação 3.2.

$$d\sigma = (R d\theta)(R \sin(\theta) d\varphi) = R^2 \sin(\theta) d\theta d\varphi \tag{3.2}$$



Utilizando as equações 3.1 e 3.2 obtemos o ângulo sólido infinitesimal mostrado na equação 3.3 que, integrada entre 0 e  $\pi$  para  $\theta$  e entre 0 e  $2\pi$  para  $\varphi$ , resulta no valor  $4\pi$ , o ângulo sólido definido por uma esfera.

$$d\Omega = \frac{d\sigma}{R^2} = \sin(\theta) d\theta d\varphi \quad (3.3)$$

De posse do  $d\Omega$  é possível definir as quantidades radiométricas básicas utilizadas no estudo dos processos radiativos na atmosfera. A primeira destas grandezas é o fluxo radiativo ou potência radiante  $\Phi = dQ/dt$ , de unidade J/s ou *Watt*. Integrando  $\Phi$  num intervalo pequeno de tempo obtemos a energia radiante  $Q$  mostrada na equação 3.4.

$$Q = \int_{\Delta t} \phi dt \quad (3.4)$$

A razão entre  $d\Phi$  e  $d\Omega$  dá origem à intensidade radiante  $I$  (medida em W/sr, equação 3.5) de uma fonte pontual em uma dada direção do espaço:

$$I = \frac{d\phi}{d\Omega} \quad (3.5)$$

A irradiância  $F$  (equação 3.6) em um ponto qualquer de uma superfície é expressa em W/m<sup>2</sup>, ou seja, é resultado da razão entre o fluxo radiativo incidente sobre uma superfície infinitesimal que contém o ponto e a área  $dA$  deste elemento de superfície.

$$F = \frac{d\phi}{dA} \quad (3.6)$$

A quantidade de radiação recebida ou emitida por um ponto em uma determinada direção é denotada pela radiância  $L$ , de dimensão W/m<sup>2</sup>.sr (LIOU, 2002). Essa grandeza é dada pelo quociente entre a intensidade radiante observada

em um elemento de superfície e a área da projeção ortogonal desta superfície infinitesimal num plano perpendicular à direção considerada (equação 3.7).

$$L = \frac{dI}{\cos(\theta)dA} = \frac{d^2\phi}{\cos(\theta)d\Omega dA} \quad (3.7)$$

As grandezas obtidas pelas equações anteriores não levam em consideração a frequência  $\nu$ , o número de onda ou o  $\lambda$  da radiação incidente. No caso de levarmos em conta uma destas características as expressões obtidas serão ditas *espectrais*. Por exemplo, se desejarmos estudar a radiância para um determinado comprimento de onda  $\lambda$  contido num intervalo  $\lambda + d\lambda$ , obteremos a *radiância espectral monocromática*  $L_\lambda$  mostrada na equação 3.8, com unidades de  $W/m^2 \cdot sr \cdot \mu m$ .

$$L_\lambda = \frac{dL}{d\lambda} \quad (3.8)$$

Utilizando a equação 3.6 e a segunda parte da equação 3.7 é possível reescrever a equação 3.7, isolar  $dF$  no resultado e, através de integração, obter uma nova maneira de escrever a irradiância  $F$  (equação 3.9):

$$L = \frac{dF}{\cos(\theta)d\Omega} \Rightarrow F = \int_{2\pi} L \cos(\theta) d\Omega \quad (3.9)$$

A dependência direcional da radiância é relevante ao avaliar o fluxo de energia radiativa. No entanto, é possível considerar o fluxo radiativo sem essa dependência através do conceito de irradiância total incidente em um hemisfério (equação 3.10), desde que sejam conhecidas as radiâncias  $L(\theta, \varphi)$  incidentes em todas as direções nesse hemisfério (YAMASOE & CORRÊA, 2016).

$$F = \int_0^{\pi/2} \cos(\theta) \sin(\theta) d\theta \int_0^{2\pi} L(\theta, \varphi) d\varphi \quad (3.10)$$

A taxa de energia solar integrada em todo o espectro eletromagnético, recebida sobre uma unidade de área no TOA perpendicular à direção do Sol, à distância média Terra-Sol ( $d'$ ), é definida como a *irradiância solar total* ou então *constante solar*  $F_0$ , que vale  $1360.8 \pm 0.5 \text{ W/m}^2$  (KOPP & LEAN, 2011). Essa taxa varia de acordo com a distância entre a Terra e o Sol e de acordo com a própria atividade solar. Para uma distância  $d$  qualquer entre a Terra e o Sol é possível então determinar  $F$  no TOA segundo a fórmula 3.11 (YAMASOE & CORRÊA, 2016).

$$F(d) = \left(\frac{d'}{d}\right)^2 F_0 \quad (3.11)$$

Com as expressões obtidas anteriormente, em especial a irradiância  $F(d)$  e a radiância espectral  $L_\lambda$ , podemos estudar o comportamento da radiação emitida ou recebida por diferentes corpos a uma determinada temperatura  $T$ , sendo que a dependência de  $L$  com relação a  $T$  é obtida através da aproximação de corpo negro.

### 3.1.2 - Radiação de corpo negro

Um corpo negro (CN ou então BB, de *Black Body*, do inglês) pode ser entendido como um objeto, em equilíbrio termodinâmico, com uma pequena cavidade em uma de suas paredes isolantes. Ao adentrar esse furo a radiação incidente sofre inúmeras reflexões, de modo a ser totalmente absorvida pela cavidade. A cada encontro com outras porções das paredes isolantes a radiação é enfraquecida (através de absorção) e também é fortalecida por uma nova emissão. Após esse mecanismo ocorrer inúmeras vezes os processos de absorção e emissão atingem uma condição de equilíbrio que depende da temperatura das paredes do corpo. Dessa forma, além de absorver toda a radiação incidente, um corpo negro também emite a *radiação de corpo negro*, que é função apenas do comprimento de onda, da temperatura e da área do corpo negro analisado (LIOU, 2002).

A radiância espectral emitida por um CN a uma temperatura  $T$  é descrita pela função de Planck (equação 3.12), onde  $h = 6.626 \times 10^{-34} \text{ J.s}$  é a constante da Planck,  $c = 2.99793 \times 10^8 \text{ m/s}$  é a velocidade da luz no vácuo e  $k = 1.3806 \times 10^{-23} \text{ J/K}$  é a constante de Boltzmann (EISBERG & RESNICK, 1979).

$$B_{\lambda}(T) = \frac{2hc^2}{\lambda^5 [e^{hc/\lambda kT} - 1]} \quad (3.12)$$

A radiância total emitida por um corpo negro é obtida através da integração da função de Planck em  $d\Omega$  e ao longo de todos os  $\lambda$  do espectro eletromagnético, o que resulta na formulação dada pela equação 3.13.

$$B_{total}(T) = \frac{2\pi^4 K^4}{15h^3 c^2} T^4 \quad (3.13)$$

Uma vez que a radiação emitida por um CN é isotrópica, é possível calcular a irradiância  $\epsilon_{CN}$  de um CN integrando a equação 3.12 ao longo de uma superfície esférica. O resultado (equação 3.14) é dado pela Lei de Stefan-Boltzmann, onde  $\sigma = (5.6696 \pm 0.0025) \times 10^{-8} \text{ W/m}^2\text{K}^4$  é a constante de Stefan-Boltzmann (EISBERG & RESNICK, 1979).

$$\epsilon_{CN} = \sigma T^4 \quad (3.14)$$

As leis da radiação de corpo negro são essenciais para o entendimento dos processos de absorção e emissão de radiação na atmosfera e, no caso das nuvens, por exemplo, a aproximação por corpos negros é válida sob condições físicas específicas (KAUFMAN & NAKAJIMA, 1993). A interação da radiação com os aerossóis e as nuvens depende de diversas características microfísicas, como o  $\lambda$  da radiação incidente, o formato das partículas e a distribuição numérica de tamanho destas.

### 3.1.3 - Extinção de radiação por constituintes atmosféricos

Ao atingir o TOA, um feixe de radiação solar encontra em seu caminho os componentes atmosféricos, como as nuvens e os aerossóis. Isso resulta em processos de extinção e/ou atenuação da radiação, o que pode ocorrer através de absorção e/ou espalhamento. No espalhamento, o feixe de radiação solar é desviado da sua orientação incidente para outras direções, sendo a distribuição

angular desse desvio dependente do raio  $r$  da partícula espalhadora e do  $\lambda$  do feixe incidente. A relação entre essas duas variáveis é descrita pelo parâmetro de tamanho  $\chi$  (equação 3.15), que estabelece o regime de espalhamento para uma determinada configuração de  $r$  e  $\lambda$  (Figura 6).

$$\chi = \frac{2\pi r}{\lambda} \tag{3.15}$$

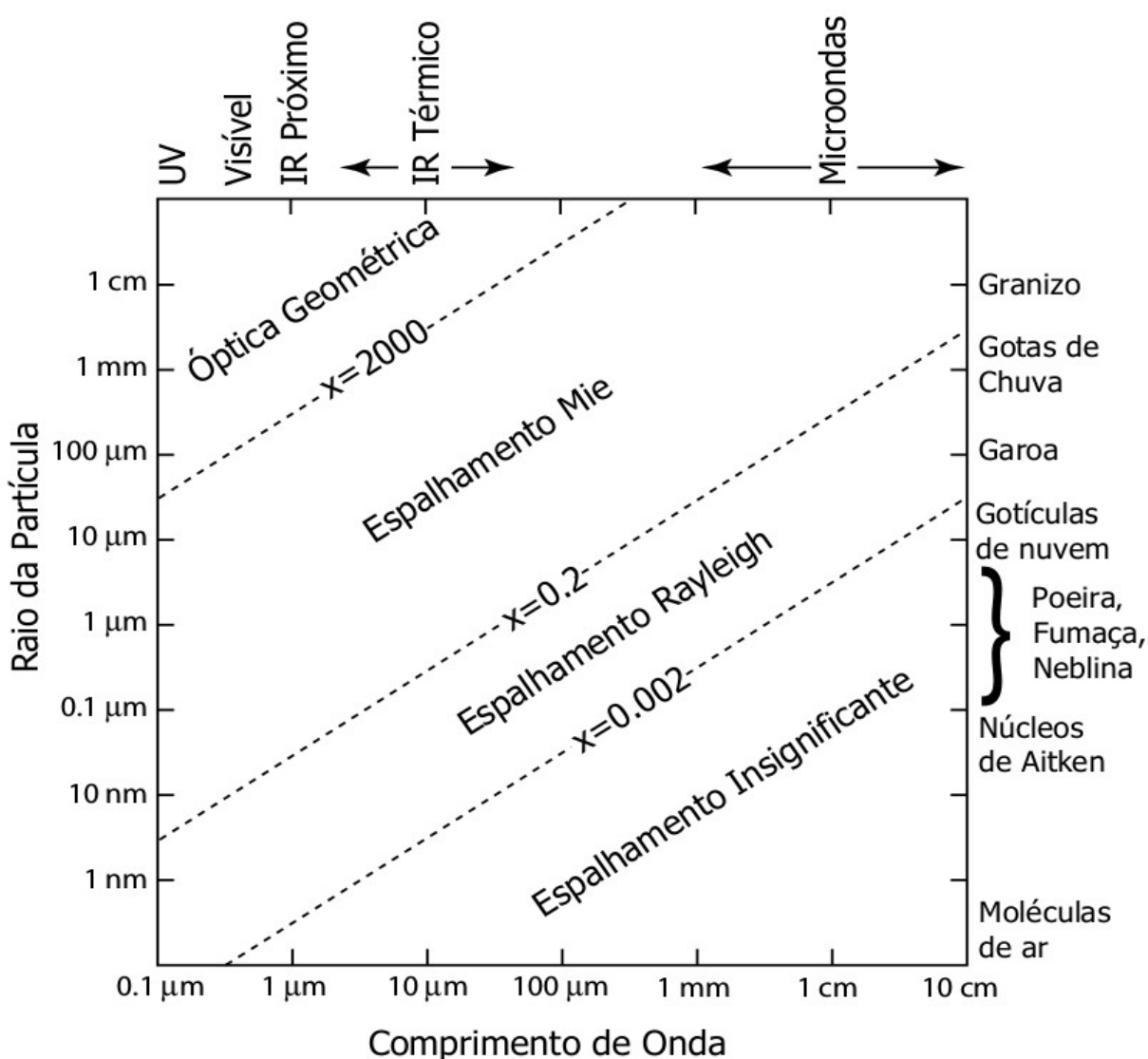


Figura 6 - Regiões de regime de espalhamento em função do parâmetro de tamanho  $\chi$ , o qual relaciona o raio da partícula espalhadora e o comprimento de onda incidente sobre ela (adaptação de SEINFELD & PANDIS, 2006, realizada por SENA, 2013).

A Figura 6 mostra que a interação de partículas de poeira, fumaça e gotas de nuvens com a radiação eletromagnética, em especial no espectro solar, é descrita pela solução Mie. Tal abordagem foi desenvolvida em 1908 por Gustav Mie e utiliza as equações de Maxwell para descrever a radiação espalhada na interação entre luz e partículas esféricas (WRIEDT, 2012), de maneira que a sua formulação explica o espalhamento causado por uma partícula esférica de raio arbitrário  $r$  de valor próximo ou maior que o  $\lambda$  da radiação incidente (YAMASOE & CORRÊA, 2016).

Além de  $\chi$ , as partículas atmosféricas também possuem outro parâmetro importante na descrição de sua interação com a radiação. Trata-se do índice de refração complexo  $n(\lambda)$  (dado pela relação  $n_{\text{Re}}(\lambda) - in_{\text{Im}}(\lambda)$ ), onde a componente real responde pelo espalhamento e a componente imaginária pela absorção. Macroscopicamente, o coeficiente linear de extinção  $\beta(\lambda, s')$  na posição  $s'$  do caminho óptico  $s$ , para partículas de igual índice de refração  $n$ , é dado pela equação 3.16, onde  $\beta(\lambda, s')$  é dado em  $\text{m}^{-1}$ ,  $N_p(r, s')$  é o número de partículas de raio  $r$  por unidade de volume de ar, por intervalo de tamanho ( $\text{m}^{-3}/\mu\text{m}$ ) à posição  $s'$ ,  $\sigma_e(\lambda, s')$  é a seção/área de choque eficaz de espalhamento (equação 3.17) e  $\sigma_a(\lambda, s')$  é a seção/área de choque eficaz de absorção (equação 3.18), sendo essas duas últimas seções descritas pelos respectivos fatores de eficiência  $Q_e$  e  $Q_a$ .

$$\beta(\lambda, s') = [\sigma_e(\lambda, s') + \sigma_a(\lambda, s')] \int_0^{\infty} N_p(r, s') dr \quad (3.16)$$

$$\sigma_e(\lambda, s') = \pi r^2 Q_e[\chi, n(\lambda)] \quad (3.17)$$

$$\sigma_a(\lambda, s') = \pi r^2 Q_a[\chi, n(\lambda)] \quad (3.18)$$

A soma dos fatores de eficiência  $Q_e$  e  $Q_a$  resulta no fator de eficiência de extinção  $Q_{\text{ext}}$ , o qual tende assintoticamente para 2 quando  $\chi$  assume valores maiores que  $\sim 10$  (STEPHENS, 1978), condição que ocorre para tamanhos típicos de gotículas de nuvens quentes.

A fim de descrever os efeitos de atenuação causados por uma população de partículas de diferentes tamanhos presentes em um certo volume de ar a teoria Mie define a profundidade óptica de extinção  $\tau$  (equação 3.19), onde  $\delta$  é a espessura

óptica do meio atravessado e  $\theta_0$  é o ângulo solar zenital (ou SZA, de *Solar Zenith Angle*), formado entre a direção vertical e a orientação de propagação do feixe de radiação incidente.

$$\tau = \delta \cdot \cos(\theta_0) \quad (3.19)$$

A espessura óptica espectral de atenuação  $\delta_\lambda$  mostrada na equação 3.21, por sua vez, é derivada da lei de Beer-Lambert-Bouguer (equação 3.20), a qual relaciona as radiâncias espectrais incidente ( $L_\lambda(0)$ ) e emergente ( $L_\lambda(s)$ ) em um meio homogêneo através de um caminho óptico  $s$  qualquer (LIOU, 2002). Deste modo, ao integrar o coeficiente linear de extinção/atenuação  $\beta_\lambda(s)$  (de notação equivalente  $\beta(\lambda, s')$ ) ao longo de todo o caminho óptico  $s$  e para um determinado  $\lambda$  podemos obter uma estimativa da atenuação causada por um conjunto de gotas presente em uma nuvem, por exemplo.

$$L_\lambda(s) = L_\lambda(0) \exp\left[-\int_0^s \beta_\lambda(s) ds\right] \quad (3.20)$$

$$\delta_\lambda(s) = \int_0^s \beta_\lambda(s) ds \quad (3.21)$$

Para nuvens líquidas assume-se que o número de gotas ( $n_g$ ) de raio  $r$  por intervalo de tamanho segue uma distribuição Gamma (como mostrado na equação 3.22), com parâmetros  $m$  e  $\Lambda$  geralmente determinados empiricamente (MORRISON et al., 2005).

$$n_g(r) = N_0 r^m e^{-(\Lambda r)} \quad (3.22)$$

A partir de  $n_g$  é possível introduzir a definição (STEPHENS, 1978) do raio efetivo ( $r_{\text{eff}}$ , unidades de  $\mu\text{m}$ , equação 3.23) de gotas de nuvens líquidas, além do conteúdo de água líquida (LWC, do inglês *Liquid Water Content*) presente na nuvem. O  $r_{\text{eff}}$  representa a real distribuição de tamanhos das gotas levando em conta que a quantidade de radiação espalhada é proporcional à área de choque das partículas (WYSER, 1998). Já o LWC (equação 3.24, onde  $\rho$  é a densidade da água líquida)

permite a obtenção do conteúdo integrado de água líquida LWP (*Liquid Water Path*, unidades de  $g/m^2$ ), que equivale ao LWC integrado ao longo de toda a extensão vertical  $Z$  da nuvem (equação 3.25) (LIOU, 2002).

$$r_{eff} = \frac{\int_0^{\infty} r^3 n_g(r) dr}{\int_0^{\infty} r^2 n_g(r) dr} \quad (3.23)$$

$$LWC = \frac{4\pi}{3} \rho \int_0^{\infty} r^3 n_g(r) dr \quad (3.24)$$

$$LWP = LWC \int_{base}^{topo} dz = LWC \cdot Z \quad (3.25)$$

Utilizando as equações 3.16, 3.17 e 3.18 na equação 3.21 e considerando a projeção ortogonal da espessura óptica da nuvem na direção vertical obtemos (STEPHENS, 1978) a profundidade óptica da nuvem, COD (*Cloud Optical Depth*, equação 3.26), que representa uma estimativa da fração da radiação que não consegue percorrer (radiação atenuada) certa extensão geométrica da nuvem.

$$COD \equiv \tau_{nuvem} \equiv \tau_d = Z \int_0^{\infty} Q_{ext} \pi r^2 n_g(r) dr \quad (3.26)$$

Considerando a radiação na região visível do espectro, podemos dividir o LWP pela COD e utilizar a definição de  $r_{eff}$  para obter uma relação direta entre a COD de uma nuvem e os raios efetivos das gotículas que constituem o caminho óptico daquela nuvem (equação 3.27). Dessa maneira, dadas duas nuvens com um mesmo LWP, aquela que contém raios efetivos menores teria um COD maior e, conseqüentemente, refletiria mais radiação. No caso de radiação no infravermelho, quanto maior o LWP e quanto menor o  $r_{eff}$ , melhor será a aproximação de corpo negro (YAMASOE & CORRÊA, 2016).

$$\tau_{nuvem} = \frac{3Q_{ext}}{4\rho} \frac{LWP}{r_{eff}} \quad (3.27)$$



Assim como para as gotas de nuvens, as propriedades ópticas dos aerossóis, no caso de interações com a radiação do espectro solar, advém da teoria Mie. Deste modo, também podemos integrar o coeficiente linear de extinção  $\beta_\lambda(s)$  ao longo de todo o caminho óptico  $s$ , obtendo uma estimativa da atenuação causada por um conjunto de aerossóis, a espessura óptica do aerossol (AOT ou *Aerossol Optical Thickness*) (BOUCHER, 2015). Além disso, ao considerar a projeção da AOT na direção vertical obtemos a profundidade óptica do aerossol (*Aerosol Optical Depth* ou AOD), variável descrita pela equação 3.28 e que está relacionada com a quantidade de partículas opticamente ativas na coluna atmosférica, sendo uma grandeza importante para a avaliação dos efeitos radiativos dos aerossóis.

$$AOD_\lambda = AOT_\lambda \cdot \cos(\theta_0) = \int_0^s \beta_\lambda(s) \cos(\theta_0) ds \quad (3.28)$$

Outro parâmetro que diz respeito aos aerossóis é o albedo de espalhamento simples  $\omega_0$  (*Single Scattering Albedo* ou SSA), que representa a capacidade relativa de espalhamento de uma população de aerossóis em relação à atenuação da radiação causada pelo conjunto de aerossóis. O SSA é definido pela razão entre os coeficientes de espalhamento e extinção (equação 3.29), esse último sendo a soma dos coeficientes de espalhamento e absorção. Sendo assim, aerossóis altamente espalhadores possuem SSA próximo de 1, enquanto partículas predominantemente absorvedoras apresentam valores menores, como é o caso do carbono negro ou de fuligem (BC, do inglês *Black Carbon*), um aerossol fortemente absorvedor em todos os comprimentos de onda do espectro visível (BOND et al., 2013).

$$\omega_0(\lambda) = \frac{\beta_e(\lambda)}{\beta(\lambda)} = \frac{\beta_e(\lambda)}{\beta_e(\lambda) + \beta_a(\lambda)} = 1 + \frac{\beta_e(\lambda)}{\beta_a(\lambda)} \quad (3.29)$$

As definições apresentadas são de extrema importância para a confecção deste trabalho. Parâmetros como  $r_{\text{eff}}$  e LWC, por exemplo, fazem parte das variáveis utilizadas na modelagem de nuvens quentes. Tais modelos serão inseridos em um código de transferência radiativa que simula os processos radiativos na atmosfera através da resolução da equação de transferência radiativa (ETR), tema explorado no tópico 3.2.4 a seguir.

### 3.2 - Equação de transferência radiativa (ETR)

Os fundamentos para a derivação da equação de transferência radiativa na atmosfera advém das equações de Maxwell da eletrodinâmica (ver MISHCHENKO, 2002) ou então a partir da equação de transporte/transferência de Boltzmann, que descreve fenômenos de transporte (de carga, energia, partículas, etc) em sistemas sujeitos a gradientes de temperatura e/ou de densidade. No caso de um sistema gasoso atravessado por fótons cuja função de distribuição é dada por  $f(\vec{r}, \hat{n}, \nu, t)$ , por exemplo, a equação de Boltzmann é dada pela formulação 3.30, onde  $\vec{v}$  é a velocidade dos fótons,  $\vec{F}$  é algum campo de força externa agindo sobre eles,  $\nabla_{\vec{r}}$  e  $\nabla_{\vec{p}}$  são os operadores divergente (dos vetores espaço e momento, respectivamente) e  $Q(\vec{r}, \hat{n}, \nu, t)$  representa a taxa de produção/aniquilação de fótons devido a colisões entre os fótons.

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \nabla_{\vec{r}}(\vec{v}f) + \nabla_{\vec{p}}(\vec{F}f) = Q(\vec{r}, \hat{n}, \nu, t) \quad (3.30)$$

A distribuição de fótons varia de acordo com a localização ( $\vec{r}$ ), a direção de propagação ( $\hat{n}$ ), a frequência ( $\nu$ ) e o tempo ( $t$ ), de modo que a equação 3.31 representa o número de fótons com velocidade  $c$  (velocidade da luz) e frequência entre  $\nu$  e  $\nu + d\nu$  que atravessa um elemento de superfície  $dS$  na direção  $\hat{n}$  dentro do ângulo sólido  $d\Omega$  em um intervalo de tempo infinitesimal  $dt$  (STAMNES, 1986):

$$f c \hat{n} \cdot d\vec{S} (d\Omega) (d\nu) (dt) \quad (3.31)$$

Na ausência de efeitos relativísticos tem-se que  $\vec{F}$  é nula, e os fótons se propagam em linhas retas com velocidade  $\vec{v} = c \hat{n}$ . Usando a propriedade mostrada em 3.32 a equação 3.30 pode ser reescrita conforme a equação 3.33.

$$\nabla_{\vec{r}}(\vec{v}f) = f(\nabla_{\vec{r}}\vec{v}) + \vec{v} \cdot (\nabla_{\vec{r}}f) = \vec{v} \cdot (\nabla_{\vec{r}}f) \quad (3.32)$$

$$\frac{\partial f}{\partial t} + c(\hat{n} \cdot \nabla_{\vec{r}})f = Q(\vec{r}, \hat{n}, \nu, t) \quad (3.33)$$

Lembrando que a energia de um fóton é dada pelo produto da constante de Planck pela frequência do fóton, a energia infinitesimal da distribuição de fótons é descrita pela equação 3.34, onde a intensidade dos fótons (equação 3.35) é equivalente à radiância  $L$  e definida de modo que o produto escalar de  $\hat{n}$  com  $dS$  seja dado por  $\cos(\theta)dS$ .

$$dE = I(\vec{r}, \hat{n}, \nu, t) dS \cos \theta (d\Omega)(d\nu)(dt) \quad (3.34)$$

$$I(\vec{r}, \hat{n}, \nu, t) = ch \nu f(\vec{r}, \hat{n}, \nu, t) \quad (3.35)$$

Em situações de estado estacionário (sem variação no tempo) e usando a equação 3.35 a equação 3.33 pode ser reescrita conforme exposto na equação 3.36, que é a equação de transferência radiativa válida para uma geometria qualquer.

$$(\hat{n} \cdot \nabla_{\vec{r}}) I(\vec{r}, \hat{n}, \nu) = h \nu Q(\vec{r}, \hat{n}, \nu) \quad (3.36)$$

Em um sistema de coordenadas cartesiano o primeiro termo (“termo de transição”, igual ao produto escalar entre  $\hat{n}$  e o operador divergente) da equação 3.36 é dado pela equação 3.37, onde  $\hat{n} = (n_x, n_y, n_z)$ ,  $\mu = \cos\theta$  e  $\phi$  é o ângulo azimutal (Figura 7).

$$(\hat{n} \cdot \nabla_{\vec{r}}) = n_x \frac{\partial}{\partial x} + n_y \frac{\partial}{\partial y} + n_z \frac{\partial}{\partial z} = \cos \theta \sqrt{1 - \mu^2} \frac{\partial}{\partial x} + \sin \phi \sqrt{1 - \mu^2} \frac{\partial}{\partial y} + \mu \frac{\partial}{\partial z} \quad (3.37)$$

LIOU (2002) destaca que em muitas aplicações no estudo de transferência radiativa na atmosfera é fisicamente apropriado considerar camadas plano paralelas horizontais e infinitas, de modo que variações de intensidade e parâmetros atmosféricos (como os perfis de temperatura e pressão) sejam permitidas somente na direção vertical. Na aproximação plano paralela da atmosfera não há variações nas direções  $x$  e  $y$ , de maneira que o termo de transmissão é dado pela formulação mostrada na equação 3.38.

$$(\hat{n} \cdot \nabla_{\vec{r}}) = \mu \frac{\partial}{\partial z} \quad (3.38)$$

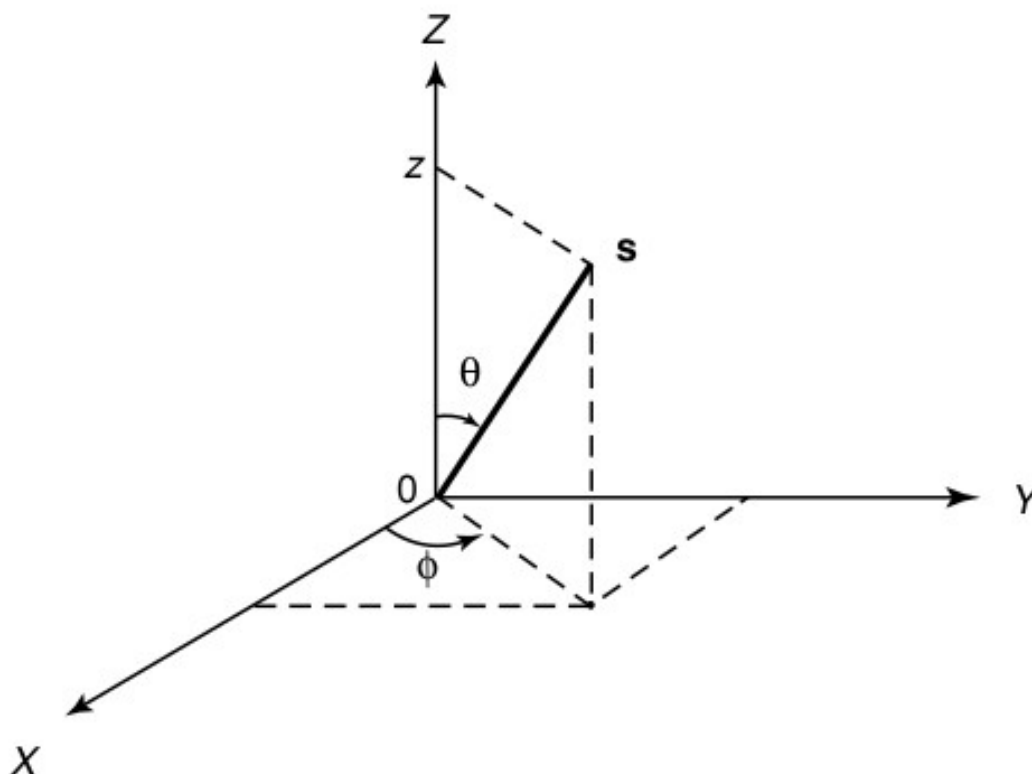


Figura 7 - Geometria para atmosferas plano paralelas, onde  $\theta$  é o ângulo zenital,  $\Phi$  representa o ângulo azimutal e  $\mathbf{s}$  é o vetor posição (LIOU, 2002).

O termo no lado direito da equação 3.36 leva em consideração todos os ganhos e perdas de radiação na direção e frequência de interesse. Para fótons em uma atmosfera planetária esse termo pode ser escrito como mostrado na equação 3.39 (CHANDRASEKHAR, 1960), onde o primeiro termo representa perdas devido à extinção (absorção mais espalhamento) de radiação e o segundo descreve a quantidade de fótons espalhada de todas as outras direções e frequências (ângulos e frequências com superescrito ' representam radiação espalhada). O terceiro termo, por sua vez, fornece a quantidade de radiação térmica emitida no intervalo de frequência de interesse. Isso ocorre pois pode ser assumido que a porção mais baixa da atmosfera terrestre está em equilíbrio termodinâmico local (todas as propriedades termodinâmicas do meio são iguais aos valores referentes ao equilíbrio termodinâmico alcançado à temperatura local  $T$ ), então a radiação emitida é proporcional à função de Planck integrada ao longo desse intervalo (MIHALAS, 1978).

$$\begin{aligned}
h \nu Q(\vec{r}, \hat{n}, \nu) &= h \nu Q(r, \theta, \phi, \nu) = -\beta(r, \nu) I(r, \theta, \phi, \nu) \\
+ \frac{1}{4\pi} \int_0^\infty \beta_e(r, \nu, \nu') &\int_0^{2\pi} d\phi' \int_0^\pi d\theta' p(r, \theta, \phi; \theta', \phi', \nu) I(r, \theta', \phi', \nu') d\nu' \\
&+ \beta_a(r, \nu) B[T(r)]
\end{aligned} \quad (3.39)$$

Ainda com relação à equação 3.39, o termo  $p(r, \theta, \phi; \theta', \phi')$  é a função de fase de espalhamento (total) da radiação incidente. Essa função (equação 3.40) leva em consideração a função de fase de espalhamento de cada partícula espalhadora (equação 3.41), onde o ângulo de espalhamento  $\Theta$  (entre a direção do feixe incidente e a direção do feixe espalhado) é relacionado aos ângulos polar e azimutal através da relação 3.42.

$$p(r, \theta, \phi; \theta', \phi', \nu) = \frac{\sum_i \beta_{e,i}(r, \nu) p_i(\theta, \phi; \theta', \phi', \nu)}{\sum_i \beta_{e,i}(r, \nu)} \quad (3.40)$$

$$p_i(\theta, \phi; \theta', \phi', \nu) = p_i(\cos \Theta, \nu) = \frac{\sigma_{e,i}(\cos \Theta, \nu)}{\int_{4\pi} d\Omega \sigma_{e,i}(\cos \Theta, \nu)} \quad (3.41)$$

$$\cos \Theta = \cos(\theta) \cos(\theta') + \sin(\theta) \sin(\theta') \cos(\phi - \phi') \quad (3.42)$$

A substituição das equações 3.38 e 3.39 na equação 3.36 resulta na formulação final (unidimensional) da equação de transferência radiativa em uma atmosfera plano paralela e em equilíbrio termodinâmico local. Esse resultado, onde o albedo de espalhamento simples ( $\omega_0$ ) é descrito pela equação 3.29, pode ser expresso para um comprimento de onda ou frequência específicos (equação 3.43), equivalendo assim à equação de transferência radiativa monocromática (LIOU, 2002).

$$\begin{aligned}
-\mu \frac{dI(z, \mu, \phi, \nu)}{\beta(z, \nu) dz} &= I(z, \mu, \phi, \nu) - \frac{\omega_0(z, \nu)}{4\pi} \int_0^{2\pi} d\phi' \int_{-1}^1 d\mu' p(z, \mu, \phi, \nu; \mu', \phi', \nu') \\
&I(z, \mu', \phi', \nu') - [1 - \omega_0(z, \nu)] B[\nu, T(z)]
\end{aligned} \quad (3.43)$$



## Capítulo 4 - Instrumentação e Metodologia

Há anos a comunidade científica vem se interessando pela realização de experimentos que buscam caracterizar as complexas interações entre radiação, aerossóis, nuvens e superfície na Amazônia. O interesse científico na região amazônica é explicado pela existência de uma forte alternância na concentração de aerossóis ao longo do ano, com elevado volume durante a época de estiagem (fortemente influenciada pela fumaça emitida na queima de biomassa) e uma das mais baixas concentrações (para áreas continentais) durante a estação chuvosa (ANDREAE et al., 2015). Nas condições mais limpas a concentração de aerossóis na Amazônia é da ordem de 200 a 300 partículas/cm<sup>3</sup>, constituindo um regime atmosférico no qual a formação de nuvens é significativamente limitada pela presença de aerossóis na atmosfera (PÖSCHL et al., 2010). Durante o período de queimadas, quando a concentração pode variar de 15000 a 30000 partículas/cm<sup>3</sup>, a formação de nuvens depende da combinação entre fatores meteorológicos e propriedades de aerossóis (PÖSCHL et al., 2010). Essa alternância entre regimes extremos de disponibilidade de aerossóis, associada a um padrão meteorológico relativamente simplificado, com raras passagens de frentes frias, torna a Amazônia um “laboratório natural” para pesquisas de processos físicos na atmosfera.

Este estudo utiliza medidas obtidas *in situ* e através de sensoriamento remoto da atmosfera na Amazônia. O presente Capítulo evidencia, em um primeiro momento, uma visão geral sobre a campanha GoAmazon 2014/5 (do inglês *Green Ocean Amazon*) (MARTIN et al., 2016), com maior destaque para a caracterização do sítio experimental onde os dados atmosféricos foram colhidos. Logo após é apresentada uma descrição dos materiais e dos instrumentos responsáveis pela aquisição desses conjuntos de dados. Na sequência há a exposição das ferramentas e dos métodos utilizados para a identificação e a caracterização dos períodos limpo e poluído na área de estudo, bem como das técnicas para a obtenção de parâmetros microfísicos de nuvens e para a modelagem de nuvens líquidas. Por fim são apresentadas as parametrizações para a realização de simulações de transferência radiativa na atmosfera, de maneira que o cálculo de forçantes radiativas instantâneas devido ao primeiro efeito indireto de aerossóis possa ser realizado.

## 4.1 - O experimento GoAmazon 2014/5

A bacia amazônica, além de ser um dos principais motores de calor do hemisfério sul, também funciona como um reator biogeoquímico gigante que influencia o clima regional, com exportações e importações de quantidades relevantes para o clima de e para outras regiões da Terra (KELLER et al., 2009). É nesse contexto que a campanha GoAmazon 2014/5 foi planejada, sendo realizada durante os anos de 2014 e 2015. Esse gigantesco experimento reuniu diversos instrumentos para medição de radiação, precipitação, estado atmosférico e propriedades físicas e químicas de aerossóis e nuvens na Amazônia, com o objetivo principal de compreender melhor as interações entre vegetação, química atmosférica e produção de aerossóis, além de suas conexões com as nuvens e a precipitação.

A campanha GoAmazon 2014/5 conduziu um vasto conjunto de medidas visando um melhor entendimento dos impactos ambientais de centros urbanos em propriedades microfísicas naturais de nuvens e de aerossóis sobre a floresta amazônica. Para isso foi considerada a localização geográfica da cidade de Manaus, uma área urbana isolada (com cerca de 2 milhões de habitantes à época do experimento) cercada por floresta por mais de 1000 km em todas as direções (MARTIN et al., 2016). O experimento organizou e montou uma rede de sítios observacionais (Figura 8) que interceptou o ar prístino (limpo) da floresta e o ar poluído proveniente da cidade de Manaus. Esses sítios, onde foram instalados os aparatos instrumentais em torres e também no nível do solo, variavam de acordo com pontos no tempo e a direção na qual o vento carrega a poluição da cidade. Os sítios “T0” se encontravam a norte de Manaus, sendo que na maior parte do tempo a pluma de poluição não os alcançava. Já os locais codificados como “T1” e “T2” se encontravam mais próximos às fontes de poluição, e os *sites* “T3” e “T3u” eram aqueles localizados a sudoeste de Manaus.

Relativamente à climatologia da região, MARTIN et al. (2016) apontam que Manaus e a área na qual os sítios foram instalados são representativos da bacia amazônica. Eventos convectivos sinóticos organizados são mais comuns no começo e no fim da estação chuvosa. A cobertura de nuvens e o volume de chuva são menores em Julho e Agosto durante meados da estação seca, e são os maiores em Fevereiro e Março, no decorrer da estação chuvosa.



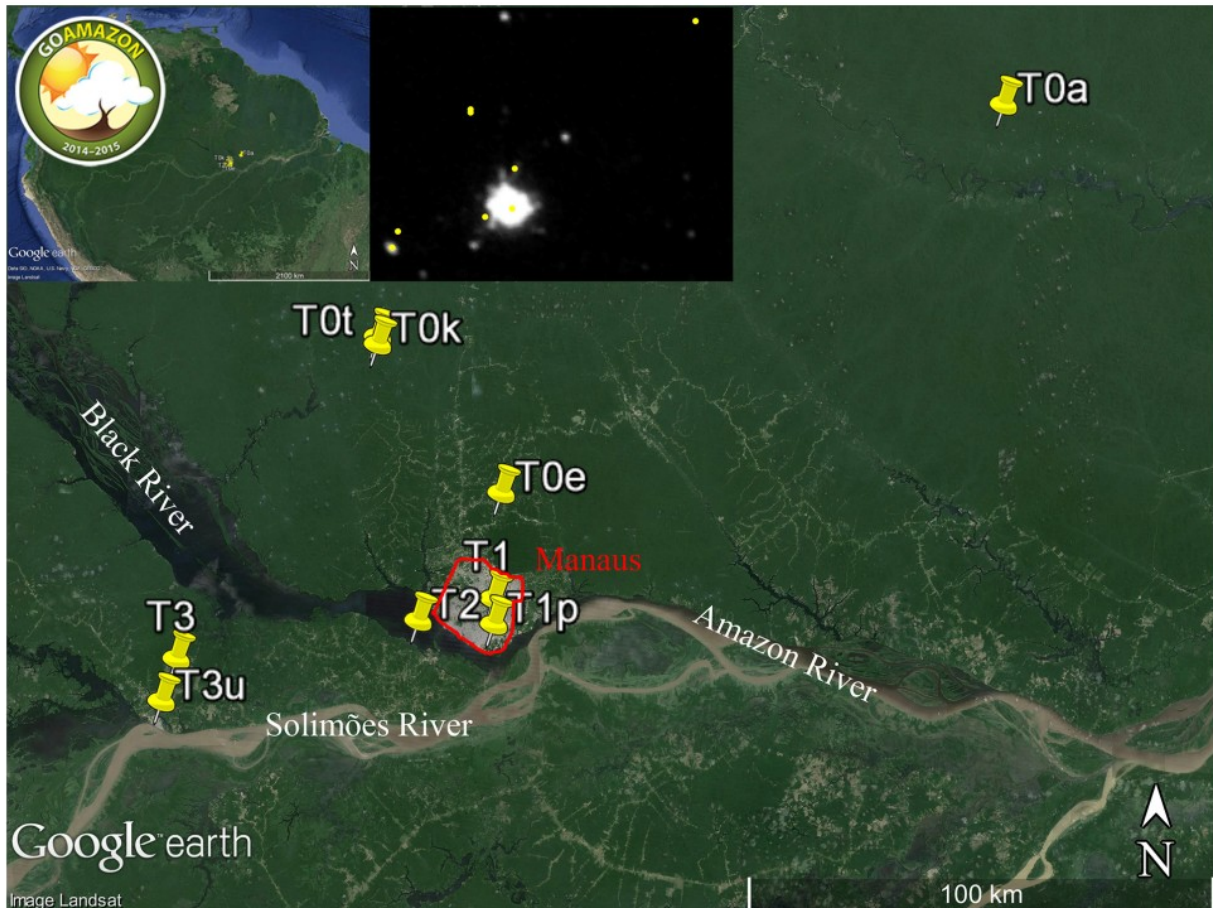


Figura 8 - Sítios experimentais da GoAmazon 2014/5 nos arredores da cidade de Manaus ( $-3,1^\circ$ ,  $-60,0^\circ$ ), a qual está localizada na confluência dos rios Negro e Solimões, que juntos formam o rio Amazonas. O primeiro retângulo à esquerda (na parte superior) mostra a localização do domínio experimental dentro América do Sul, e o mais escuro à direita mostra a iluminação noturna nos arredores de Manaus para o ano de 2010 (MARTIN et al., 2016).

DA ROCHA et al. (2009) indicaram que o ciclo sazonal de precipitação na região é conduzido pela Zona de Convergência InterTropical (ZCIT ou *InterTropical Convergence Zone*, ITCZ, do inglês), que favorece uma estação chuvosa (precipitação maior que 200 mm) de Janeiro a Abril e uma estação seca (precipitação inferior a 105 mm) de Julho a Setembro. Estudos mais recentes, todavia, adotaram diferentes períodos para somente uma ou para as duas estações e, conseqüentemente, para os meses de transição entre elas. GIANGRANDE et al. (2017), por exemplo, adotaram o intervalo entre Dezembro e Abril como o período úmido, os meses de Maio, Outubro e Novembro como meses de transição e o período entre Junho e Setembro para a estação seca. THALMAN et al. (2017)

utilizaram o volume mensal de chuva acumulada, as semelhanças em propriedades do aerossol e as concentrações de gases traço medidos nos sítios T0a e T0t para agrupar e definir as estações para o intervalo entre 12 de Março de 2014 e Março de 2015. A análise resultou na estação úmida de 2014 indo de Março a Maio, os meses de Junho e Julho como uma primeira transição, Agosto e Setembro como os meses de estiagem e o período entre Outubro e a primeira metade de Dezembro de 2014 como uma segunda transição, sendo que o intervalo entre 16/12/2014 e a primeira metade de Março de 2015 foi classificado como o período chuvoso de 2015.

CARNEIRO & FISCH (2020), por sua vez, analisaram diversas variáveis meteorológicas medidas no T3 para períodos entre 15 de Fevereiro e 31 de Março e entre 1 de Setembro e 15 de Outubro (para 2014 e 2015) e mostraram que a precipitação acumulada foi diferente para 2014 e 2015 (Figura 9). O ano de 2014 foi similar à normal climatológica, com um volume acumulado de chuva igual a 2451 mm. O ano de 2015, contudo, registrou uma redução significativa (aproximadamente 30%) no total de chuva acumulada (1764 mm) em comparação com 2014, bem abaixo da média normal climatológica. Os autores do estudo apontam que essa redução esteve associada à ocorrência de um evento de *El Niño* em 2015, o qual foi considerado um dos mais intensos historicamente.

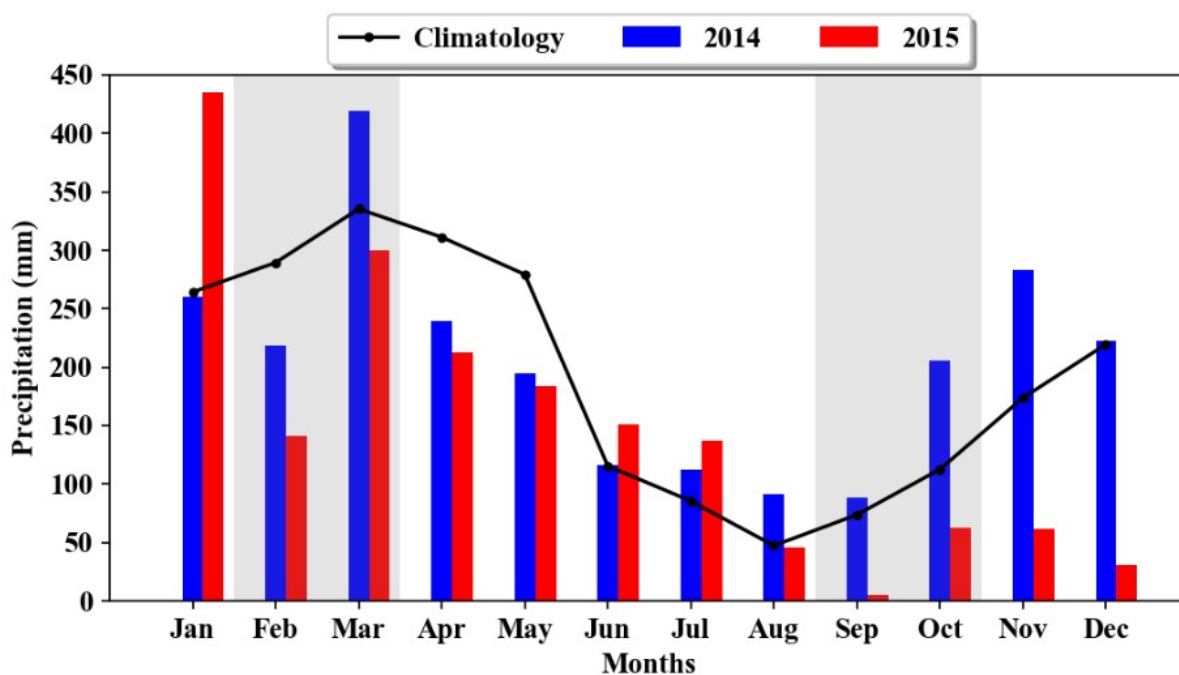


Figura 9 - Padrão climatológico e distribuição da precipitação mensal acumulada (mm) para os anos de 2014 e 2015 (CARNEIRO & FISCH, 2020).

### 4.1.1 - Caracterização do sítio T3

A instalação que possuiu a maior abrangência de instrumentos na GoAmazon 2014/5 foi o sítio T3 (3,2° S, 60,6 O; também referido como “Manacapuru”, cidade a cerca de 10 km a sudoeste da exata localização do *site*), localizado a aproximadamente 70 km de Manaus e que é atingido tanto por massas de ar limpas quanto poluídas.

O Quadro 1 apresenta a classificação de sazonalidade adotada neste trabalho. Essa definição surgiu a partir da consideração dos diferentes aspectos apontados pelos estudos anteriormente mencionados, consistindo assim em uma abordagem que visa a inclusão de características, de diferentes escalas, que possam afetar a sazonalidade na região do T3 para os anos de 2014 e 2015.

Quadro 1 - Definição das estações seca e chuvosa para o período completo deste estudo.

Ano x Estação	Chuvosa	Transição	Seca
2014	Janeiro a Maio e Outubro a Dezembro	Junho e Julho	Agosto e Setembro
2015	Janeiro a Junho	Julho	Agosto a Dezembro

Fonte: Autor.

## 4.2 - Instrumentação

Durante os dois anos da campanha GoAmazon 2014/5 um conjunto de contêineres responsável pela pesquisa climática e medição de radiação atmosférica (*Atmospheric Radiation Measurement* ou ARM<sup>1</sup>, do inglês) do departamento de energia dos Estados Unidos (*Department of Energy*, DoE) operou no sítio T3. Esse aparato experimental incluiu a instalação móvel 1 (*ARM Mobile Facility 1* ou AMF-1) e o sistema móvel de observação de aerossóis MAOS (*ARM Mobile Aerosol Observing System*). Além desses, durante os períodos de 01/02/2014 a 31/03/2014 e de 15/08/2014 a 15/10/2014 (operações intensivas 1 e 2, “IOP 1” e “IOP 2”, respectivamente) houve também a utilização de três contêineres adicionais, os quais

<sup>1</sup> <<https://www.arm.gov/research/campaigns/amf2014goamazon>>

continham aparatos instrumentais operados por diversos colaboradores da campanha. Foi durante as IOP 1 e 2 que o avião (com turbo hélices, conforme mostra a Figura 10) de pesquisas atmosféricas *Gulfstream-159 (G-1)* (SCHMID et al., 2014) sobrevoou o entorno de Manaus passando, por diversas ocasiões, sobre a localização do sítio T3. Já o avião alemão HALO (*High Altitude and Long Range Research Aircraft*), pertencente à campanha experimental ACRIDICON-CHUVA (WENDISCH et al., 2016), também sobrevoou a região amazônica durante o mês de Setembro de 2014.

O conjunto de dados experimentais aqui utilizado é composto por medidas realizadas através de instrumentos *in situ* (aviões G-1 e HALO) e de sensoriamento remoto a partir do solo. Os conjuntos de dados do ARM e do G-1 podem ser livremente acessados através de plataforma eletrônica (*Data Discovery*<sup>2</sup>) do ARM, a qual fornece, inclusive, diversas informações sobre os equipamentos experimentais e os algoritmos utilizados, bem como sobre a qualidade das medições realizadas.



Figura 10 - Avião Gulfstream-159 (G-1), utilizado pelo ARM entre 2009 e 2018 para obter medidas de diversas variáveis atmosféricas ao redor do globo. Imagem disponível em <<https://www.arm.gov/capabilities/observatories/aaf/manned>>. Último acesso em 17/05/2023.

---

<sup>2</sup> <<https://adc.arm.gov/discovery/>>

### 4.2.1 - In situ com aviões

O avião G-1 realizou, ao todo, 35 voos (Figuras 11 e 12) sobre a floresta amazônica. Todos os voos partiram de Manaus e buscaram acompanhar e interceptar por diversas vezes a pluma de poluição emitida pela cidade, assim como o ar mais limpo fora da pluma.

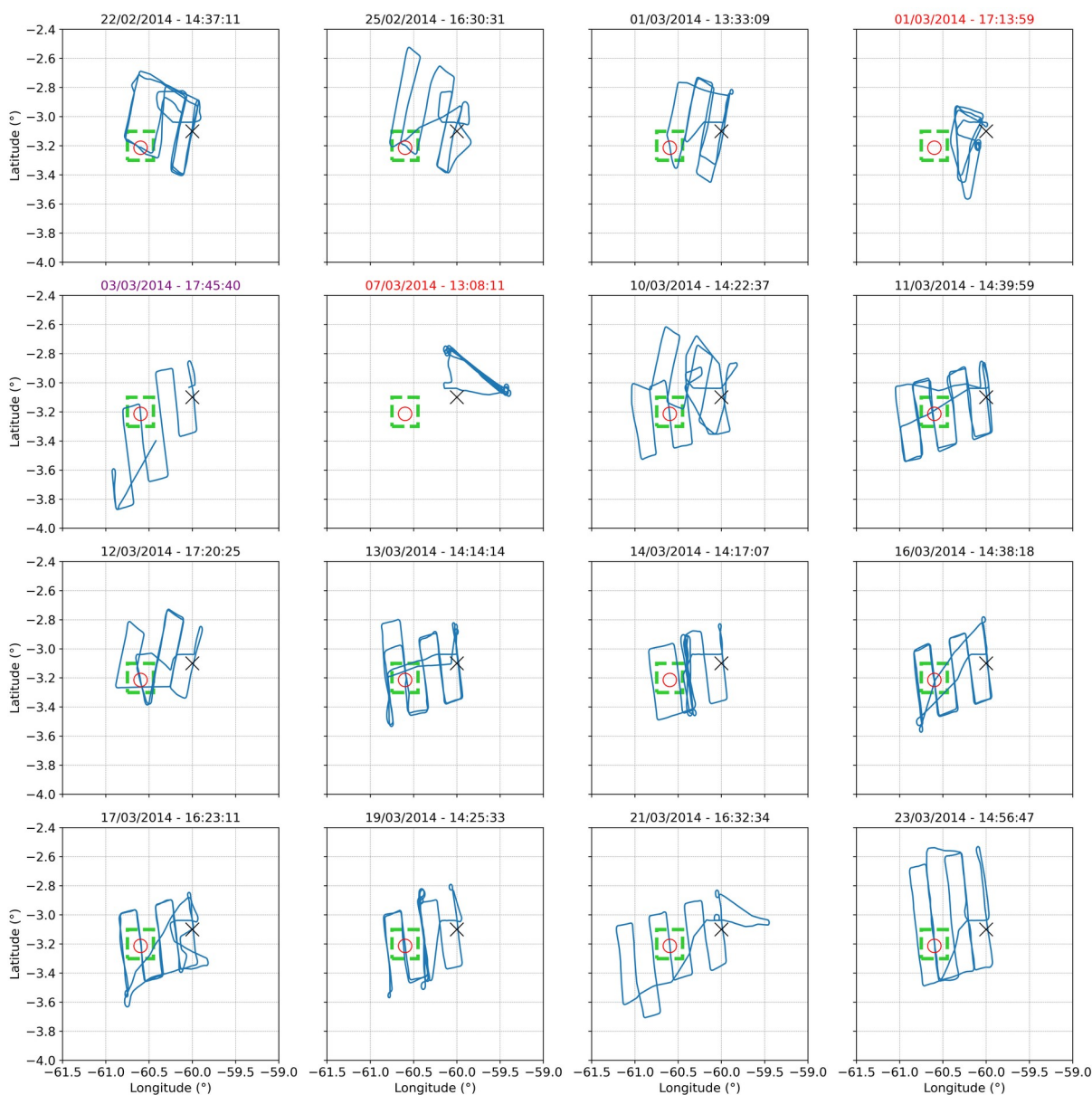


Figura 11 - Trajetórias (linhas na cor azul) diárias de todos os voos que o G-1 realizou durante a IOP 1. O "X" indica a localização geográfica do ponto de partida (Manaus) do G-1, enquanto o círculo vermelho mostra a localização do sítio T3. A área interna à marcação pontilhada na cor verde (60,75° O, 3,3° S, 60,45° O, 3,1° S) indica a região de estudo, ou seja, somente os voos que atravessaram esta área delimitada em torno do T3 (plotagens com título na cor preta) tiveram seus dados aqui considerados. Fonte: Autor.

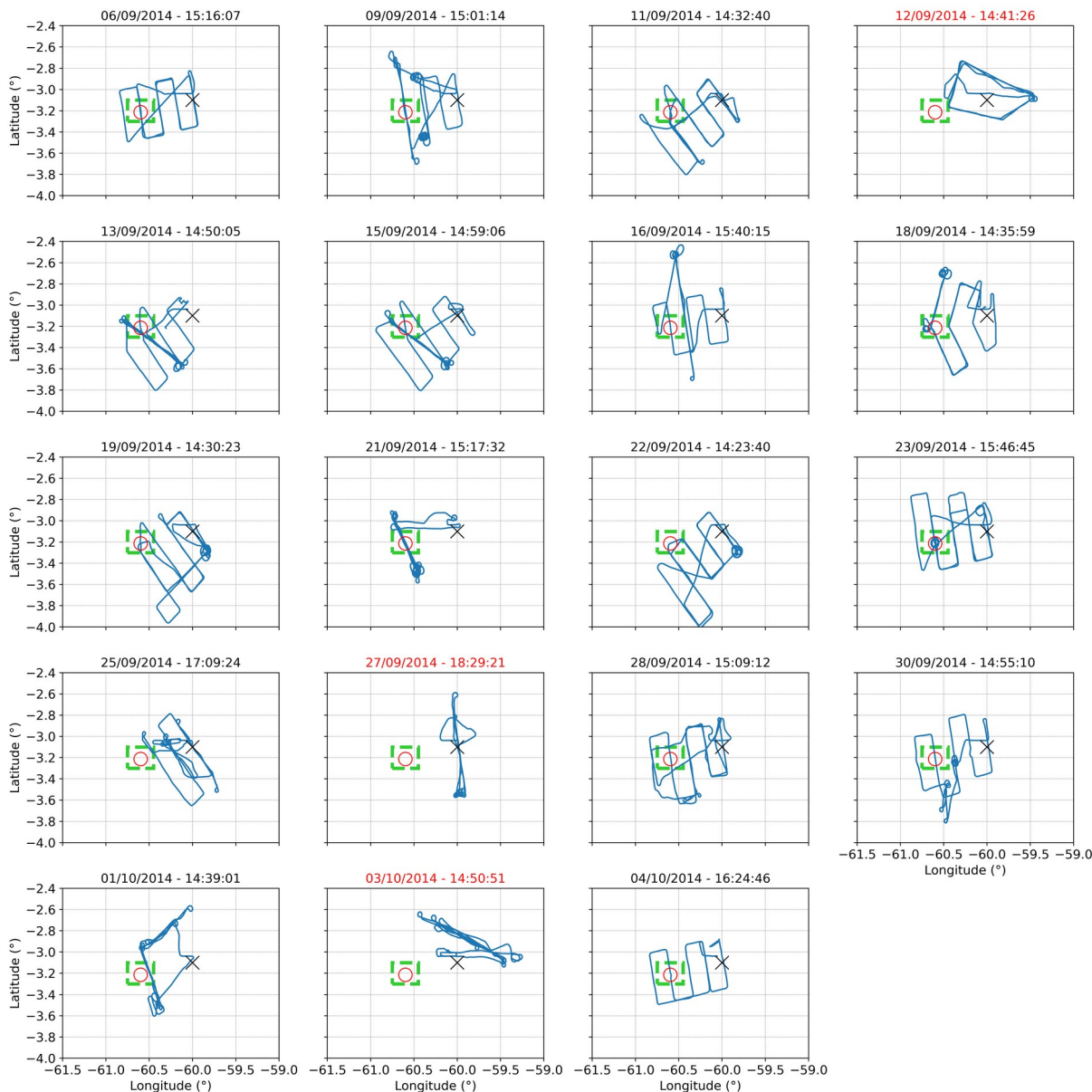


Figura 12 - Trajetórias (linhas na cor azul) diárias de todos os voos que o G-1 realizou durante a IOP 2. Assim como exposto na Figura 11, somente os dados referentes às plotagens com título na cor preta foram aqui utilizados. Fonte: Autor.

Dentre as medidas realizadas pelo G-1 estão inclusas propriedades como o LWC, as distribuições de tamanho de partículas de aerossóis e de hidrometeoros de nuvens, a concentração volumétrica total de aerossóis, os coeficientes de absorção de aerossol, e muitas outras (SCHMID et al., 2014, elenca todas as variáveis e os respectivos instrumentos de medição que o G-1 utilizou durante a GoAmazon). Uma vez que parte deste trabalho consiste em construir modelos simplificados de nuvens, as variáveis medidas por instrumentação *in situ* aqui utilizadas são o LWC (em  $g/m^3$ ), o conteúdo total de água presente na nuvem (ou TWC, de *Total Water Content*), a

concentração volumétrica total de gotas na nuvem ( $N_g$ , em gotas/L) e a distribuição de tamanho de gotas na nuvem ( $n_g$ , medida em gotas/L/ $\mu\text{m}$ ).

A Figura 13 mostra uma foto do sensor WCM-2000 (SEA, de *Science Engineering Associates*), responsável pela aquisição de valores de LWC e TWC e que é composto por um aparato em forma de concha e por diversos elementos de fio aquecidos. Alguns desses fios são expostos diretamente ao fluxo de ar e às gotas de água na nuvem, enquanto um outro fio, o elemento de referência, é exposto somente ao fluxo de ar. Um sistema que controla a potência elétrica nos elementos é responsável por manter a voltagem constante em um deles, e a temperatura nos outros. Essa diferenciação faz com que sejam obtidos valores de LWC/TWC a partir de 2 técnicas independentes. Na primeira delas, caso em que a voltagem é constante, o diâmetro do fio é igual a 0.56 mm (STRAPP et al., 2003) e a sonda é do tipo “Johnson-Williams” (NEEL, 1955), onde os valores de LWC (referidos como “LWC\_021” no ARM, obtidos a cada segundo) são deduzidos a partir de variações na corrente elétrica devido ao esfriamento do fio conforme os hidrometeoros coletados evaporam. Já para os fios em que a temperatura é constante (sonda tipo “King”; KING et al., 1978), uma relação<sup>3</sup> que considera as potências do sistema, a velocidade relativa do fluxo de ar, a temperatura do ambiente, as dimensões de cada fio e o calor latente de evaporação da água é aplicada para que valores de LWC (referidos como “LWC\_083” no ARM) sejam calculados a cada segundo.

Os valores de  $N_g$  e  $n_g$  são obtidos pela sonda FCDP (de *Fast Cloud Droplet Probe*), desenvolvida pela empresa norte-americana SPEC Inc. (manual disponível em <<http://www.specinc.com/node/123>>). A FCDP dimensiona as partículas de hidrometeoros medindo a quantidade de luz espalhada na abertura óptica coletora durante a interação das partículas por meio de um feixe de laser focalizado. O instrumento é capaz de dimensionar partículas de 1 a 50  $\mu\text{m}$ , com uma resolução de cerca de 3  $\mu\text{m}$ . O sistema separa as partículas em 20 intervalos de tamanho (bins) igualmente espaçados, sendo que o intervalo de amostragem também é igual a 1 segundo. A Figura 14 mostra a sonda FCDP e o aparato AIMMS-20 (de *Aircraft-Integrated Meteorological Measurement System*, BESWICK et al., 2008), responsável por medir diversas variáveis meteorológicas durante os voos do G-

---

<sup>3</sup> <<https://www.scieng.com/pdf/WCM2000User.pdf>>, disponível em <<https://www.scieng.com/products/multi.htm>>. Último acesso em 22/05/2023.



Figura 13 - Sensor WCM-2000, que mediu valores de LWC e TWC. Foto obtida pela pesquisadora Jennifer Comstock, responsável pela manutenção do instrumento e pela curadoria dos dados obtidos pelo WCM-2000 durante as IOP's 1 e 2.

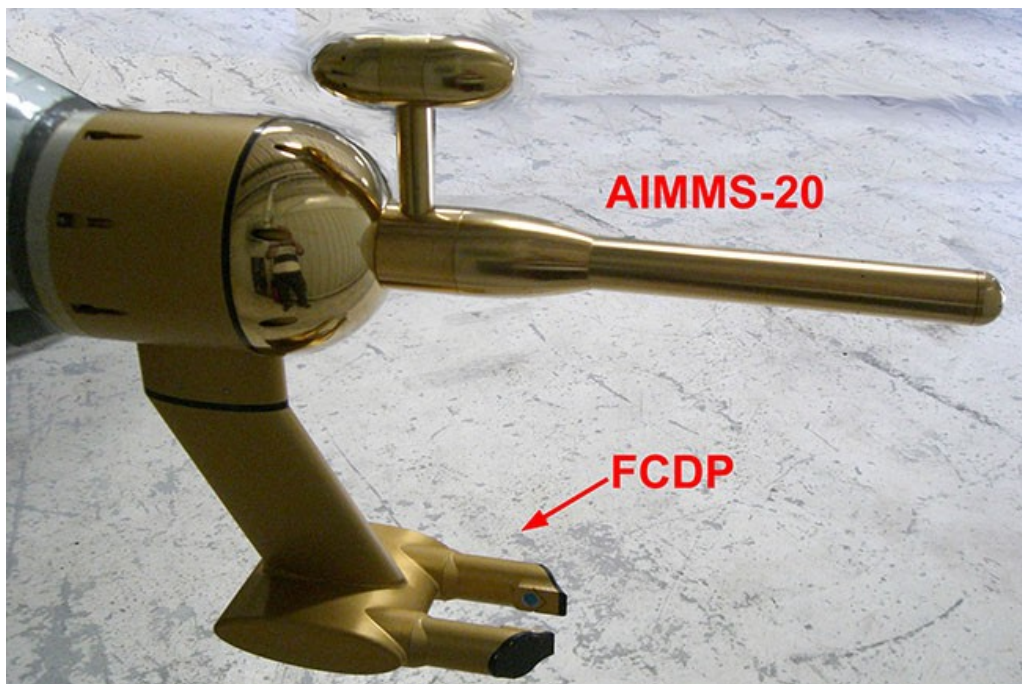


Figura 14 - FCDP acoplada a uma sonda AIMMS-20, a qual obteve medidas de  $N_g$  e  $n_g$ . Imagem obtida em <<http://www.specinc.com/node/123>>. Último acesso em 22/05/2023.



O HALO sobrevoou diversas regiões no entorno de Manaus (Figura 15). Dentre todos os voos realizados, somente aqueles que ocorreram sobre áreas densamente florestadas a norte e a noroeste de Manaus (Figura 16) foram aqui selecionados. Apesar de não terem se encontrado exatamente acima do T3, essas regiões consideradas corresponderam à fonte de dados mais “limpa” possível disponível durante a IOP 2 sobre a floresta. O Quadro 2, adaptado de CECCHINI et al., (2017), mostra os valores médios de concentração de aerossóis ( $N_a$ ) e de CCN medidos na base da nuvem para alguns voos realizados pelo HALO. Apesar dessas concentrações terem sido as mínimas para o voo AC19, este não foi considerado, pois foi realizado sobre uma área costeira bastante afastada da região do T3.

Assim como para o avião G-1, as variáveis medidas *in situ* pelo HALO aqui utilizadas são o LWC (em  $g/m^3$ ), o TWC, a concentração total de gotas na nuvem ( $N_g$ , em gotas/L) e a distribuição de tamanho de gotas na nuvem ( $n_g$ , em gotas/L/ $\mu m$ ). Estes conjuntos de dados<sup>4</sup> são oriundos dos instrumentos CAS-DPOL (*Cloud and Aerosol Spectrometer, with Detector for Polarization*) e BAHAMAS (*Basic HALO Measurement and Sensor System*), os quais estavam a bordo do HALO.

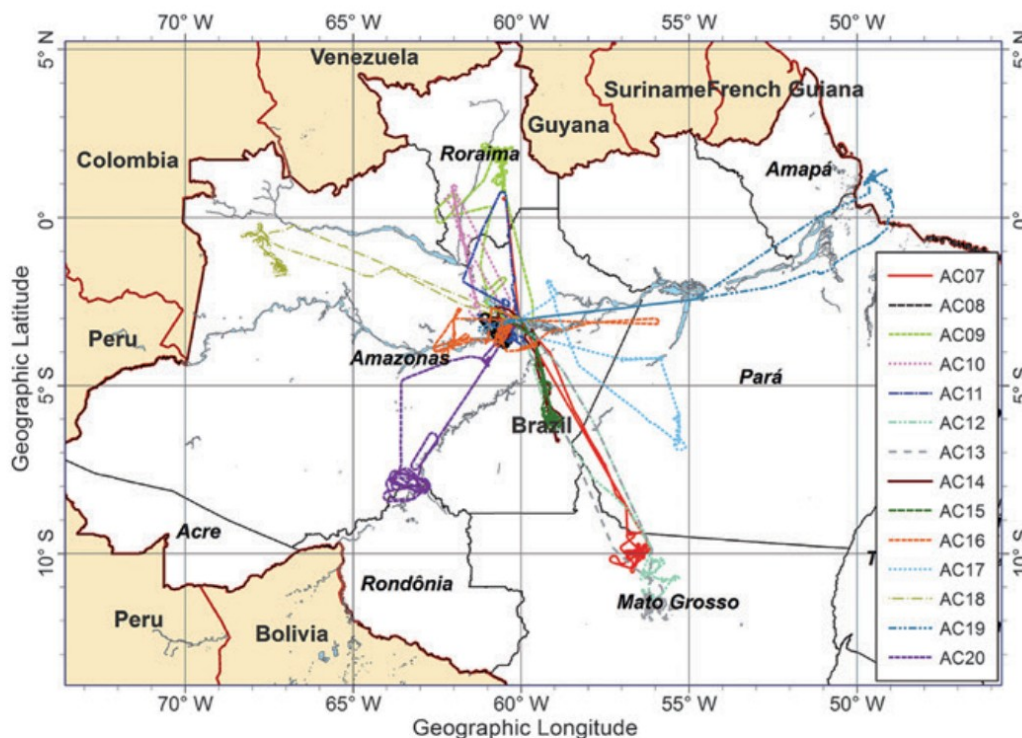


Figura 15 - Trajetórias de todos os voos realizados pelo HALO durante o mês de Setembro de 2014 (WENDISCH et al., 2016).

<sup>4</sup> Disponíveis em <<https://halo-db.pa.op.dlr.de/mission/5>>. Acessado em 02/08/2023.

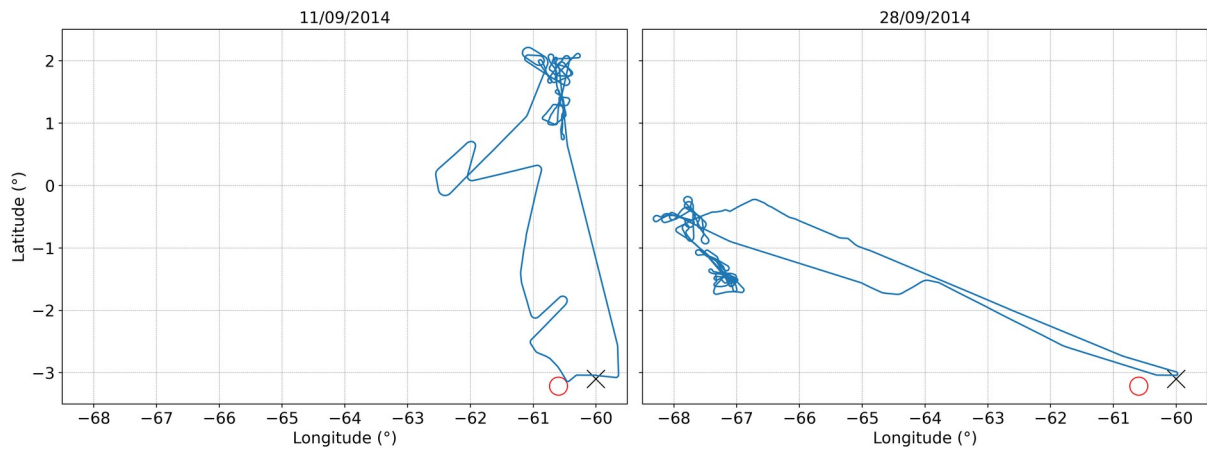


Figura 16 - Trajetórias (linhas na cor azul) dos voos que o avião HALO realizou nos dias 11/09/2014 (voo AC09) e 28/09/2014 (voo AC18), durante a IOP 2. O "X" indica a localização geográfica de Manaus, enquanto o círculo vermelho mostra a do T3. Fonte: Autor.

Quadro 2 - Concentrações de  $N_a$  e CCN medidas durante alguns voos do HALO.

Voo	$N_a$ ( $cm^{-3}$ )	CCN ( $cm^{-3}$ )
AC19	465	119
AC18	744	408
AC09	821	372
AC20	2331	1155
AC07	2498	1579
AC11	2691	1297
AC12	3057	2017
AC13	4093	2263

Fonte: Adaptado de CECCHINI et al., (2017).

#### 4.2.2 - Sensoriamento remoto a partir do solo

Além de LWC, TWC,  $N_g$  e  $n_g$ , outras propriedades de nuvens também foram estudadas durante a GoAmazon 2014/5. Dentre essas características, observadas através de sensoriamento remoto a partir do solo, as utilizadas neste trabalho são o LWP (em  $g/m^2$ ), a fração de cobertura do céu ( $f_c$ ), a CBH e a CTH (essas 2 últimas medidas em metros). Diversos instrumentos foram utilizados para medir tais variáveis, de modo que o ARM realiza diferentes combinações de dados e emprega algoritmos específicos para derivar conjuntos de dados de qualidade superior e então disponibilizar os denominados VAPS (de *Value-Added Products*) em seu repositório na *internet*. Um desses VAPS é o WACR-ARSCL (de *W-band ARM Cloud Radar - Active Remote Sensing of Clouds*), que combina medidas de um radar doppler de nuvens (banda W, operando em 95.04 GHz), um sistema LIDAR de micropulsos (ou MPL, de *MicroPulse LIDAR*) e um ceilômetro (Figura 17) para detectar camadas de nuvens e obter (KOLLIAS et al., 2007) estimativas de CBH e CTH de nuvens (dados do radar e do ceilômetro combinados) e de camadas de nuvens (combinação entre radar e MPL) sobre o T3. O princípio físico de operação desses instrumentos, que é basicamente o mesmo, consiste em transmitir pulsos de luz na atmosfera, medir o sinal retro espalhado pelo objeto de estudo (podem ser nuvens ou aerossóis) e então medir a diferença temporal entre a emissão e a recepção, derivando assim a distância entre o instrumento e o objeto observado.



Figura 17 - Instrumentos utilizados para obtenção de CBH e CTH no T3. O intervalo de amostragem foi de 5 s. Da esquerda para a direita: Radar de nuvens (WACR), LIDAR de micropulsos (MPL) e Ceilômetro (CEIL). Fonte: ARM.

Analogamente às alturas da base e do topo das camadas de nuvens, os valores de LWP aqui analisados também foram estimados através da combinação entre diferentes instrumentos, além da aplicação de um algoritmo de derivação específico (TURNER et al., 2007). Esse algoritmo utiliza como valores de entrada informações do estado termodinâmico da atmosfera, além de perfis verticais de variáveis atmosféricas (como temperatura do ar, pressão e umidade relativa) obtidas por sondas em balões<sup>5</sup> e por instrumentos meteorológicos no solo<sup>6</sup>. As medidas supracitadas são combinadas com medidas de temperatura de brilho obtidas em 23.8 e 31.4 GHz pelo radiômetro de micro-ondas MWR (de *MicroWave Radiometer*, mostrado na foto da Figura 18), o qual detecta emissões de micro-ondas causadas por moléculas de água líquida e fornece séries temporais de quantidade de água líquida integrada na coluna atmosférica. O produto “maomwrret1iljclouM1.S2” aqui utilizado disponibiliza valores de LWP derivados a cada 20 segundos. Esses valores serão combinados com as medidas de CBH e CTH através do emprego da equação 3.25 (onde  $Z = CTH - CBH$  é a extensão vertical da nuvem observada) para o cálculo de LWC a partir dos dados obtidos remotamente.



Figura 18 - Radiômetro de micro-ondas MWR. Fonte: <<https://www.arm.gov/capabilities/instruments/mwr>>. Último acesso em 22/05/2023.

---

<sup>5</sup> <<https://www.arm.gov/capabilities/instruments/sonde>>

<sup>6</sup> <<https://www.arm.gov/capabilities/instruments/met>>

As séries temporais de fração de cobertura do céu serão importantes para localizar os resultados finais (as forçantes radiativas instantâneas) para o sítio T3. Os valores de  $f_c$  não fazem distinção entre os tipos de nuvens observadas e estão disponibilizados na plataforma *Data Discovery* através do código “maoradflux1longM1.c2”. Esse conjunto de dados é oriundo de um VAP (RIIHIMAKI et al., 2019) que realiza diversos cálculos e análises de fluxos radiativos (*Radiative Flux Analysis*) na atmosfera. A técnica empregada consiste em usar medidas de radiação obtidas por diferentes radiômetros (e em diversos comprimentos de onda) no nível da superfície para detectar períodos de céu limpo (ou seja, sem nuvens) e nublado. As medidas referentes ao céu limpo, por sua vez, são utilizadas para ajustar funções que produzem estimativas contínuas de céu limpo, as quais são utilizadas para inferir propriedades microfísicas de nuvens. Dentre as propriedades derivadas estão irradiâncias descendentes e ascendentes totais, diretas e difusas para ondas curtas e longas, além da  $f_c$  para ondas curtas (LONG et al., 2006) e longas (DÜRR & PHILIPONA, 2004), ambas os casos calculados de minuto em minuto.

Assim como as propriedades de nuvens, características de aerossóis também foram derivadas a partir de instrumentos em solo. O primeiro desses é o fotômetro solar pertencente à rede AERONET (de *AErosol RObotic NETwork*, do inglês), administrada oficialmente pela agência espacial norte-americana (NASA, de *National Aeronautics and Space Administration*). O fotômetro (Figura 19) é constituído por um sensor composto por colimadores de 25 cm e uma base robotizada, a qual pode ser programada para apontar para o céu ou diretamente para o disco solar. O instrumento mede valores de irradiância solar e de radiância do céu em 8 comprimentos de onda, sendo que a partir da aplicação dessas irradiâncias e da lei de Beer-Lambert-Bouguer são calculados (GILES et al., 2019) os valores espectrais da profundidade óptica de aerossóis (AOD), já descontadas as contribuições relacionadas ao espalhamento molecular (espalhamento *Rayleigh*) e às absorções por parte do  $O_3$  e de outros gases poluentes presentes na atmosfera. Analogamente aos conjuntos de dados disponibilizados pelo ARM, as medidas de AOD também podem ser acessadas livremente através da *internet*<sup>7</sup>.

---

<sup>7</sup> <[https://aeronet.gsfc.nasa.gov/new\\_web/system\\_descriptions.html](https://aeronet.gsfc.nasa.gov/new_web/system_descriptions.html)>



Figura 19 - Fotômetro solar da rede AERONET. Fonte: <[https://aeronet.gsfc.nasa.gov/new\\_web/system\\_descriptions.html](https://aeronet.gsfc.nasa.gov/new_web/system_descriptions.html)>. Último acesso em 23/05/2023.

Os valores de AOD aqui utilizados foram obtidos pelo filtro de 500 nm do fotômetro da AERONET. Essas medidas não possuem um intervalo de amostragem constante, o que faz com que o cálculo de médias diárias seja necessário. Essas séries temporais serão complementadas por um conjunto de dados (código “maomfrsraod1michM1.c1” no ARM) de AOD invertido a partir de medições de irradiância solar (componentes difusa e total à superfície) realizadas pelo radiômetro multifiltro MFRSR (de *MultiFilter Rotating Shadowband Radiometer*). Esse instrumento faz parte de um VAP que implementa os cálculos apontados em HARRISON & MICHALSKY (1994), em MICHALSKY et al. (2001), e em ALEXANDROV et al. (2004), para derivar valores espectrais de AOD em 5 comprimentos de onda, com intervalo de amostragem igual a 20 segundos.

As médias diárias de AOD serão comparadas ao coeficiente de espalhamento total ( $\beta_e$  ou  $\beta_{esp.}$ ) e a concentrações volumétricas dos aerossóis, de modo que o objetivo de identificar diferentes cenários de disponibilidade de aerossóis acima do T3 seja alcançado. O VAP aip1ogren (“maoaip1ogrenM1.s1” no ARM) reúne dados de propriedades extensivas de aerossóis obtidas pelo sistema de observação de

aerossóis do ARM (ou AOS, de *Aerosol Observing System*, descrito em SHERIDAN et al., 2001, e em UIN et al., 2019) e aplica um conjunto de algoritmos (DELENE & OGREN, 2002) para calcular propriedades intensivas de aerossóis (as quais não dependem da quantidade de partículas).

Um dos aparatos instrumentais que fazem parte do AOS é uma dupla de nefelômetros modelo 3563 (código “maoaosnephdry1mS1.b1”), que medem o coeficiente de espalhamento total dos aerossóis em função da umidade relativa ambiental (informações sobre o modelo dos equipamentos e sobre os princípios operacionais podem ser consultados em <<https://tsi.com/discontinued-products/integrating-nephelometer-3563/>> e em <[https://www.arm.gov/publications/tech\\_reports/handbooks/nephelometer\\_handbook.pdf](https://www.arm.gov/publications/tech_reports/handbooks/nephelometer_handbook.pdf)>, respectivamente). As medidas de  $\beta_e$ , realizadas a cada minuto, são derivadas nos comprimentos de onda do vermelho, verde e azul (700, 550 e 450 nm, respectivamente) para dois cortes de tamanho das partículas, 1  $\mu\text{m}$  e 10  $\mu\text{m}$ .

Dentre as concentrações aqui investigadas estão a concentração mássica total de partículas orgânicas (“Org.”, em unidades de  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) e a concentração numérica de núcleos de condensação de nuvens (CCN, medida em partículas/ $\text{cm}^3$ ). A primeira dessas variáveis, oferecida através do código “maoaosacsmS1.b1” pelo ARM, foi obtida de minuto em minuto por um monitor de especiação química de aerossóis (ou ACSM, de *Aerosol Chemical Speciation Monitor*). O ACSM é um espectrômetro de massa que tem como princípio básico de funcionamento a vaporização térmica e uma posterior ionização das partículas de aerossol menores que 1  $\mu\text{m}$ . O vaporizador do aparelho é montado dentro de uma fonte de ionização por impacto de elétrons, a qual ioniza qualquer material particulado vaporizado. Os íons formados são então analisados com o espectrômetro de massa, que fornece informações sobre a composição química das partículas e faz com que seja possível realizar a derivação da concentração mássica total somente das partículas orgânicas submicrométricas. Informações mais detalhadas sobre as especificações técnicas e os princípios de operação e calibração do ACSM podem ser encontradas no manual (<[https://www.arm.gov/publications/tech\\_reports/handbooks/acsm\\_handbook.pdf](https://www.arm.gov/publications/tech_reports/handbooks/acsm_handbook.pdf)>) disponibilizado pela plataforma *Data Discovery* do ARM.

Os valores de concentração numérica de partículas que atuaram como CCN no ar acima do T3 foram medidos por um contador de CCN (ou CCNPC, de *Cloud Condensation Nuclei Particle Counter*). O CCNPC (Figura 20) mensura a

concentração de partículas de aerossol (em função da supersaturação, a qual variou entre 15 e 80%) ao extrair uma amostra de ar através de uma coluna com vapor d'água supersaturado termodinamicamente instável, o qual pode sofrer condensação nas partículas de aerossol. As partículas que são ativadas, ou seja, que crescem durante o processo, são contadas e dimensionadas por um contador óptico de partículas (OPC, de *Optical Particle Counter*). Dessa forma, o CCNPC mede a concentração numérica das partículas de aerossol ambiente que foram ativadas em função da supersaturação interna ao aparelho. Assim como para o ACSM, o intervalo de amostragem aplicado no CCNPC foi de 1 minuto, e informações detalhadas sobre o aparelho podem ser encontradas no manual ([https://www.arm.gov/publications/tech\\_reports/handbooks/ccn\\_handbook.pdf](https://www.arm.gov/publications/tech_reports/handbooks/ccn_handbook.pdf)) disponível na *Data Discovery*.



Figura 20 - CCNPC-100 operacional (esquerda) e aberto para manutenção (direita). Imagens retiradas do *website* (<https://dropletmeasure.wpenginepowered.com/wp-content/uploads/2020/02/DOC-0086-Rev-M-CCN-Manual.pdf>) do fabricante do aparelho.



O Quadro 3 mostra um resumo das variáveis aqui utilizadas, assim como das respectivas unidades, instrumentos e intervalos de amostragem de origem. Para algumas variáveis (CBH, CTH e LWP) foram calculadas médias de minuto em minuto, de modo a facilitar a obtenção de parâmetros microfísicos de nuvens necessários à modelagem de nuvens quentes. Já para outras (AOD,  $\beta_{\text{esp.}}$ , Org, CCN e  $f_c$ ), a abordagem através de médias diárias e/ou diurnas se mostrou mais adequada, conforme explanado nos tópicos a seguir.

Quadro 3 - Propriedades de nuvens e aerossóis analisadas neste trabalho.

Variável	Unidade	Instrumento	Plataforma experimental	Intervalo amostragem	Observação (dados utilizados)
LWC	$\text{g/m}^3$	WCM-2000	Aviões	1 s	"LWC_083", IOP's 1 e 2
TWC	$\text{g/m}^3$	WCM-2000	Aviões	1 s	IOP's 1 e 2
$N_g$	gotas/L	FCDP	Aviões	1 s	IOP's 1 e 2
$n_g$	gotas/L/ $\mu\text{m}$	FCDP	Aviões	1 s	IOP's 1 e 2
CBH	m	WACR + MPL	Solo	5 s	AGL, 2014 a 2015
CTH	m	WACR + MPL	Solo	5 s	AGL, 2014 a 2015
LWP	$\text{g/m}^2$	MWR	Solo	20 s	2014 a 2015
$f_c$	%	Radiômetros	Solo	1 min.	Ondas curtas, 2014 a 2015
AOD	_____	AERONET/MFRSR	Solo	Variável/ 20 s	500 nm, 2014 a 2015
$B_{\text{esp.}}$	1/Mm	Nefelômetro (NEPH3W)	Solo	1 min.	550 nm; 1 $\mu\text{m}$ , 2014 a 2015
Org.	$\mu\text{g/m}^3$	ACSM	Solo	1 min.	~50 a 700 nm, 2014 a 2015
CCN	part./ $\text{cm}^3$	CCNPC	Solo	1 min.	2014 a 2015

Fonte: Autor.

### 4.3 - Identificação e caracterização dos cenários limpo e poluído

Ao longo deste estudo os cenários com menor e maior disponibilidade de aerossóis são referidos como “limpo” e “poluído”, respectivamente. O termo “limpo” não significa uma ausência total de aerossóis antropogênicos na atmosfera, enquanto o “poluído” corresponde às épocas dos anos nas quais há maior ocorrência de queimadas, as quais não ocorrem, necessariamente, na região do T3. Durante as épocas poluídas também pode haver transporte de pluma de poluição da cidade de Manaus para o T3, de modo que os termos “limpo” e “poluído” são utilizados com o intuito de facilitar a redação do texto.

A identificação dos cenários limpo e poluído foi realizada, inicialmente, a partir de análises visuais das médias diárias de propriedades de aerossóis. Para 2014, por exemplo, a Figura 21 mostra que, ao estudar as séries de  $\beta_{\text{esp.}}$  e AOD, os períodos compreendidos entre os dias (julianos) 10 e 150 e entre os dias 210 e 365 podem ser marcados como limpo e poluído, respectivamente. Já a análise conjunta das médias diárias de  $\beta_{\text{esp.}}$ , Org. e CCN (ver Figura 22) mostra que é possível aprimorar essa delimitação temporal, de modo que períodos mais restritivos (entre os dias 10 e 90; entre os dias 210 e 277 e entre os dias 300 a 345) sejam selecionados.

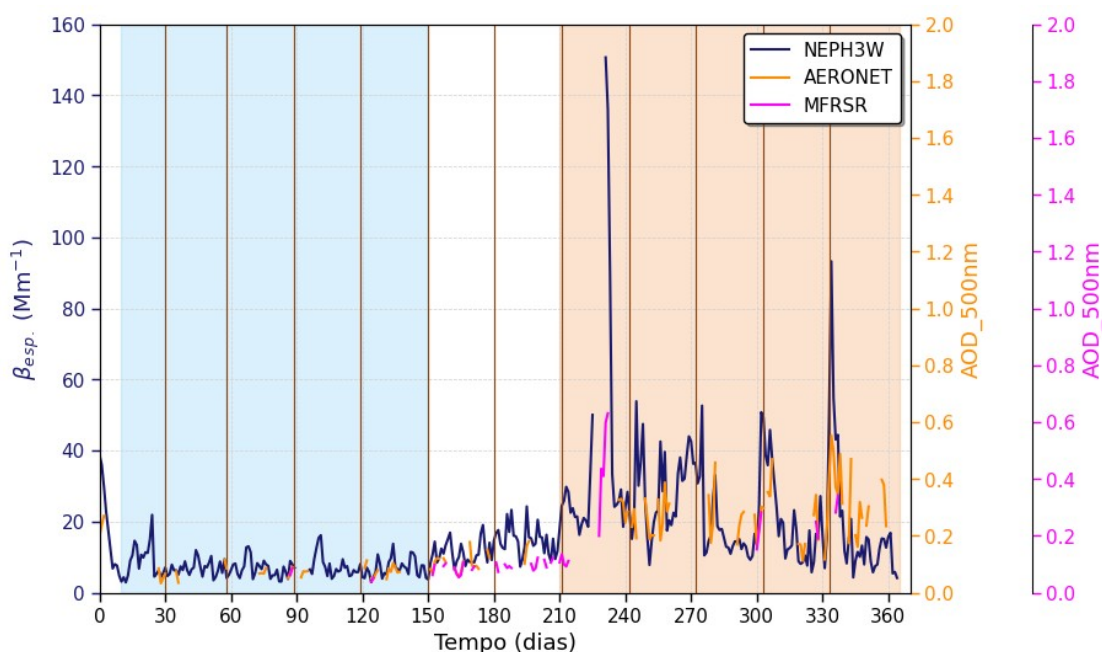


Figura 21 - Médias diárias de  $\beta_{\text{esp.}}$  e AOD para 2014. A legenda indica os instrumentos responsáveis pela aquisição de dados. As linhas verticais delimitam os meses de 2014, enquanto as regiões azul claro e marrom indicam os intervalos marcados como "limpo" e "poluído", respectivamente. Fonte: Autor.

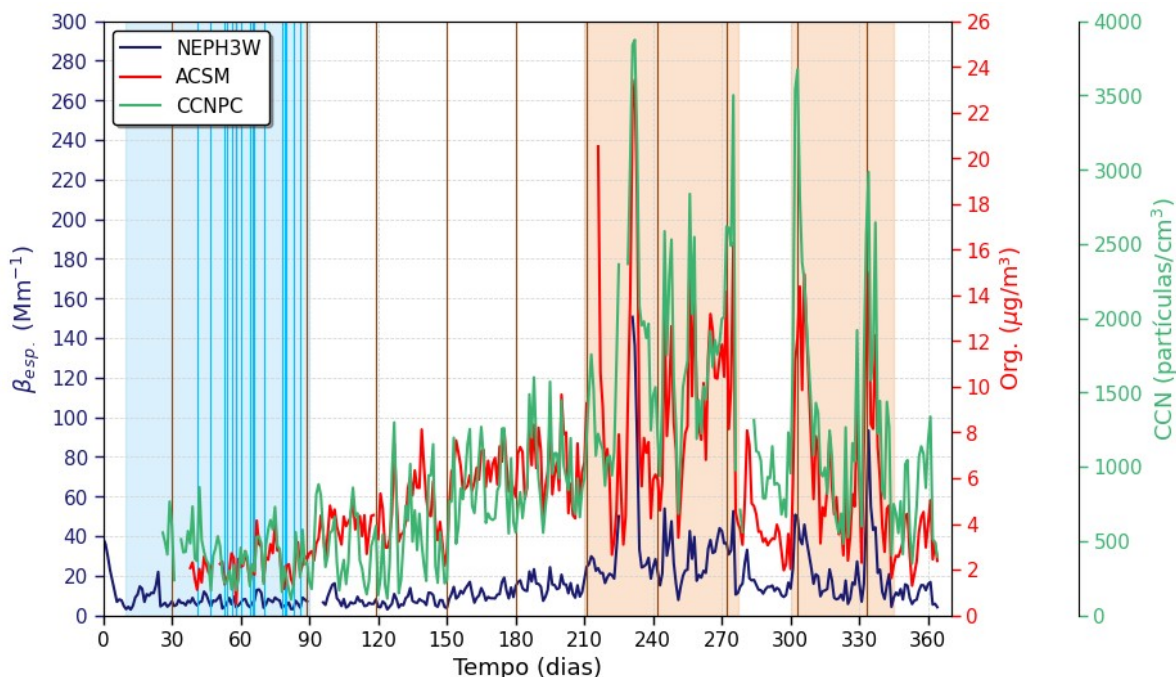


Figura 22 - Médias diárias de  $\beta_{\text{esp.}}$ , Org. e CCN para 2014. A legenda indica os instrumentos responsáveis pela aquisição de dados das variáveis em questão. As regiões pintadas nas cores azul claro e marrom indicam os intervalos (mais restritivos com relação àqueles mostrados na Figura 21) marcados como "limpo" e "poluído", respectivamente. As linhas verticais num tom azulado mais intenso indicam os dias mais limpos dentro do intervalo limpo; a técnica utilizada para selecionar tais dias será exposta ao longo deste Capítulo. Fonte: Autor.

A abordagem anterior também foi utilizada para delimitar os intervalos menos e mais poluídos para o ano de 2015. Nesse caso (Figura 23), entretanto, os valores de CCN não foram considerados, pois para a maior parte de 2015 as medidas oriundas do CCNPC não foram realizadas corretamente (segundo *status* disponível na plataforma *Data Discovery*, isso ocorreu durante quase todos os últimos 8 meses de 2015). A observação das séries de 2015 mostra que, assim como acontece em 2014, o período cuja influência de aerossóis é maior se dá na metade final do ano. Também durante o período poluído de 2015 os picos de  $\beta_{\text{esp.}}$  e Org. são maiores que os atingidos em 2014, ano que apresenta um cenário limpo mais curto em relação ao mesmo cenário de 2015. Dado isso, o Quadro 4 lista os dias referentes aos períodos limpo e poluído para 2014 e 2015. Essa referência é importante, pois será extensivamente utilizada no cálculo e nas análises das forçantes radiativas instantâneas devido ao efeito indireto dos aerossóis.

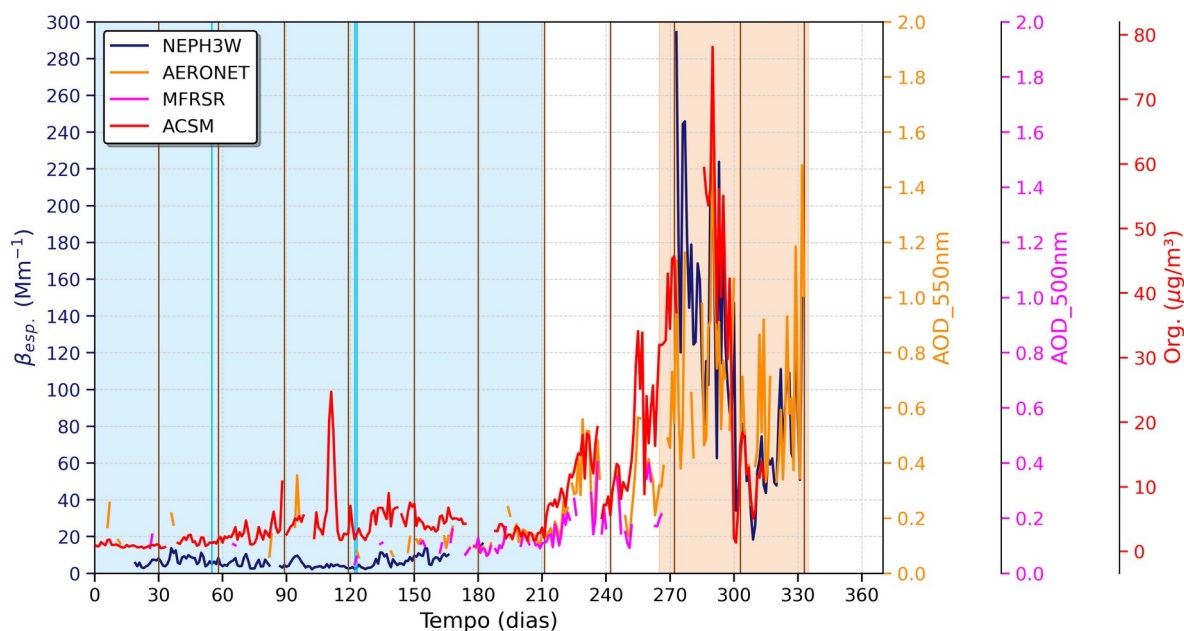


Figura 23 - Médias diárias de  $\beta_{esp.}$ , AOD e Org. para 2015. As regiões pintadas nas cores azul claro e marrom indicam os intervalos marcados como "limpo" e "poluído", respectivamente. Fonte: Autor.

Quadro 4 - Dias que delimitam os períodos limpo e poluído para os anos da campanha GoAmazon 2014/5.

Ano	Limpo	Transição 1	Poluído 1	Transição 2	Poluído 2	Transição 3
<b>2014</b>	11/01 a 01/04	02/04 a 29/07	30/07 a 05/10	06/10 a 27/10	28/10 a 12/12	13/12 a 31/12
	01/01 a 30/07	31/07 a 22/09	23/09 a 30/11	—	—	—

Fonte: Autor

Conforme exposto no Capítulo 1, o cálculo de forçantes radiativas pressupõe que irradiâncias ascendentes no TOA sejam calculadas em estados atmosféricos perturbado e de referência. Para o caso das forçantes radiativas climáticas o estado de referência é aquele encontrado no início das revoluções industriais. As forçantes radiativas que serão calculadas aqui, no entanto, utilizarão irradiâncias que levam em conta os dias mais limpos identificados durante toda a campanha GoAmazon. Esses dias fazem parte dos cenários limpos identificados anteriormente, de modo que é necessário o emprego de alguma técnica estatística que seja capaz de

identificar, também através de análises conjuntas das variáveis de aerossóis, os dias mais limpos dentro dos cenários limpos. Para tal tarefa foi utilizada a técnica de clusterização (ou *clustering*, em inglês), para o agrupamento de dados.

A clusterização consiste basicamente em, dado um conjunto de dados, identificar aqueles que possuem características semelhantes e então separá-los em diferentes grupos (ou *clusters*) que reflitam essas características. O conjunto de dados analisado é, tipicamente, representado em uma planilha eletrônica onde cada coluna corresponde a uma variável e cada linha representa uma observação (geralmente temporal) daquelas variáveis. No caso deste trabalho essas planilhas devem ser geradas a partir das observações das variáveis de aerossol consideradas, as quais foram organizadas em planilhas pré processadas onde as colunas representam os dias e as linhas dão conta das observações (todos os minutos dentro de 24 horas). A clusterização se inicia com uma atribuição aleatória dos chamados centróides, pontos no espaço N-dimensional (onde N é o número de variáveis) ao redor dos quais as distâncias aos outros dados (representados por vetores) serão iteradamente minimizadas. Para que o processo ocorra da maneira desejada é necessário que não haja falhas (dados ausentes ou NaN, de *Not a Number*) no conjunto de dados, e por isso as colunas (dias) que só possuíam NaN foram excluídas da base de dados de cada variável. Apesar disso, ainda podem existir NaN's em algumas observações (no caso deste estudo, minutos onde a medição foi falha ou inexistente), casos que foram preenchidos com a mediana diurna (valores observados entre 06:00 e as 18:00, horário local) de cada dia. Após, foram encontrados os dias em comum dentre todas as variáveis analisadas, de modo que o cálculo das medianas diurnas de cada dia e para cada variável fosse possível de ser realizado somente para esses dias em comum. Uma vez que as variáveis possuem escalas/unidades diferentes, as medianas diurnas foram padronizadas segundo a equação 4.1, onde  $z$  é o dado padronizado,  $x$  é o dado não padronizado,  $\mu$  é a média e  $s$  é o desvio-padrão dos dados. Desse modo a base de dados final foi preparada para a clusterização.

$$z = \frac{(x - \mu)}{s} \quad (4.1)$$

Todos os códigos utilizados para construir as análises aqui mostradas estão disponíveis em <[https://github.com/andre1cps/Tese\\_Doutorado](https://github.com/andre1cps/Tese_Doutorado)> e foram escritos na linguagem *Python* de programação, cujo pacote de aprendizado de máquina *Scikit-learn* implementa o algoritmo de clusterização *K-Means* (LLOYD, 1982). O principal parâmetro dentre todos os hiperparâmetros (características cujos valores são usados para iniciar e controlar o processo de aprendizado de máquina) utilizados na implementação do *K-Means* é o número *k* de grupos (os *clusters*), sendo a determinação de *k* uma tarefa não trivial (e. g. KODINARIYA & MAKWANA, 2013; HAMERLY & ELKAN, 2003). Neste trabalho a determinação de *k* foi realizada através da análise das medianas dos resultados pertencentes a cada *cluster*. Essa abordagem engloba a realização de diversas rodadas do algoritmo *K-Means*, onde cada uma é configurada com uma quantidade inicial *k* diferente. Ao final de cada rodada são calculadas as medianas (para cada variável) de todos os *k* grupos, e essas medianas são comparadas entre si. Esse procedimento é realizado a cada nova configuração inicial de *k*, de modo que o número ótimo de *clusters* ocorre quando a rodada em questão é a última que gera *clusters* cujos conjuntos de medianas não cruzam entre si. Esse resultado, que mostra a ausência de sobreposição (para nenhuma variável) entre os *clusters*, também evidencia o *cluster* onde todas as variáveis possuem as medianas mínimas. As Figuras 24 e 25, onde os números ótimos de *clusters* foram iguais a 2 e 3 (para 2015 e 2014, respectivamente), ilustram esse processo.

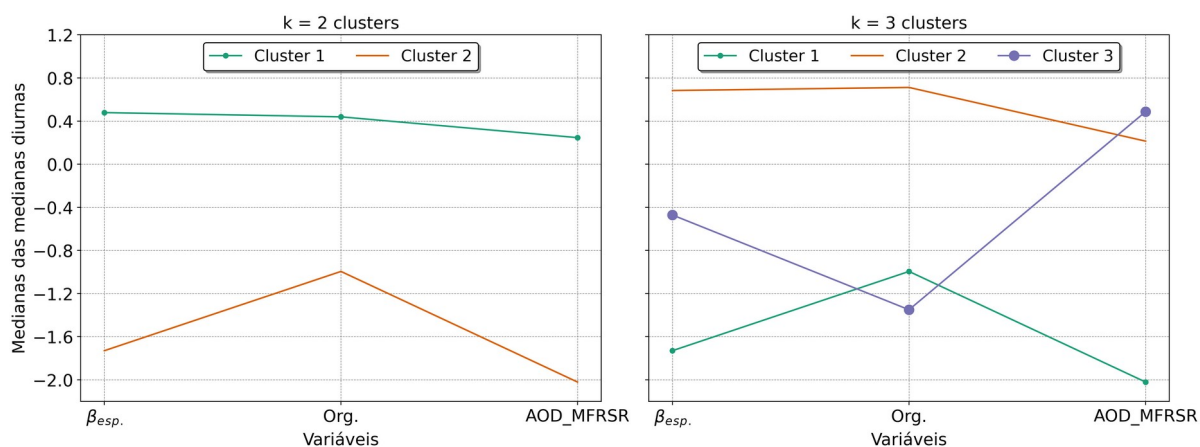


Figura 24 - Análise das medianas de acordo com o número de *clusters* para os conjuntos de dados de  $\beta_{esp.}$ , Org. e AOD (somente do MFRSR, uma vez que para a AERONET havia muitos NaN's) colhidos em 2015. A quantidade ótima de grupos foi de  $k = 2$ , pois para  $k = 3$  há sobreposição das medianas entre os grupos. Fonte: Autor.

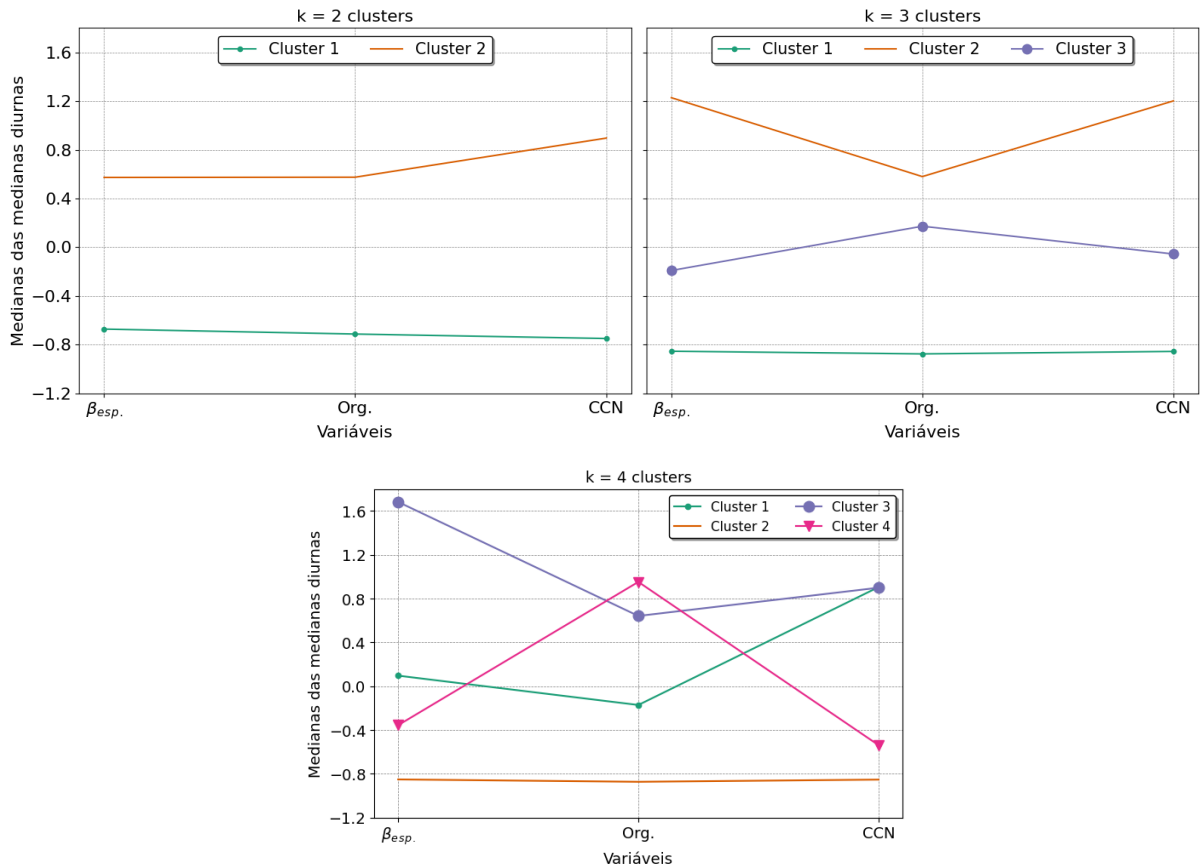


Figura 25 - Análise das medianas de acordo com o número de *clusters* para  $\beta_{esp.}$ , Org. e CCN colhidos em 2014. A quantidade ótima de grupos foi de  $k = 3$ . Fonte: Autor.

A clusterização considerou um total de 3 variáveis para ambos os anos da GoAmazon, o que faz com que os pontos (medianas diurnas padronizadas) pertençam a um espaço tridimensional. Uma maneira simplificada de visualizar a separação entre os grupos oriundos do *K-Means* é plotar os pontos de cada grupo em um espaço bidimensional, sendo necessário então construir esse espaço vetorial. Isso pode ser feito através da técnica de análise de componentes principais (ou PCA, de *Principal Component Analysis*, PEARSON, 1901), que constrói um espaço de dimensão menor (no caso, 2 dimensões) através de funções que combinam os dados e as chamadas componentes principais, variáveis que não são linearmente correlacionadas entre si. Essas componentes atuam como uma representação de dimensão mais baixa dos dados originais, sendo que a realização da PCA culmina em uma perda de variância nos valores resultantes. O algoritmo PCA aqui utilizado também é oferecido pelo *Scikit-learn*. As Figuras 26 e 27, que mostram as representações dos conjuntos das medianas (de 2015 e 2014) nos

espaços bidimensionais, também indicam a porcentagem de variância total dos dados mantida após o emprego do algoritmo PCA.

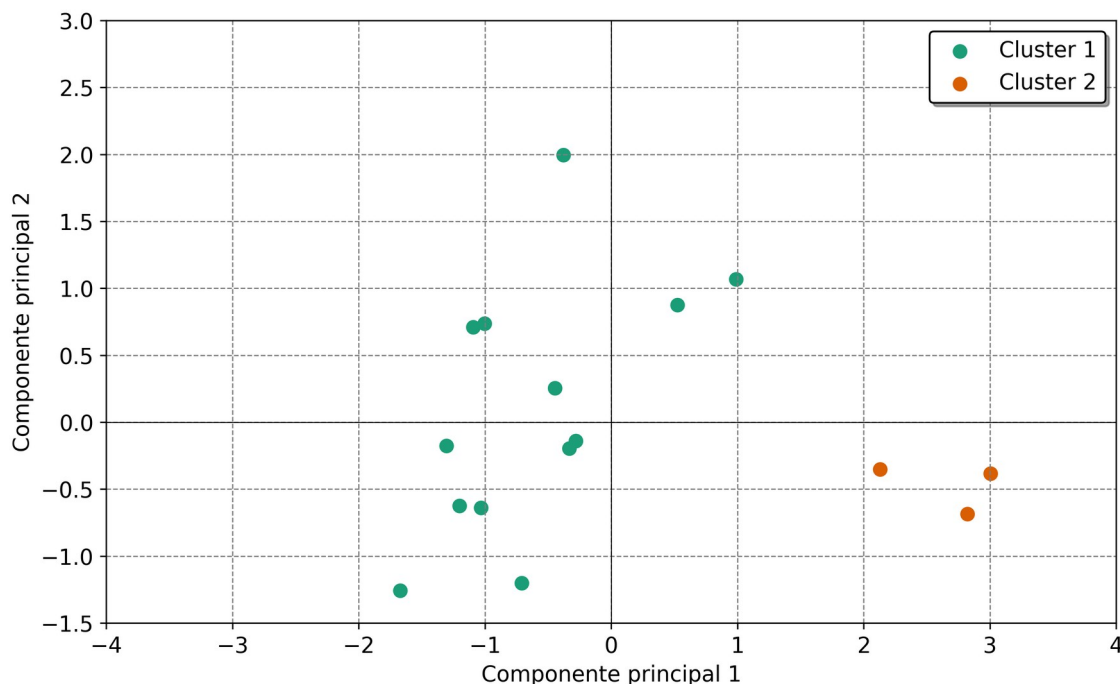


Figura 26 - Grupos (medianas de 2015) discriminados pelo *K-Means* representados no espaço bidimensional obtido pela técnica PCA. A porcentagem de variância total mantida após a PCA foi de 93%. Fonte: Autor.

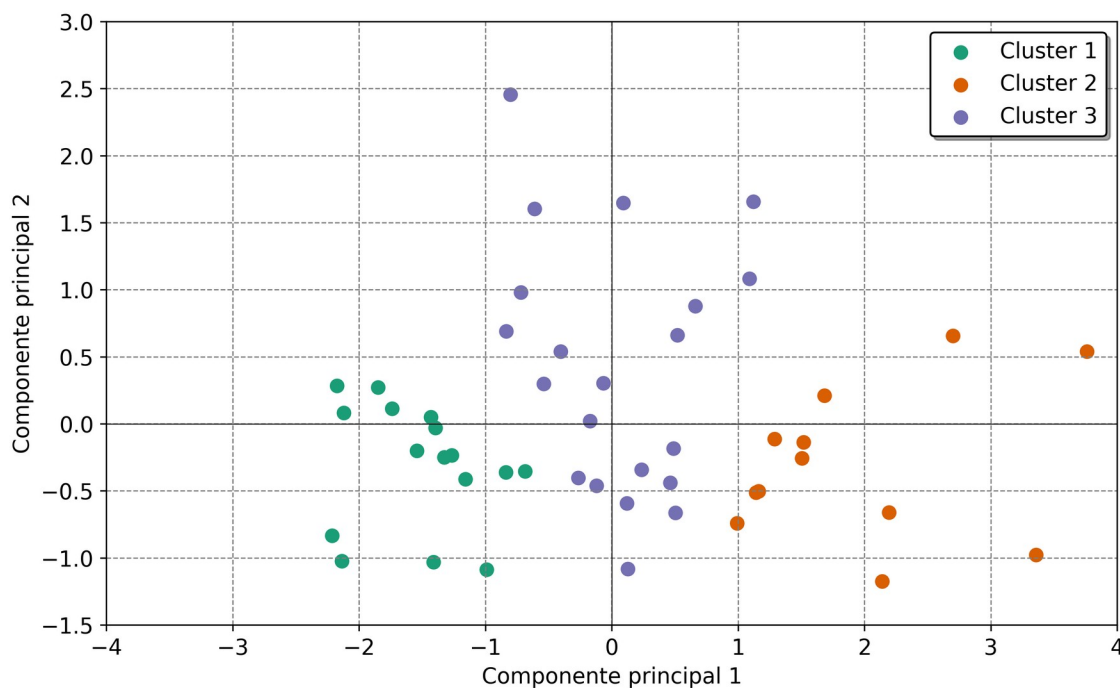


Figura 27 - Mesmo que a Figura 26, só que para dados de 2014. A porcentagem de variância total mantida neste caso foi de 90.1%. Fonte: Autor.



A técnica de clusterização para os cenários limpos de 2014 e 2015 permitiu que os *clusters* correspondentes a esses cenários fossem identificados. As distribuições para cada variável e para cada *cluster* podem ser verificadas nos histogramas do Apêndice A. Já o Quadro 5 exibe, finalmente, os dias pertencentes aos grupos que apresentam, simultaneamente, os menores valores de medianas para as variáveis analisadas. Esses resultados respondem à questão i delineada no Capítulo 2. A média das irradiâncias ascendentes no TOA simuladas para os dias elencados no Quadro 5 será utilizada como um valor de referência para o cálculo das forçantes radiativas durante a GoAmazon.

Quadro 5 - Dias mais limpos dentro dos cenários limpos de 2014 e 2015. Esses dias serão usados como uma referência para o cálculo de forçantes radiativas.

Ano/Mês	Jan.	Fevereiro	Março	Abril	Maió
2014	-----	11, 17, 23, 24, 26 e 28	02, 06, 07, 08, 12, 20, 21, 22, 25 e 28	-----	-----
2015	-----	25	-----	-----	03 e 04

Fonte: Autor.

#### 4.4 - Obtenção de parâmetros microfísicos de nuvens

As irradiâncias ascendentes no TOA serão obtidas através da resolução da equação de transferência radiativa na atmosfera (ETR), tarefa realizada pelo conjunto de códigos de transferência radiativa *LibRadtran* (EMDE et al., 2016). Esse conjunto de códigos utiliza perfis verticais de LWC e de raio efetivo de gotas de nuvem ( $r_{\text{eff}}$ ) para simular as nuvens na atmosfera, o que pode ser feito utilizando valores teóricos ou experimentais. Os valores de LWC, TWC,  $N_g$  e  $n_g$  foram as propriedades de nuvens obtidas pela instrumentação no avião G-1, enquanto para a instrumentação em solo essas propriedades foram a CBH, a CTH, o LWP e a  $f_c$ . Dado isso, a simulação de nuvens a partir do uso de dados experimentais poderia ser realizada usando somente as medidas obtidas pelo G-1 em 2014, o que restringiria em demasia a disponibilidade de dados. Neste trabalho, no entanto, esse problema foi contornado através do cálculo de LWC e do estudo da sua relação com o  $r_{\text{eff}}$  das nuvens. Os detalhes são expostos a seguir.

Valores de LWC e  $n_g$  para os 29 dias em que o G-1 sobrevoou a região analisada acima do T3 foram considerados para derivar as relações entre LWC e  $r_{eff}$  das nuvens quentes. A filtragem dessas nuvens foi iniciada com a seleção dos pontos (medidas realizadas a cada segundo) onde  $N_g$ , LWC\_021 e LWC\_083 fossem simultaneamente positivos, garantindo assim que o valor em questão correspondesse a alguma nuvem. A seleção de nuvens que só continham água líquida foi realizada através da filtragem dos pontos onde o valor de conteúdo de gelo na nuvem (IWC, dado pela diferença entre TWC e LWC\_083) fosse nulo. A escolha do LWC\_083 em detrimento do LWC\_021 ocorreu porque, para a maioria dos dias analisados, havia maior oferta de medidas (ao longo do tempo) por parte do conjunto de dados LWC\_083. Além disso, pontos temporais onde  $N_g$  era menor que  $0.3 \text{ partículas/cm}^3$  e onde LWC\_083 era menor que  $0.02 \text{ g/m}^3$  foram desconsiderados, evitando assim pontos experimentais relativos a neblina ou a nuvens muito tênues que por acaso o avião tenha atravessado. O cálculo de  $r_{eff}$  foi realizado através da equação 3.23 (reescrita abaixo como equação 4.2, com as somatórias no lugar das integrais), onde os termos  $r^2$  e  $r^3$  foram calculados a partir do tamanho médio referente a cada um dos 20 intervalos de tamanho (bins) dentro dos quais os valores de  $n_g$  estavam discriminados.

$$r_{eff} = \frac{\sum_1^{20} r_i^3 n_g(r_i) dr}{\sum_1^{20} r_i^2 n_g(r_i) dr} \quad (4.2)$$

O cálculo de  $r_{eff}$  possibilitou o estudo da sua relação com o LWC nas nuvens. A dispersão de pontos (LWC\_083 em função do  $r_{eff}$ ) para as IOP 1 e 2 é apresentada na Figura 28, a partir da qual não é possível estimar qualquer relação simples (função linear ou quadrática, por exemplo) de antemão. Sendo assim, foram construídas faixas igualmente espaçadas para os valores de LWC ( $0.02$  a  $1.02 \text{ g/m}^3$ , com 20 intervalos de tamanho igual a  $0.05 \text{ g/m}^3$ ), dentro das quais foram calculadas medianas de LWC e de  $r_{eff}$ . Os resultados desse procedimento podem ser conferidos nas dispersões de pontos (no caso, das medianas nas faixas) mostradas na Figura 29.

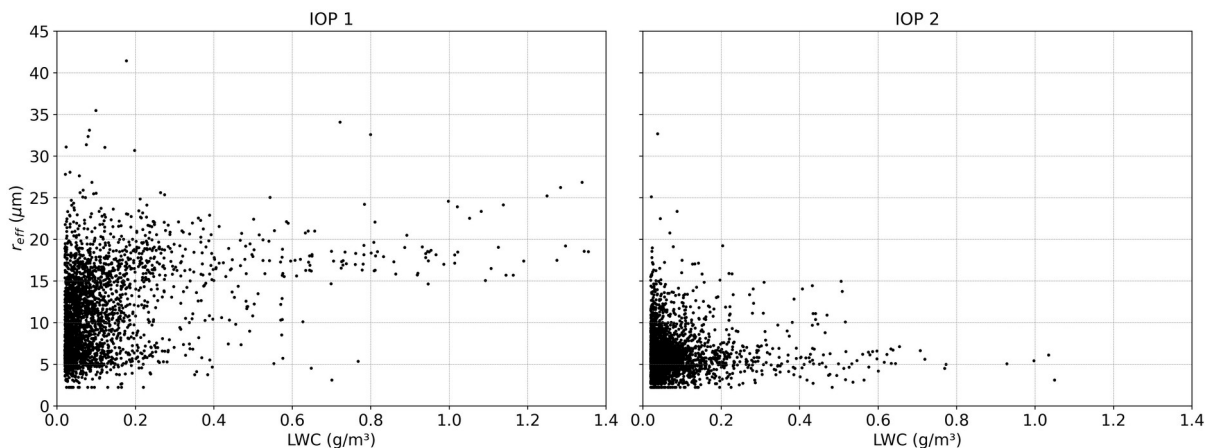


Figura 28 - Dispersão de pontos (LWC x  $r_{eff}$ ) referentes a nuvens líquidas atravessadas pelo G-1 durante as IOP 1 e 2 (esquerda e direita, respectivamente) de 2014. Fonte: Autor.

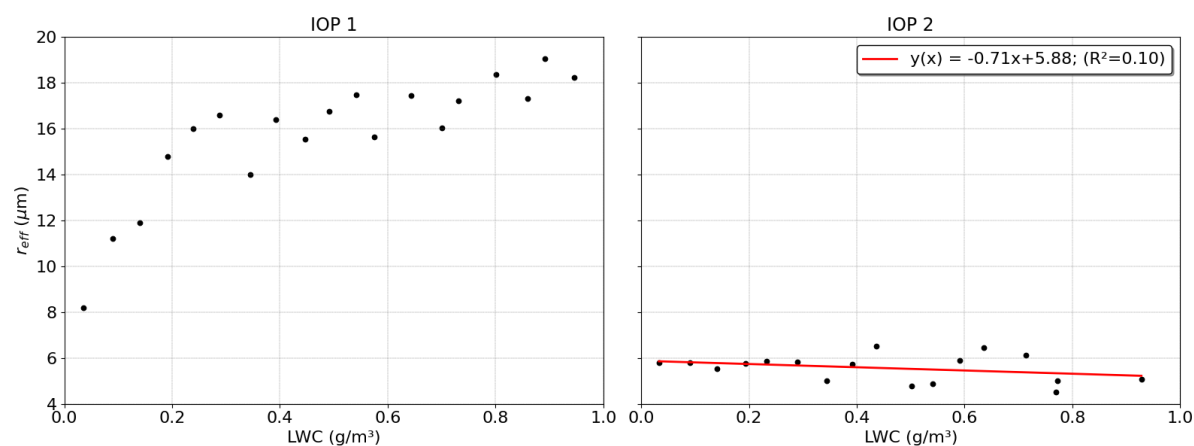


Figura 29 - Dispersão das medianas (para IOP 1 e 2, à esquerda e à direita, respectivamente) calculadas para as 20 faixas de LWC. A reta vermelha representa o ajuste linear para as medianas referentes aos pontos colhidos durante a IOP 2. A legenda mostra a qualidade do ajuste ( $R^2$ ), assim como os valores dos coeficientes linear e angular obtidos. Fonte: Autor.

A partir da Figura 29 é possível perceber que a relação entre o LWC e o  $r_{eff}$  para as nuvens quentes se dá de maneira diferente para as IOP 1 e 2, as quais são, respectivamente, menos e mais afetadas por aerossóis antropogênicos e também por diferentes condições dinâmicas e termodinâmicas da atmosfera. Para a IOP 1 a relação não é linear, enquanto para a IOP 2 parece ser linear, sendo que o  $r_{eff}$  não depende do LWC, conforme o valor baixo de correlação indica.

Analogamente a este trabalho, REID et al. (1999) também buscaram compreender como se dava a relação entre LWC e  $r_{eff}$  de nuvens quentes na

Amazônia brasileira. Esses autores também utilizaram dados provenientes de instrumentação *in-situ* com um avião, de modo que o foco das análises foram as nuvens quentes (estratiformes e cumuliformes) cujas bases se encontravam dentro da camada limite planetária. Os conjuntos de dados analisados pelos autores foram obtidos para os meses de agosto e setembro de 1995, período no qual a atmosfera amazônica é tipicamente afetada pela fumaça e os aerossóis de queima de biomassa. Ao plotar os pares ( $r_{eff}$  X LWC) relativos a nuvens *cumulus* e *stratocumulus*, REID et al. (1999) obtiveram dispersões semelhantes aquela apresentada no primeiro gráfico (IOP 1) da Figura 29, mostrando que a modelagem da relação ( $r_{eff}$  X LWC) para nuvens quentes não é fácil de ser realizada. Os autores indicam que após diversas tentativas de ajuste de funções (linear, logarítmica, exponencial, dentre outras) a questão foi solucionada através do emprego da função arco cosseno hiperbólico, a qual também foi utilizada para ajustar as medianas referentes aos dados da IOP 1 aqui neste trabalho (ver Figura 30).

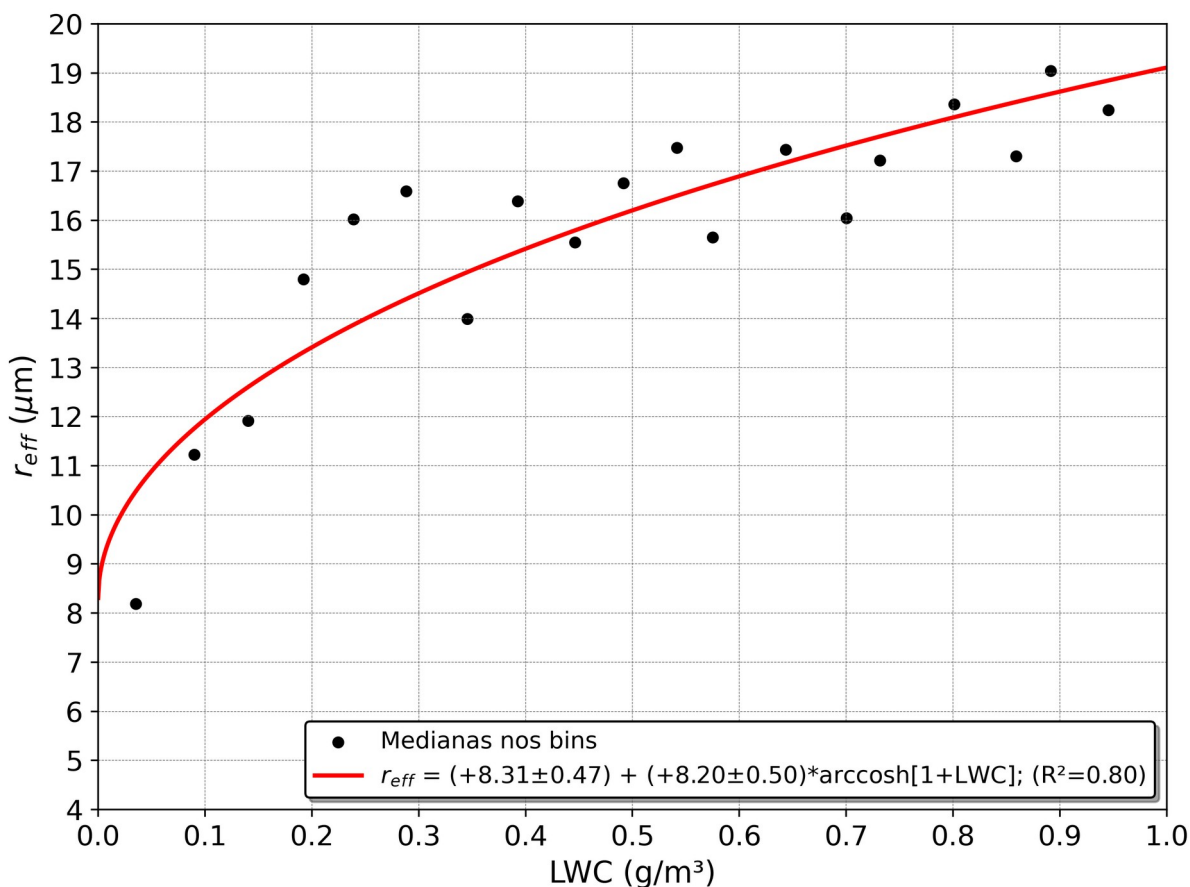


Figura 30 - Dispersão das medianas calculadas (para as 20 faixas) a partir dos dados medidos durante a IOP 1. A curva vermelha representa a função (olhar legenda) que melhor se ajustou aos pontos. Fonte: Autor.

Além da relação entre  $r_{eff}$  e LWC, REID et al. (1999) também levaram em consideração o apontamento de LIU & HALLETT (1997) de que, ao estudar a relação entre  $r_{eff}$  e a razão  $LWC/N_g$ , processos como o entranhamento de ar seco em diferentes tipos de nuvens poderiam ser melhor evidenciados. Dado isso, REID et al. (1999) construíram gráficos (com escalas logarítmicas) de  $r_{eff}$  em função de  $LWC/N_g$  e ajustaram os pontos através de funções exponenciais. Os resultados dos ajustes são mostrados nas expressões 4.3 e 4.4, as quais se referem a nuvens *cumulus* e *stratocumulus*, respectivamente.

$$r_{eff} = (6.67 \pm 0.02)(LWC/N_g)^{0.31 \pm 0.02} \quad (4.3)$$

$$r_{eff} = (7.50 \pm 0.05)(LWC/N_g)^{0.33 \pm 0.01} \quad (4.4)$$

A obtenção de valores de  $r_{eff}$  em função de LWC para a IOP 2 é mais difícil que para a IOP 1, conforme aponta a Figura 29. O primeiro passo nesse caso foi calcular os termos  $LWC/N_g$  diários para a IOP 2 e então utilizar as funções 4.3 e 4.4 para obter os  $r_{eff}$  das nuvens quentes presentes nos dias da IOP 2. Todos os pontos resultantes (dois valores de  $r_{eff}$  para cada LWC), assim como as medianas calculadas nos bins, são apresentados no gráfico da Figura 31. A Figura 32, por sua vez, mostra o ajuste da função arco cosseno hiperbólico a essas mesmas medianas, caso em que a porcentagem de variância dos dados mantida é maior.

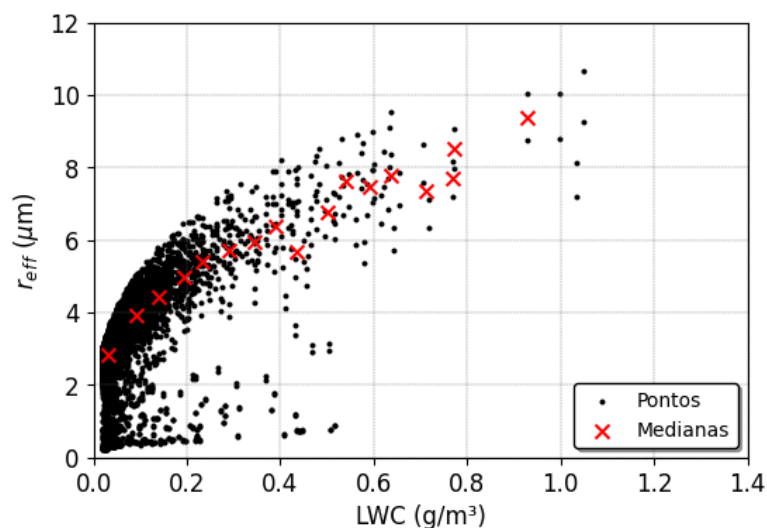


Figura 31 - Dispersão de  $r_{eff}$  x LWC e das medianas para os valores obtidos através das equações 4.3 e 4.4 para todos os dias da IOP 2. Fonte: Autor.

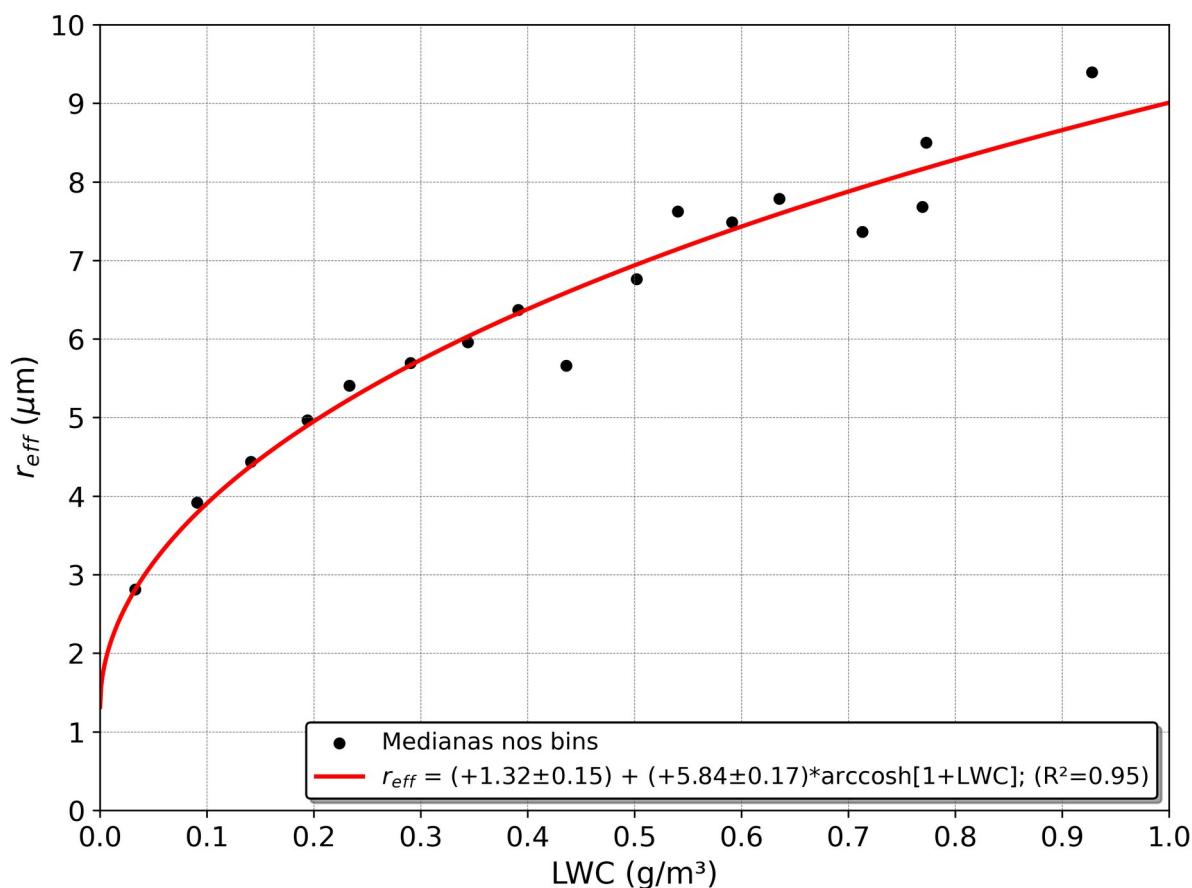


Figura 32 - Dispersão das medianas calculadas (para as 20 faixas) a partir dos dados oriundos das equações 4.3 e 4.4 para medições feitas durante a IOP 2. A curva vermelha representa a função (olhar legenda) que melhor se ajustou aos pontos. Fonte: Autor.

As relações entre  $r_{eff}$  e LWC mostradas nas Figuras 30 e 32 resultam das análises de  $N_g$ ,  $n_g$  e LWC (medidos pelo G-1) apresentadas anteriormente. Valores de LWC diferentes dos obtidos pelo G-1 podem ser calculados, entretanto, usando os dados de LWP, CBH e CTH medidos a partir do solo. Isso foi realizado através do emprego da relação  $\text{LWC} = \text{LWP} / (\text{CTH} - \text{CBH})$  (equação 3.25), o que gerou novos valores de LWC, agora obtidos inteiramente a partir dos conjuntos de dados oriundos da instrumentação no solo. Esses novos valores de LWC foram inseridos nas equações apresentadas nas legendas das Figuras 30 e 32, gerando assim novos valores para os  $r_{eff}$  das nuvens quentes observadas durante as IOP's 1 e 2, respectivamente. O procedimento para a construção dessa nova base de dados pôde então ser estendido para todos os dias dos períodos limpo e poluídos delimitados pelos dias elencados no Quadro 4, aumentando assim a oferta de pontos ( $r_{eff}$  em função de LWC) para grande parte dos anos de 2014 e 2015. Para os

períodos de transição foram feitas combinações a partir de cálculos de porcentagem que levavam em consideração o emprego de ambas as equações. Para os primeiros dias da primeira transição de 2014, por exemplo, os valores calculados de  $r_{\text{eff}}$  continham um maior peso proveniente da equação do período limpo, enquanto que para os últimos dias esse peso foi proporcionalmente maior para os resultados calculados através da equação referente ao período mais poluído. Essa abordagem culminou em uma base de dados (pares  $r_{\text{eff}}$  X LWC) estendida para praticamente todos os dias da GoAmazon 2014/5, possibilitando assim a modelagem de nuvens quentes para praticamente a totalidade da campanha e respondendo à questão ii elencada no Capítulo de objetivos.

#### 4.5 - Modelagem de nuvens quentes

A seleção das nuvens se deu por meio da filtragem dos dados de LWC e de CTH. O intervalo [0.2; 0.4] ( $\text{g}/\text{m}^3$ ) para LWC abrange valores típicos de nuvens *cumulus* e de nuvens estratiformes em ambientes continentais limpos e poluídos (HESS et al., 1998), constituindo-se assim no primeiro filtro aplicado aos dados de LWC. Além disso, somente nuvens com CTH menor ou igual a 3 km foram consideradas, de modo que os valores finais fossem relativos somente às nuvens quentes.

A Figura 33 mostra diagramas conceituais desenvolvidos por ROSENFELD & WOODLEY (2003) descrevendo como cinco estágios microfísicos em nuvens convectivas são influenciados por quantidades crescentes de aerossóis disponíveis na atmosfera. Nesta figura fica claro que o  $r_{\text{eff}}$  das nuvens líquidas (temperatura maior que  $0^\circ\text{C}$ ) aumenta conforme altitudes maiores na atmosfera, sendo esse o modelo adotado para simular as nuvens quentes médias para cada um dos dias da GoAmazon. A maneira escolhida para representar o aumento de  $r_{\text{eff}}$  de acordo com a altura foi configurar essas nuvens com 2 camadas horizontais, tomando cuidado para que os valores de  $r_{\text{eff}}$  e LWC fossem os maiores na camada mais elevada. A base das nuvens foi configurada segundo o percentil 12.5 dos valores de CBH, enquanto a altura do topo correspondeu ao percentil 87.5 da distribuição de dados de CTH. Já a altura da região central equivale à média aritmética entre os valores de altura da base e do topo. Os percentis 12.5 e 87.5 das distribuições de  $r_{\text{eff}}$  e LWC (pares  $r_{\text{eff}}$  X LWC obtidos pelos métodos apresentados na seção 4.4) também foram

selecionados para descrever, respectivamente, os valores de  $r_{eff}$  e LWC na base e no topo, enquanto a região central foi representada pela mediana dessas mesmas distribuições. O Quadro 6 mostra um exemplo de nuvem configurada segundo as estatísticas supracitadas. Tais estatísticas foram utilizadas para simular nuvens representativas para a maioria dos dias da GoAmazon 2014/5.

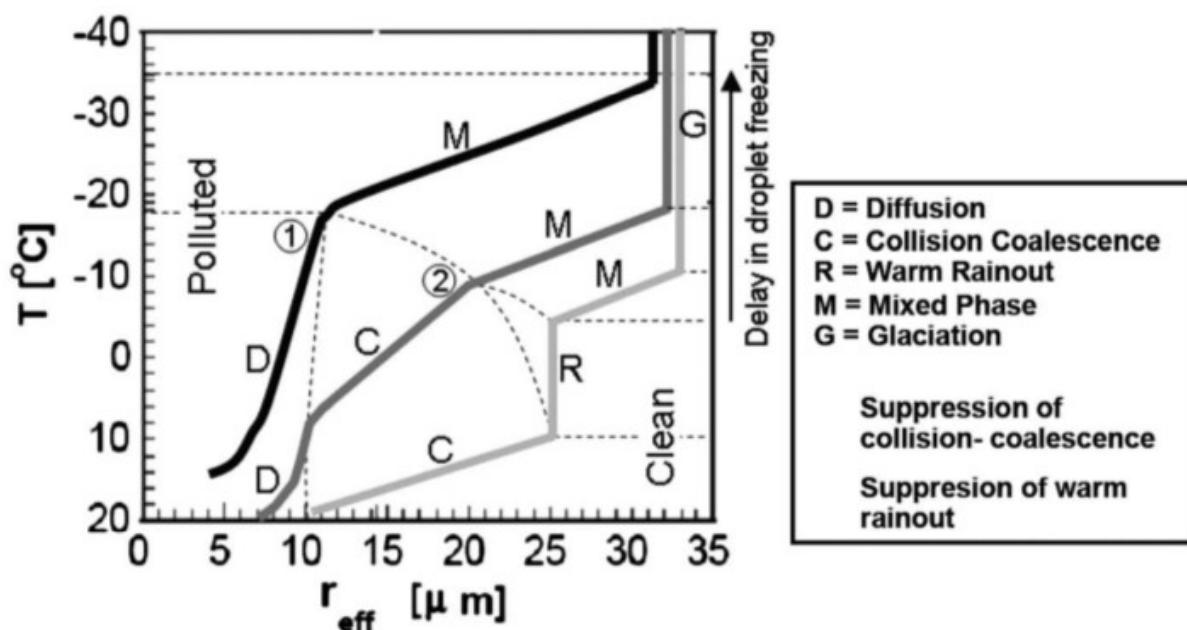


Figura 33 - Zonas microfísicas de nuvens convectivas e seu comportamento em função de diferentes concentrações volumétricas de aerossóis na atmosfera. A curva mais clara à direita corresponde a ambientes marítimos com baixa concentração de CCN e IN. A curva central representa ambientes com concentrações moderadas de aerossóis na atmosfera e a curva mais escura à esquerda corresponde a ambientes continentais muito poluídos. (Adaptado por MARTINS et al., 2011, de ROSENFELD & WOODLEY, 2003).

Quadro 6 - Configuração da nuvem para o dia 11/03/2014, durante a estação limpa. Os valores foram obtidos conforme exposto ao longo desta seção.

Região da nuvem/ Propriedade	Altura (km)	LWC (g/m <sup>3</sup> )	$r_{eff}$ (μm)
Topo	2.30	0.35	14.99
Centro	1.39	0.28	14.34
Base	0.47	0.22	13.61

Fonte: Autor



## 4.6 - Simulações de transferência radiativa na atmosfera

A principal ferramenta presente no *LibRadtran* é o *uvspec*, código capaz de processar cálculos para comprimentos de onda ( $\lambda$ ) nas regiões dos espectros ultravioleta, visível e infravermelho. Para utilizar o *uvspec* o arquivo de entrada deve conter informações que descrevam o estado atmosférico estudado, a banda de  $\lambda$  analisada, o método de resolução da equação de transferência radiativa (ETR) e os parâmetros de saída desejados. Isso é feito através da configuração de parâmetros de entrada como os perfis verticais de gases traço, de temperatura e de pressão; as características de nuvens (de água e/ou de gelo); as características de aerossóis; e as variáveis relativas à superfície, como o albedo (para todas as opções disponíveis consultar o manual<sup>8</sup> do *LibRadtran*). A partir dessas informações o *uvspec* realiza os cálculos para obtenção dos parâmetros ópticos e físicos (das gotas de nuvens e/ou das partículas de aerossol) necessários à resolução da ETR, tarefa realizada pelo método (ou *solver*) discriminado no arquivo de entrada. Dentre os métodos de solução disponíveis no *LibRadtran* o utilizado neste trabalho é o DISORT (de *DIScrete Ordinate Radiative Transfer solver*), desenvolvido por CHANDRASEKHAR (1960) e STAMNES et al. (1988), cuja implementação (STAMMES et al., 2000) no *LibRadtran* foi aperfeiçoada por BURAS et al. (2011). O DISORT soluciona a equação 3.43 (ETR monocromática unidimensional com aproximação de atmosfera plano paralela) após os ajustes das condições de contorno (campos de radiação na superfície e no TOA).

A resolução espectral padrão no *uvspec* é implementada através do método REPTRAN (GASTEIGER et al., 2014), que pode ser configurado nos modos *fine*, *medium* e *coarse* (larguras de banda iguais a 1/cm, 5/cm e 15/cm, respectivamente), sendo a resolução *medium* a escolhida para as simulações aqui analisadas. O intervalo de  $\lambda$  escolhido para tais simulações vai de 300 a 1000 nm, compreendendo assim todo o espectro visível e uma pequena faixa do infravermelho térmico. Já o espectro solar utilizado contempla  $\lambda$  de 250 a 10000 nm, com resolução de 0.1 nm.

O REPTRAN é o método padrão utilizado pelo *uvspec* para descrever o espalhamento causado pelas moléculas da atmosfera (espalhamento *Rayleigh*), o que pode ser feito nos espectros solar e terrestre. Para isso é necessário fornecer os

---

<sup>8</sup> <<http://www.libradtran.org/doc/libRadtran.pdf>>

perfis dos principais gases ( $O_2$ ,  $O_3$ ,  $NO_2$ ,  $CO_2$ , vapor d'água) presentes na atmosfera. O arquivo de “atmosfera tropical padrão” (afglt.dat) disponibilizado pelo *LibRadtran* já fornece os perfis verticais desses gases, além dos perfis de densidade do ar, temperatura e pressão (ver Figuras 34 e 35). Já os perfis de componentes mais rarefeitas, como  $N_2O$ ,  $CO$  e  $CH_4$ , por exemplo, são oriundos de dados referentes a uma “atmosfera padrão norte-americana”. Levando isso em consideração, os dados relativos à atmosfera tropical disponibilizados pelo grupo de dados de observação da Terra (*Earth Observation Data Group*, EODG) do departamento de física da Universidade de Oxford (<<http://eodg.atm.ox.ac.uk/RFM/atm/minor.atm>>) foram utilizados para a confecção de novos perfis para os gases em questão (Figura 36). Uma primeira simulação visando descrever o espalhamento *Rayleigh* (espectro solar) no TOA foi então realizada, sendo os resultados exibidos na Figura 37.

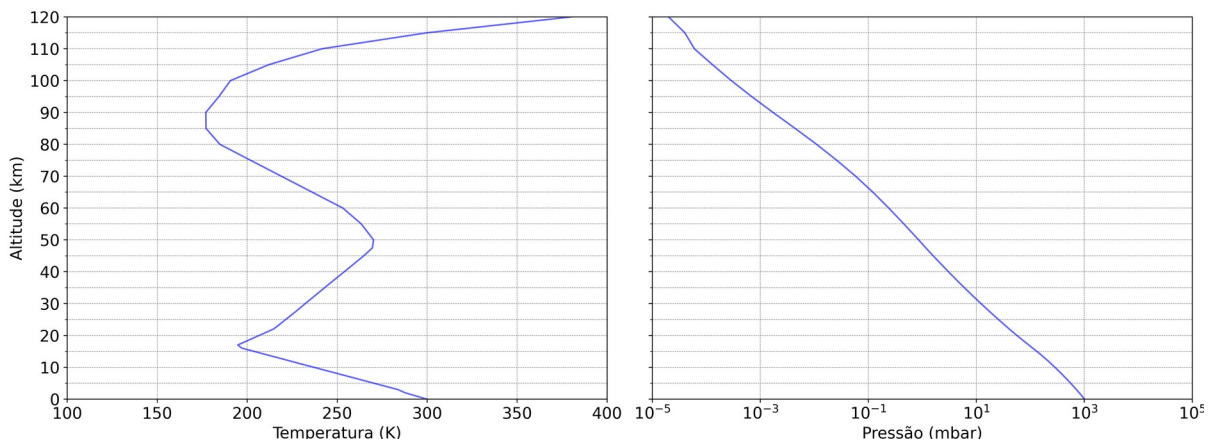


Figura 34 - Perfis de temperatura (à esquerda) e pressão (à direita) para a atmosfera tropical padrão (arquivo afglt.dat) disponível no pacote *LibRadtran*. Fonte: Autor.

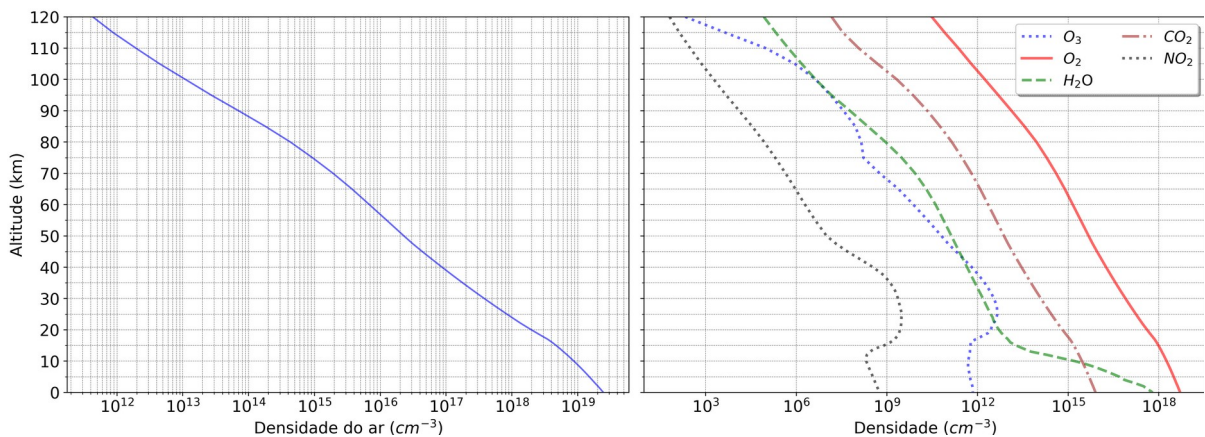


Figura 35 - Densidades volumétricas (ar,  $O_2$ ,  $O_3$ ,  $NO_2$ ,  $CO_2$  e vapor d'água) para a atmosfera tropical padrão disponibilizada pelo *LibRadtran*. Fonte: Autor.

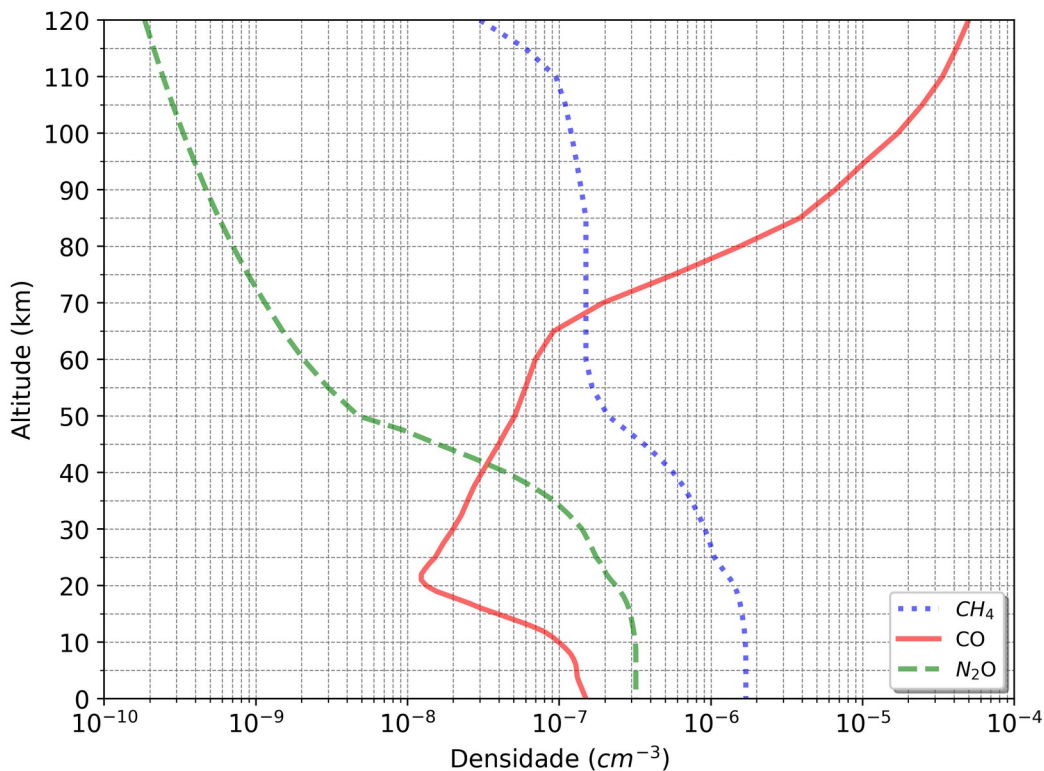


Figura 36 - Perfis verticais de,  $\text{N}_2\text{O}$ ,  $\text{CH}_4$  e  $\text{CO}$  para a “atmosfera tropical padrão” disponibilizada pela Universidade de Oxford. Fonte: Autor.

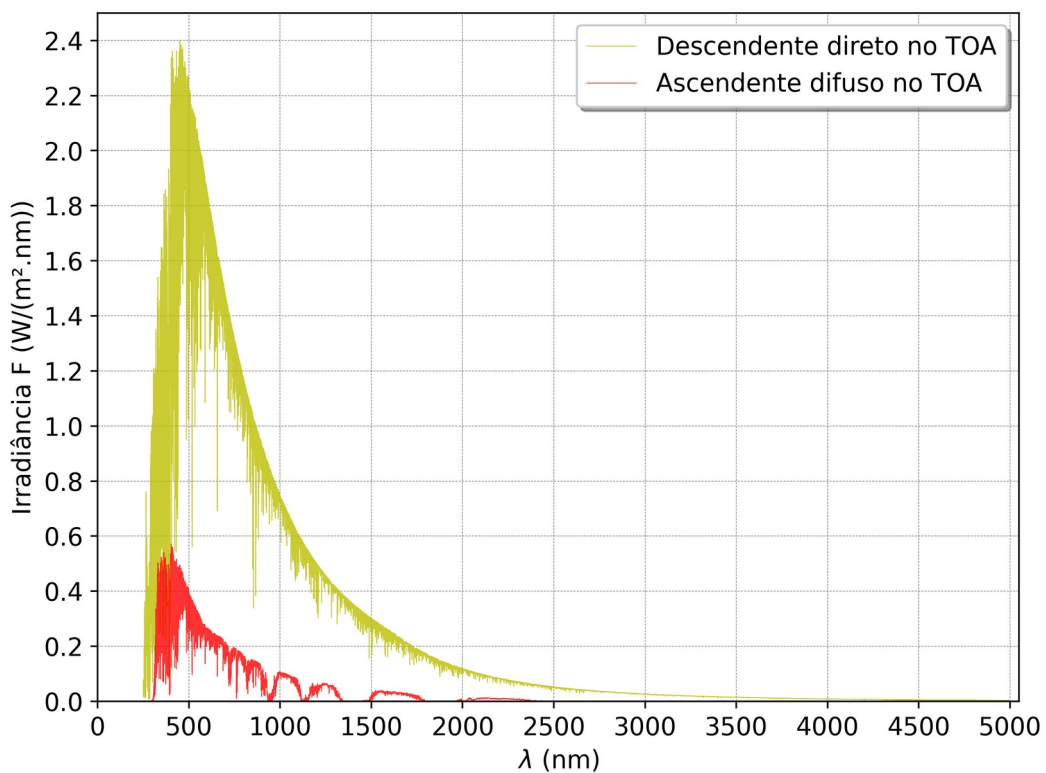


Figura 37 - Componentes direta (descendente) e difusa (ascendente) simuladas no TOA para o sítio T3 no dia 15/02/2014 às 12:00 (horário local) e com albedo de superfície igual a 14%. Fonte: Autor.

A Figura 38 apresenta um exemplo típico de arquivo (extensão .INP) utilizado para simular as nuvens quentes (médias representativas) de cada dia da GoAmazon. As linhas 10, 11 e 12 desse arquivo mostram que as simulações foram configuradas para a localização e a altitude exatas do sítio T3. Levando em consideração que o T3 fica em uma região cercada por floresta, o valor de entrada do albedo da superfície foi de 14%. O valor de razão de mistura de CO<sub>2</sub> foi atualizado para o valor médio estimado para 2014 e 2015. Todas as simulações foram configuradas para representar as irradiâncias ascendentes no TOA às 16:00 horas UTC (12:00 no horário local), de modo que o Sol estivesse sempre próximo ao zênite. Além disso, o valor de fração de cobertura do céu ( $f_c$ ) foi de 100% para todas as simulações, considerando assim que as nuvens quentes estratiformes simuladas encobriam todo o céu às 12:00 horas do dia em questão. Uma vez que as simulações foram realizadas para quase todos os dias da GoAmazon, os resultados obtidos são organizados de modo a possibilitar a realização do cálculo das forçantes radiativas instantâneas devido ao primeiro efeito indireto dos aerossóis.

```
##### _ATMOSFERA_ #####
atmosphere_file ../data/atmmod/afglt.dat
##### _ESPECTRO SOLAR_ #####
source solar ../data/solar_flux/kurudz_0.1nm.dat
mol_abs_param reptran medium
rte_solver disort
number_of_streams 16
wavelength 300.0 1000.0
##### _LOCAL_DE_ESTUDO_ #####
altitude 0.05
longitude W 60 35 55
latitude S 03 12 47.82
time 2014 04 01 16 00 00
zout TOA
albedo 0.14
##### _NUVENS_ #####
wc_file 1D
/home/andre/libRadtran-2.0.4/codigos_doutorado/nuvens_stratus_modelo4/limpos/
stratus_0028_limpa_01_04_2014.csv
cloud_overlap off
cloudcover wc 1
##### _GASES_ #####
mol_file N2O ../data/atmmod/afglt_n2o_vmr.csv vmr
mol_file CH4 ../data/atmmod/afglt_ch4_vmr.csv vmr
mol_file CO ../data/atmmod/afglt_co_vmr.csv vmr
mixing_ratio CO2 397.0 ### Keeling curve (<https://keelingcurve.ucsd.edu/>)
##### _SAÍDAS_ #####
output_user lambda zout albedo T T_sur TCC sza edir eup
quiet
```

Figura 38 - Exemplo de configuração utilizada para realizar as simulações no *LibRadtran*. Fonte: Autor.

#### 4.7 - Cálculo de forçantes radiativas instantâneas

O cálculo das forçantes radiativas depende de valores de irradiância  $F$  (ascendentes no TOA) integrados ao longo de uma faixa de comprimentos de onda pertencente ao espectro eletromagnético. A faixa aqui escolhida ( $\lambda$  indo de 300 a 1000 nm) contempla todo o espectro visível e uma pequena faixa do infravermelho, sendo que o *LibRadtran* obteve resultados espectrais e integrados somente para essa faixa específica. Os valores de  $F$ , que foram calculados para a maioria dos dias da GoAmazon, não levam em conta, porém, a variação temporal da distância ( $d$ ) entre a Terra e o Sol. A correção necessária foi então estabelecida através da equação 4.5, que corresponde a uma atualização da equação 3.11 para o caso de atmosfera plano paralela e para uma faixa restrita de  $\lambda$ .

$$F_{\text{corrigida}} = \frac{d^2 F_{\text{LibRadtran}}}{\cos(\theta_0)} \quad (4.5)$$

Os valores de  $d$  e  $\theta_0$  inseridos na equação 4.5 foram calculados por planilhas disponibilizadas eletronicamente<sup>9</sup> pelo laboratório de monitoramento global (*Earth System Research Laboratories*, ESRL) da Administração Oceânica e Atmosférica dos EUA (NOAA, de *National Oceanic and Atmospheric Administration*). Tais planilhas utilizam informações acerca de qualquer ponto na Terra (como latitude, longitude, hora analisada e fuso horário) para realizar o cálculo de diversas variáveis astronômicas do local em questão, de modo que os dados de  $d$  e  $\theta_0$  foram localizados especificamente para o sítio T3. De posse dessas informações e dos valores simulados de  $F$  (“ $F_{\text{LibRadtran}}$ ”) é possível então calcular os dados corrigidos de  $F$  (“ $F_{\text{corrigida}}$ ”), os quais levam em conta a variação de  $d$  ao longo dos dias de 2014 e de 2015 (Figura 39).

As forçantes radiativas instantâneas correspondem a variações do fluxo radiativo líquido no TOA. Neste estudo tais variações ocorrem devido à influência que aerossóis antropogênicos exercem sobre a parametrização microfísica das nuvens quentes. As forçantes então são dadas pela diferença entre as irradiâncias (corrigidas pela equação 4.5) em um estado de referência e um estado perturbado

---

<sup>9</sup> <<https://gml.noaa.gov/grad/solcalc/calcdetails.html>>

pelos aerossóis de origem antrópica (equação 4.6). O primeiro destes estados pode se referir ao conjunto de dias apresentado no Quadro 5, de maneira que a irradiância média calculada a partir das irradiâncias simuladas para as nuvens representativas destes dias corresponda ao cenário mais limpo possível encontrado durante os dois anos da campanha GoAmazon 2014/5. Dada a impossibilidade de haver um estado atmosférico totalmente limpo na área do T3, o estado perturbado é, por sua vez, representado por todos os outros dias de 2014 e 2015. Os resultados para as forçantes radiativas instantâneas devido ao primeiro efeito indireto de aerossóis antropogênicos são apresentados no Capítulo 5.

$$IRF = F_{corrigida}^{ref.} - F_{corrigida}^{pert.} \quad (4.6)$$

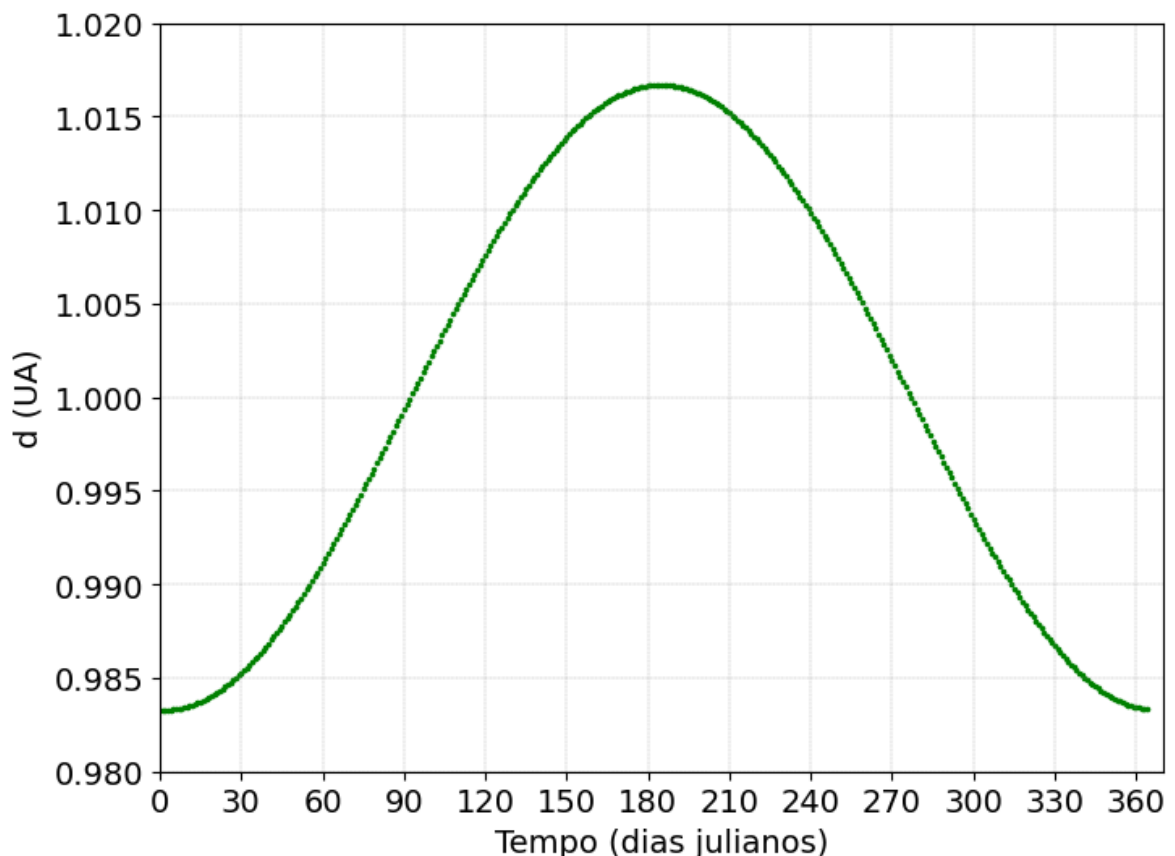


Figura 39 - Variação diária da distância entre a Terra e o Sol para o ano de 2014. Os dados foram localizados para o sítio T3 e os resultados de  $d$  (em Unidades Astronômicas, UA) calculados pelas planilhas ofertadas pela NOAA. Fonte: Autor.

## Capítulo 5 - Resultados e discussões

Este Capítulo contempla todos os resultados obtidos ao longo desta pesquisa. Primeiramente são exibidas as distribuições de LWC e  $r_{\text{eff}}$ , que foram utilizadas para parametrizar as nuvens quentes no *LibRadtran*. Após, são elencadas as irradiâncias espectrais e integradas obtidas pelas simulações. Na sequência são apresentados os resultados de forçante radiativa instantânea devido ao primeiro efeito indireto de aerossóis (IRF ou  $\text{IRF}_{\text{aci}}$ ). Nessa parte específica são expostos os resultados referentes ao meio dia local, assim como as distribuições anuais e conforme os cenários limpo e poluído. As IRF obtidas de acordo com uma segunda referência de atmosfera limpa identificada durante a IOP 2 (através do uso dos dados medidos pelo avião HALO) também são apresentadas, e algumas discussões acerca dos resultados obtidos encerram o Capítulo.

### 5.1 - LWC e raio efetivo de gotas em nuvens quentes

Como apresentado ao longo do Capítulo 4, a parametrização das nuvens quentes se deu por meio da filtragem dos valores de LWC e de CTH, sendo o intervalo [0.2; 0.4] ( $\text{g}/\text{m}^3$ ) e o valor máximo de 3 km os escolhidos para essas variáveis. Além disso, somente os dados referentes aos minutos do período diurno (06:00 às 18:00, no horário local) foram considerados. Após a aplicação desses filtros a coleção dos valores de LWC e de  $r_{\text{eff}}$  para cada dia de cada cenário foi realizada, resultando assim em histogramas que contemplam as distribuições relativas a cada cenário de cada ano da campanha GoAmazon 2014/5.

A Figura 40 apresenta os histogramas de LWC e  $r_{\text{eff}}$ , os valores de assimetria e curtose destas distribuições e os diagramas de caixa (ou *boxplots*) com a média, a mediana e os percentis 25 e 75 para o cenário limpo de 2014. As Figuras 41, 42, 43 e 44, também relativas a 2014, exibem os histogramas e as estatísticas referentes aos períodos “transição 1”, “poluído”, “transição 2” e “transição 3”, respectivamente. Em todas essas figuras é importante notar que as distribuições de LWC possuem formato bastante próximo entre si, sendo que a contagem de dados diminui conforme o valor de LWC aumenta. Além disso, as medianas admitem valores bastante próximos entre si, praticamente não variando (medianas ficam entre 0.27 e 0.28  $\text{g}/\text{m}^3$ ) de acordo com os diferentes cenários. Este fato é importante pois é a partir da constância de LWC que o primeiro efeito indireto de aerossóis é definido.

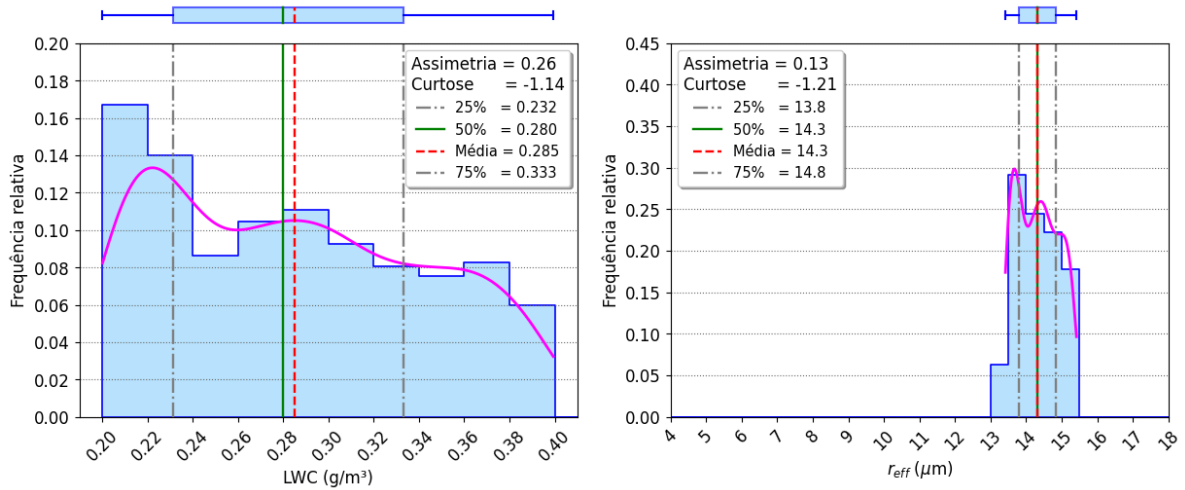


Figura 40 - Histogramas e *boxplots* de LWC e  $r_{eff}$  para o cenário limpo de 2014. Fonte: Autor.

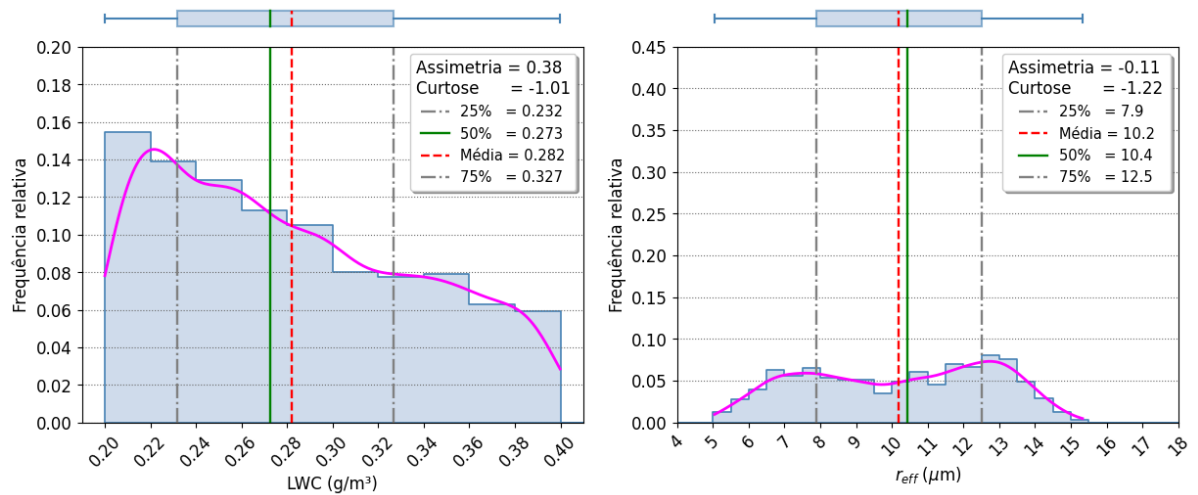


Figura 41 - Histogramas e *boxplots* de LWC e  $r_{eff}$  para a "transição 1" de 2014. Fonte: Autor.

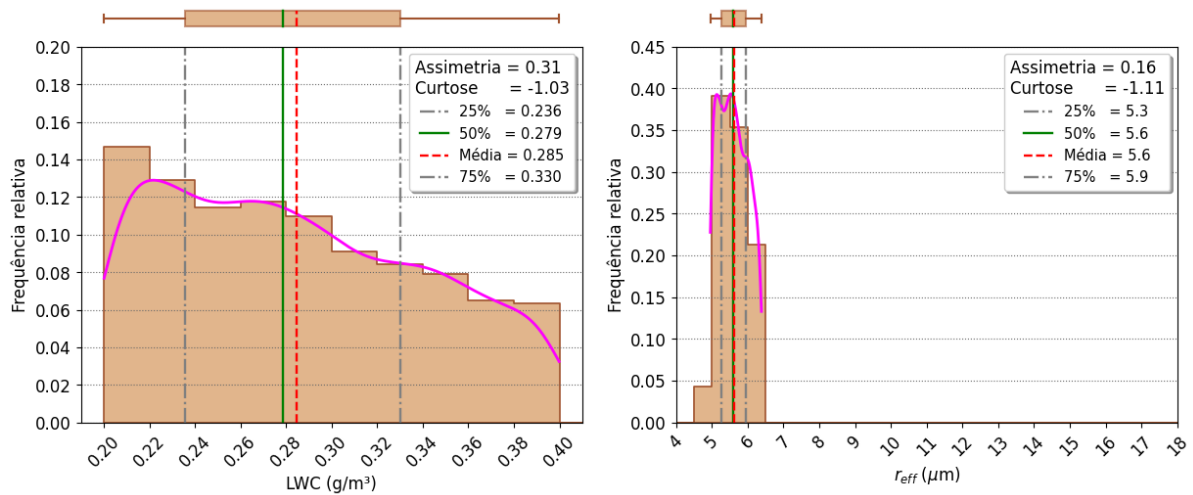


Figura 42 - Histogramas e *boxplots* de LWC e  $r_{eff}$  para o cenário poluído de 2014, com todos os pontos de "poluído 1" e "poluído 2" incluídos. Fonte: Autor.



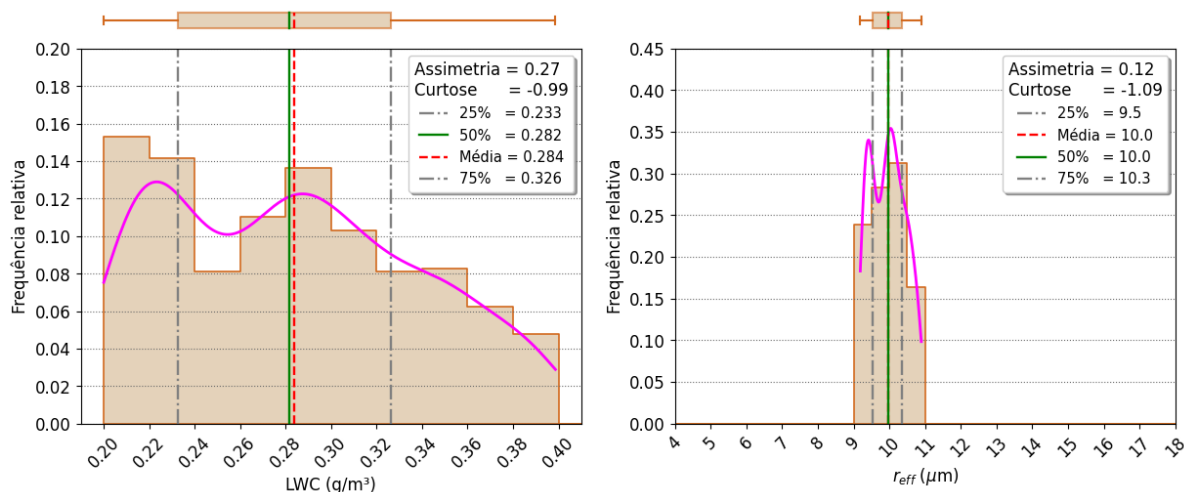


Figura 43 - Histogramas e *boxplots* de LWC e  $r_{eff}$  para a "transição 2" de 2014. Fonte: Autor.

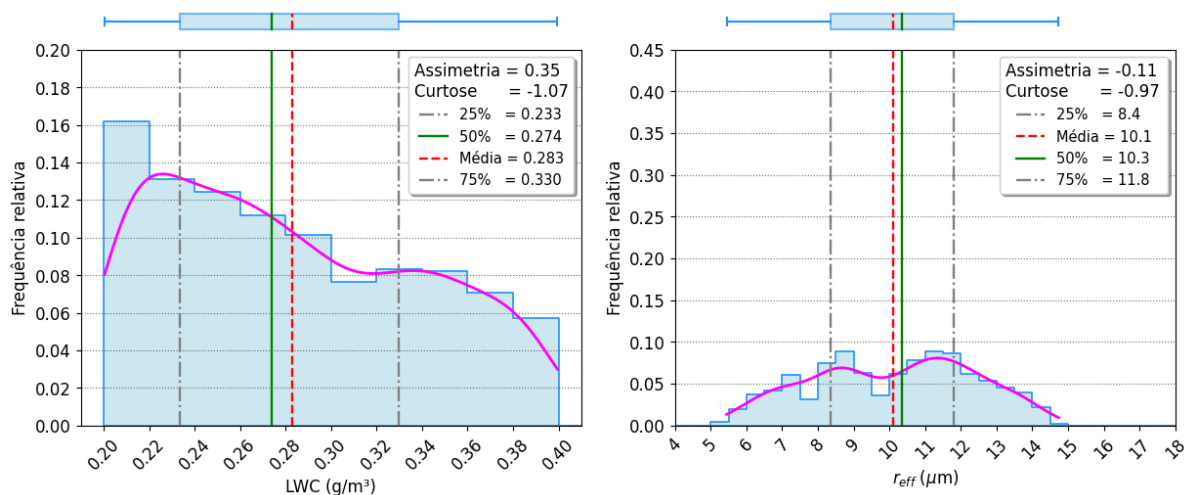


Figura 44 - Histogramas e *boxplots* de LWC e  $r_{eff}$  para a "transição 3" de 2014. Fonte: Autor.

Os histogramas de  $r_{eff}$  exibem distribuições bastante características para cada cenário de disponibilidade de aerossóis. Enquanto para os períodos “transição 1” e “transição 3” (do período limpo para o poluído e do poluído para o limpo de 2015, respectivamente) há uma maior dispersão de valores, para os cenários limpo e poluído as distribuições apresentam assimetria positiva, além de aparecerem em um intervalo mais restrito de valores. Para o primeiro (segundo) a mediana é igual a 14.3 (5.6) μm, evidenciando que as equações (nas Figuras 30 e 32) utilizadas para o cálculo de  $r_{eff}$  refletem a influência dos aerossóis na distribuição desses resultados.

Os histogramas de LWC e  $r_{eff}$  relativos aos diferentes cenários de disponibilidade de aerossóis para o ano de 2015 são apresentados nas Figuras 45,

46 e 47. Assim como para os cenários de 2014, as distribuições de LWC para 2015 exibem uma queda nas contagens conforme o valor de LWC aumenta. Para o  $r_{eff}$  dos cenários limpo e poluído há também uma maior concentração dos resultados em torno da média. Esses cenários possuem, cada um, medianas e médias bastante próximas entre si, e também com relação às mesmas estatísticas referentes a 2014. O período de transição é caracterizado por uma distribuição mais heterogênea de valores de  $r_{eff}$ , apontando que a aplicação das equações utilizadas para o cálculo de  $r_{eff}$  nos dados de 2015 também contempla a influência dos aerossóis na distribuição de tamanhos das gotas das nuvens quentes.

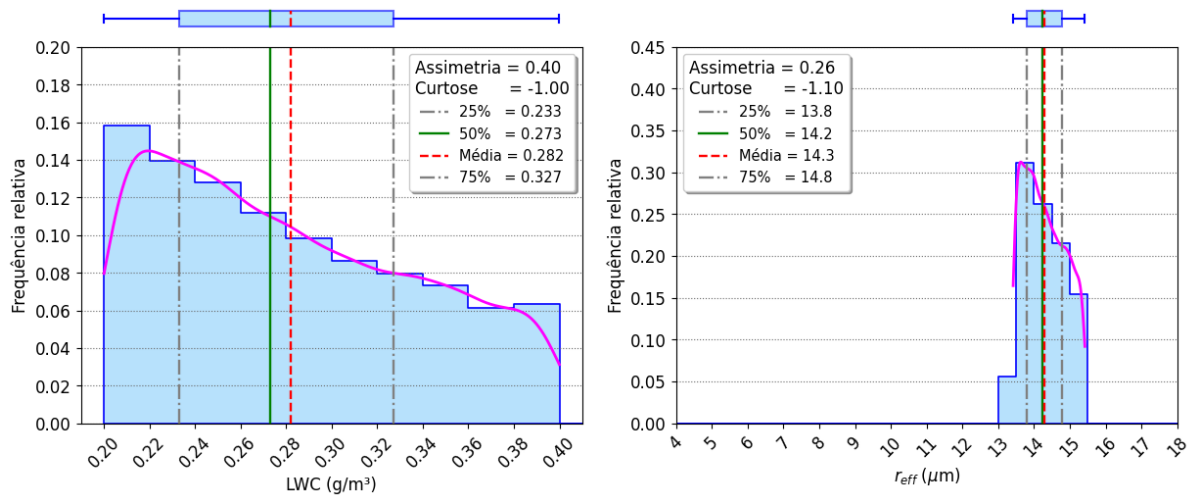


Figura 45 - Histogramas e *boxplots* de LWC e  $r_{eff}$  para o cenário limpo de 2015. Fonte: Autor.

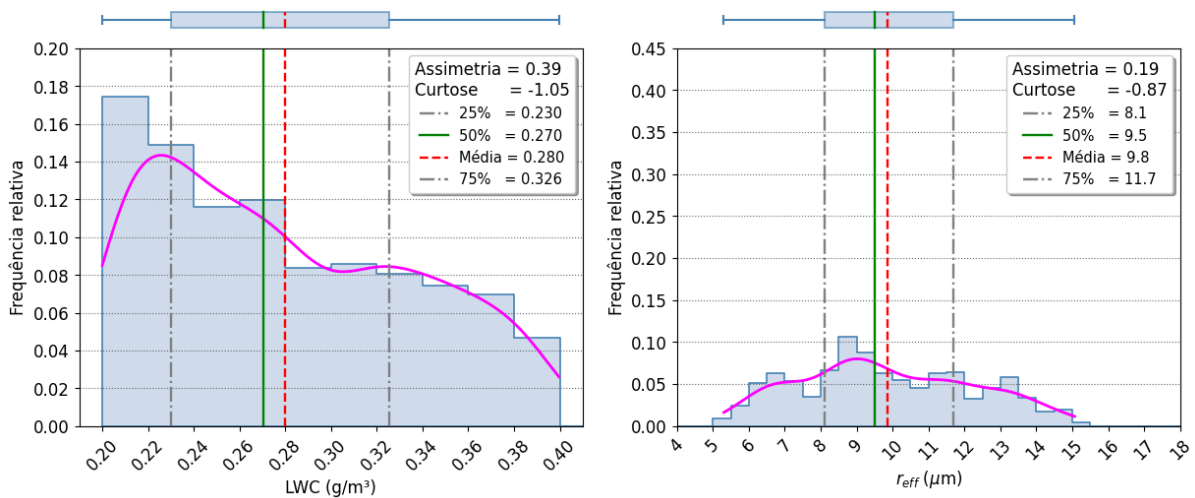


Figura 46 - Histogramas e *boxplots* de LWC e  $r_{eff}$  para a "transição" de 2015. Fonte: Autor.

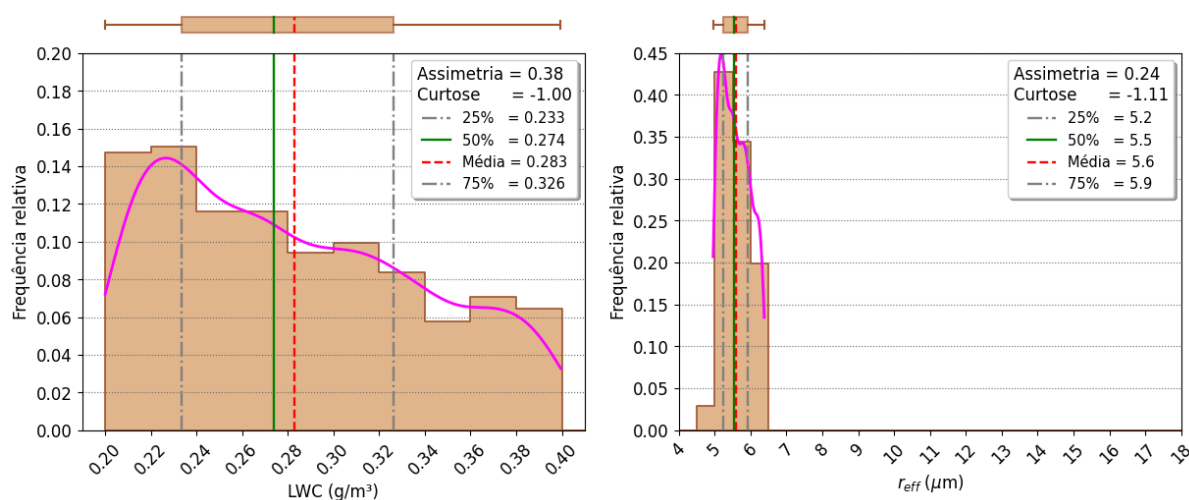


Figura 47 - Histogramas e *boxplots* de LWC e  $r_{\text{eff}}$  para o cenário poluído de 2015. Fonte: Autor.

## 5.2 - Irradiâncias espectrais ascendentes no TOA

Os valores de LWC e  $r_{\text{eff}}$  contemplados nos histogramas da seção anterior foram utilizados para parametrizar as nuvens quentes no *LibRadtran*. As simulações, que foram todas realizadas com relação ao meio dia local, resultaram em irradiâncias espectrais (F) ascendentes no TOA. Os valores de F foram então corrigidos segundo a equação 4.5 e as medianas diárias de F para todo o espectro considerado ( $\lambda$  entre 300 e 1000 nm) foram calculadas. Isso foi feito pois, dado que a mediana é uma medida da tendência central da distribuição de valores estudada, medianas elevadas indicam que toda a distribuição analisada está deslocada para valores mais altos (extremo superior). A partir da comparação entre as medianas de cada dia foi possível então selecionar aqueles dias que apresentavam os valores extremos (mínimo e máximo, ver Figuras 48 e 49), possibilitando assim que as distribuições de irradiâncias espectrais extremas fossem identificadas tanto para o cenário limpo quanto para o poluído dos dois anos da GoAmazon 2014/5.

O gráfico à direita exibido na Figura 50 mostra as irradiâncias espectrais concernentes aos dias (dos cenários limpo e poluído de 2014) que mostram as distribuições deslocadas para os valores mais elevados de F, enquanto o gráfico à esquerda se refere aos dias que apresentam as distribuições deslocadas para os valores mais baixos. Nestas plotagens são evidentes as diferenças entre as irradiâncias relativas aos períodos limpo e poluído, principalmente para os dias de distribuições máximas. Já para os dias relativos às distribuições mínimas de 2014,

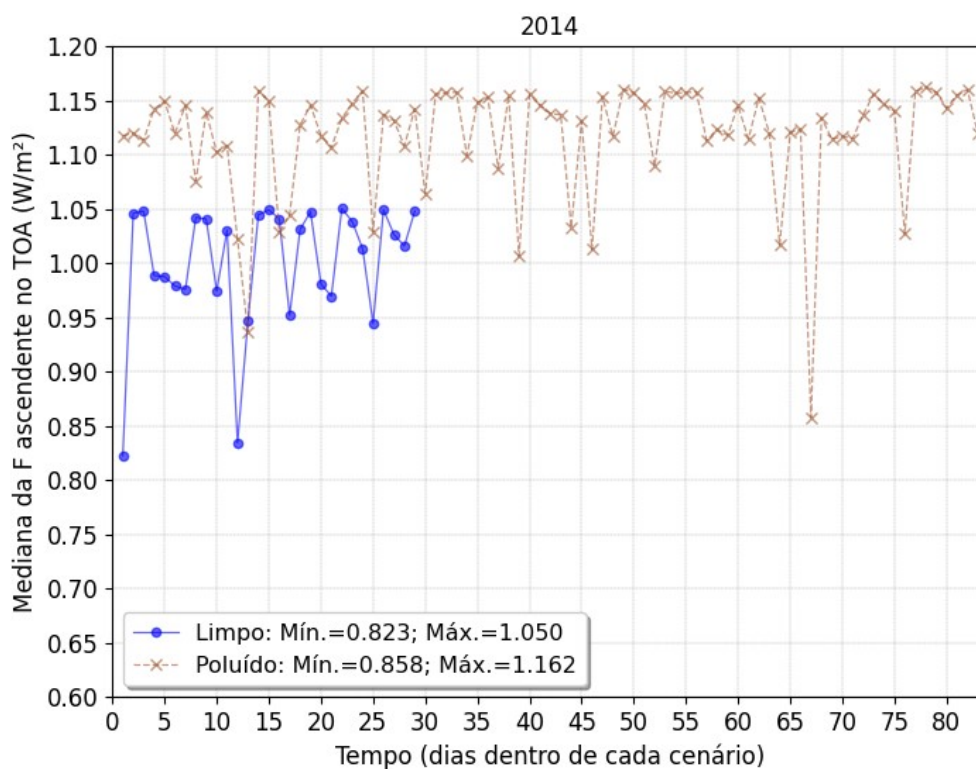


Figura 48 - Medianas diárias (2014) de F integrada para comprimentos de onda entre 300 e 1000 nm. Fonte: Autor.

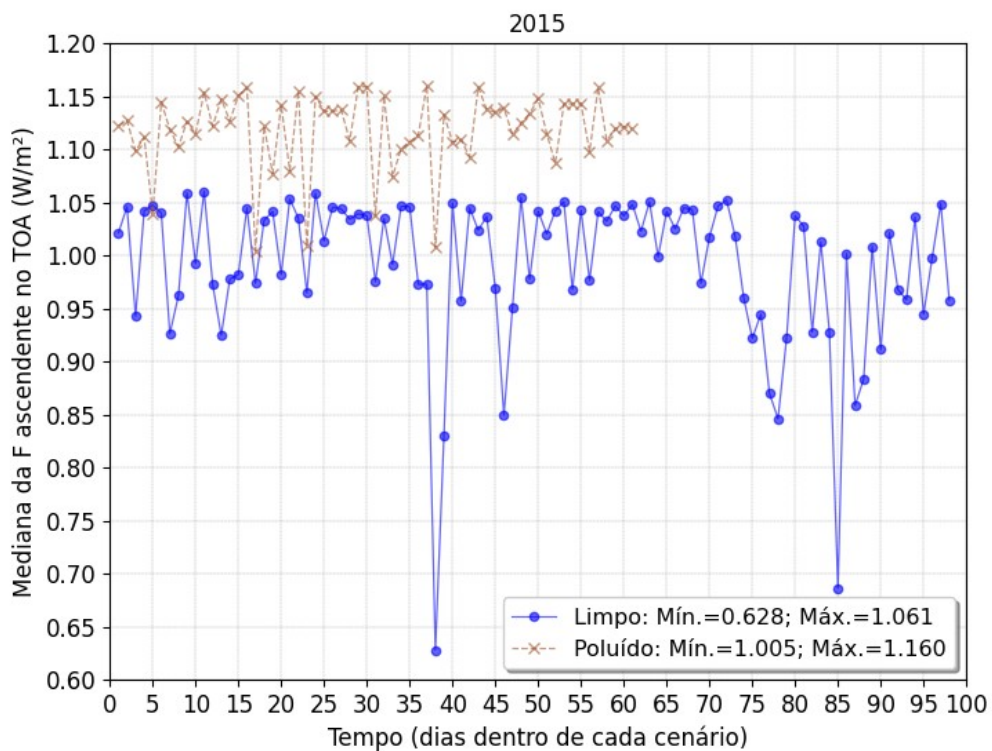


Figura 49 - Medianas diárias (2015) de F integrada para comprimentos de onda entre 300 e 1000 nm. Fonte: Autor.

essa diferença praticamente inexistente para comprimentos de onda menores que 600 nm. Essas observações mostram que, em geral, as irradiâncias espectrais obtidas pelas simulações refletem a influência que a variabilidade referente à disponibilidade de aerossóis exerce sobre a radiação refletida de volta ao espaço. Essa observação pode igualmente ser realizada a partir dos gráficos exibidos na Figura 51, onde as diferenças entre as  $F$  são ainda mais evidentes, especialmente para os dias cujas distribuições estão deslocadas para os extremos inferiores (gráfico à esquerda).

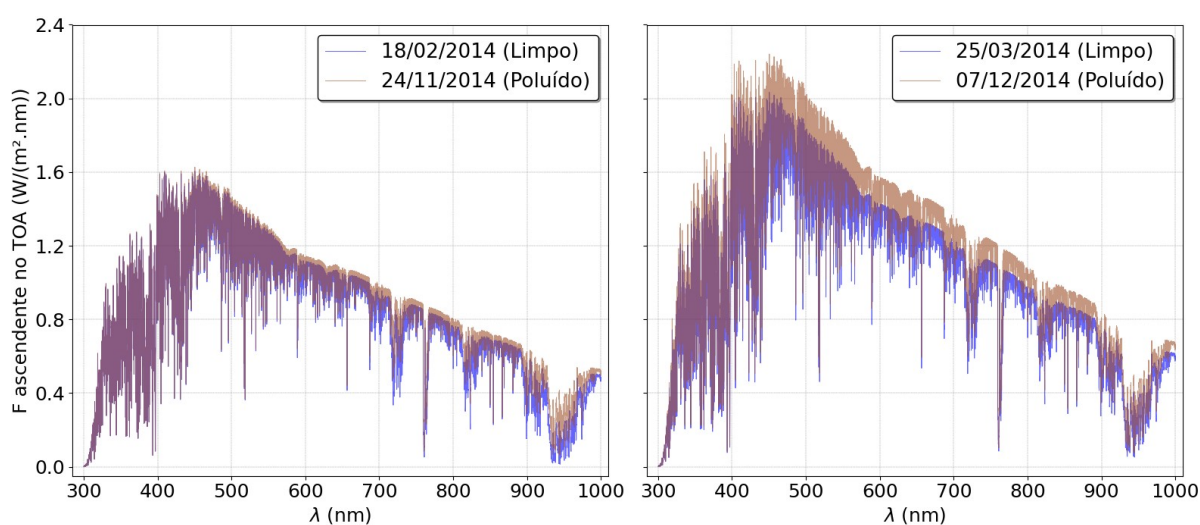


Figura 50 - Irradiâncias ( $F$ ) espectrais ascendentes no TOA para dias selecionados de 2014. O gráfico à direita se refere aos dias que apresentaram distribuições de  $F$  deslocadas para valores mais altos, enquanto o à esquerda se refere aos dias cujas distribuições estão deslocadas para os valores mínimos. Fonte: Autor.

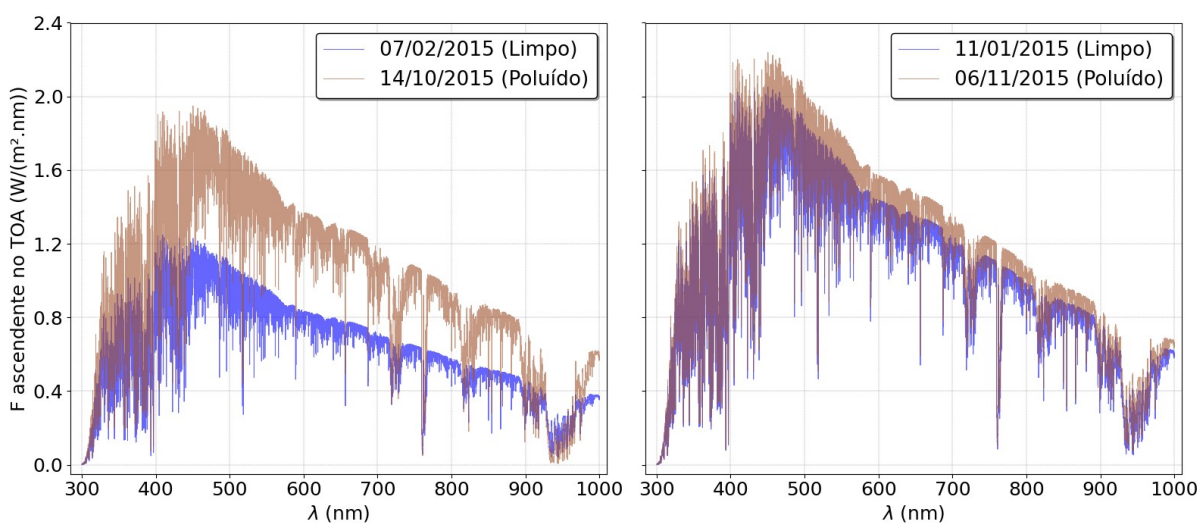


Figura 51 - Distribuições de Irradiâncias espectrais ascendentes no TOA para os dias selecionados de 2015. Fonte: Autor.

Além das distribuições espectrais apresentadas nas Figuras 50 e 51, as médias de  $F$  para cada um dos comprimentos de onda também foram calculadas. As Figuras 52 e 53 mostram, respectivamente, os resultados obtidos para os 3 principais cenários (limpo, poluído e a transição entre os dois) de 2014 e de 2015. Nessas figuras também fica evidente a diferença entre as  $F$  obtidas para os cenários limpo e poluído, o que ocorre principalmente para  $\lambda$  maiores ou iguais a 450 nm. Estes resultados mostram que, conforme há uma maior oferta de aerossóis antropogênicos na atmosfera, mais as nuvens analisadas refletem radiação (em média) de volta ao espaço, sendo que a microfísica das gotas das nuvens pode ser afetada por uma quantidade crescente de aerossóis. As inter-relações entre uma oferta variável de aerossóis e sua influência na microfísica das nuvens modeladas e no fluxo de radiação ascendente no TOA são melhor avaliadas a partir dos resultados de forçantes radiativas indiretas apresentados ao longo deste capítulo.

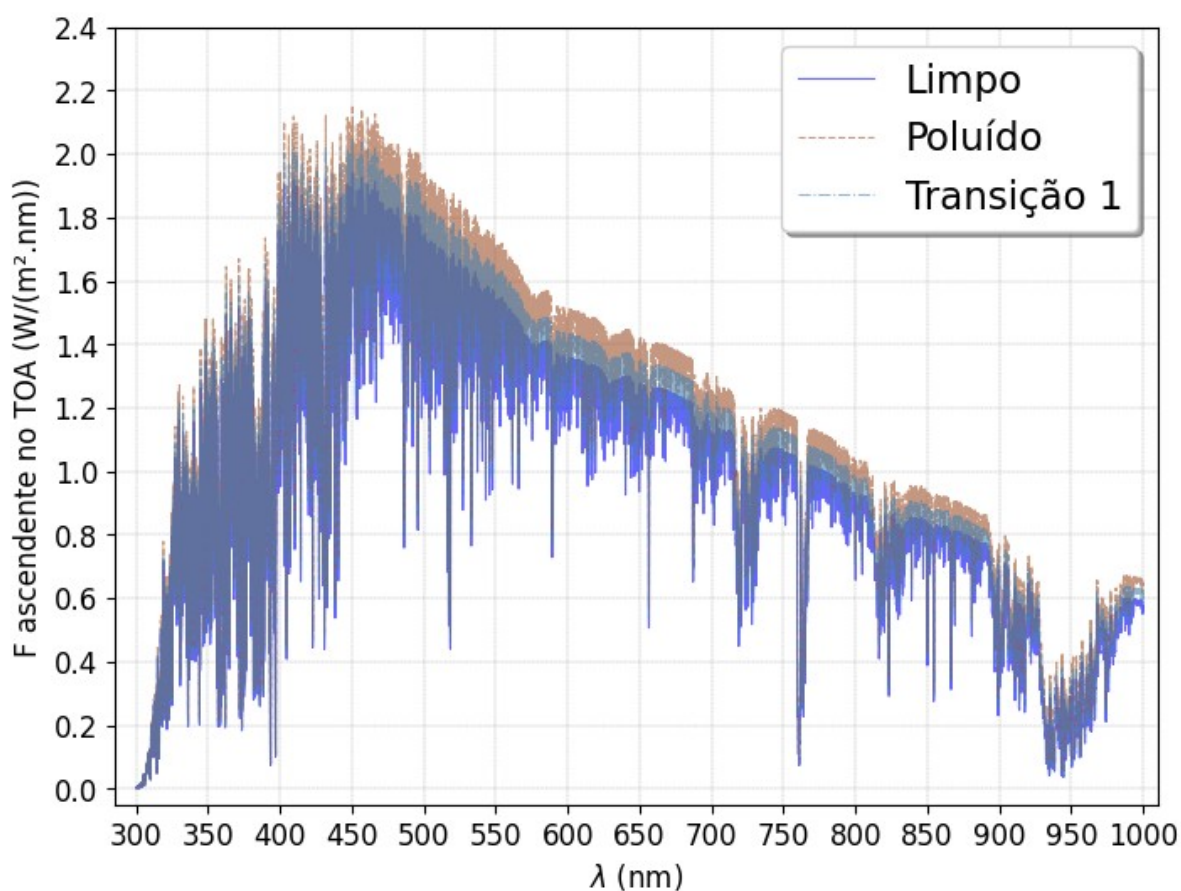


Figura 52 - Irradiâncias espectrais médias para os períodos limpo, transição 1 e poluído do ano de 2014. O período poluído contempla todas as medidas obtidas nos cenários “poluído 1” e “poluído 2”. Todas as simulações consideram o meio-dia local. Fonte: Autor.

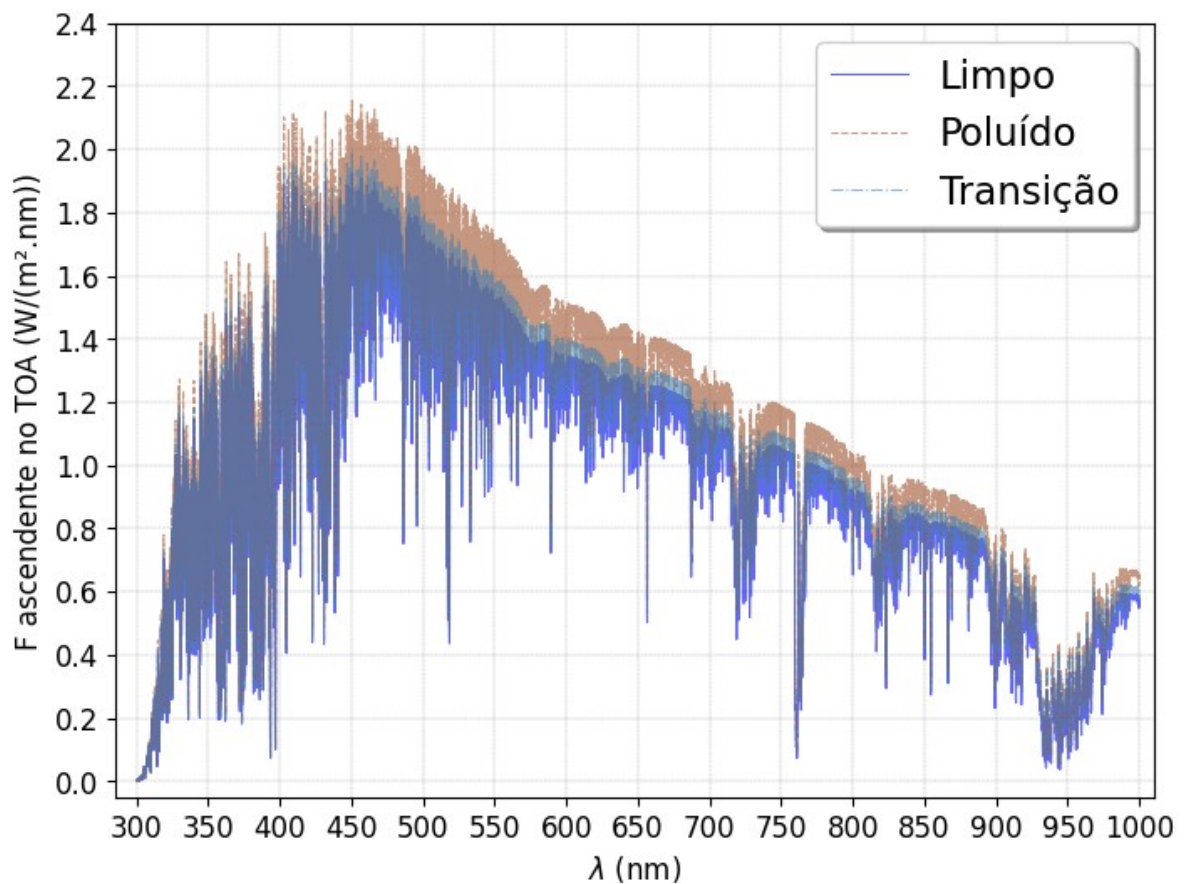


Figura 53 - Irradiâncias espectrais médias para os períodos limpo e poluído (e a transição entre eles) do ano de 2015. Todas as simulações consideram o meio-dia local. Fonte: Autor.

### 5.3 - Irradiâncias integradas ascendentes no TOA

Assim como as irradiâncias espectrais simuladas para a maioria dos dias da GoAmazon 2014/5, os valores de irradiância integrada no intervalo [300; 1000] nm obtidos pelo *LibRadtran* foram igualmente corrigidos de acordo com a variação da distância entre a Terra e o Sol. O horário considerado novamente foi o meio dia local, com o  $\theta_0$  se aproximando do seu valor mínimo. A Figura 54, que mostra os resultados obtidos para 2014 e 2015 conjuntamente, destaca também os dias pertencentes aos períodos limpo e poluído de cada ano. As linhas verticais de cor azulada mais intensa indicam os dias mais limpos encontrados segundo os critérios de clusterização apresentados na seção 4.3 do Capítulo 4. As irradiâncias integradas evidenciam que, comparativamente às épocas de atmosfera mais limpa, os períodos mais afetados por altas concentrações de aerossóis antropogênicos

apresentam mais radiação sendo refletida de volta ao espaço. É possível notar também que entre os períodos limpo e poluído há uma transição bem marcada nas  $F$  integradas, com valores aumentando gradualmente conforme os dias mais poluídos se aproximam. Conforme as Figuras 22 e 23 mostraram, esse aumento acompanha o crescimento na carga de aerossóis disponíveis na atmosfera, evidenciando assim uma possível influência que níveis mais elevados de concentração de aerossóis possam exercer sobre a irradiância integrada ascendente no TOA.

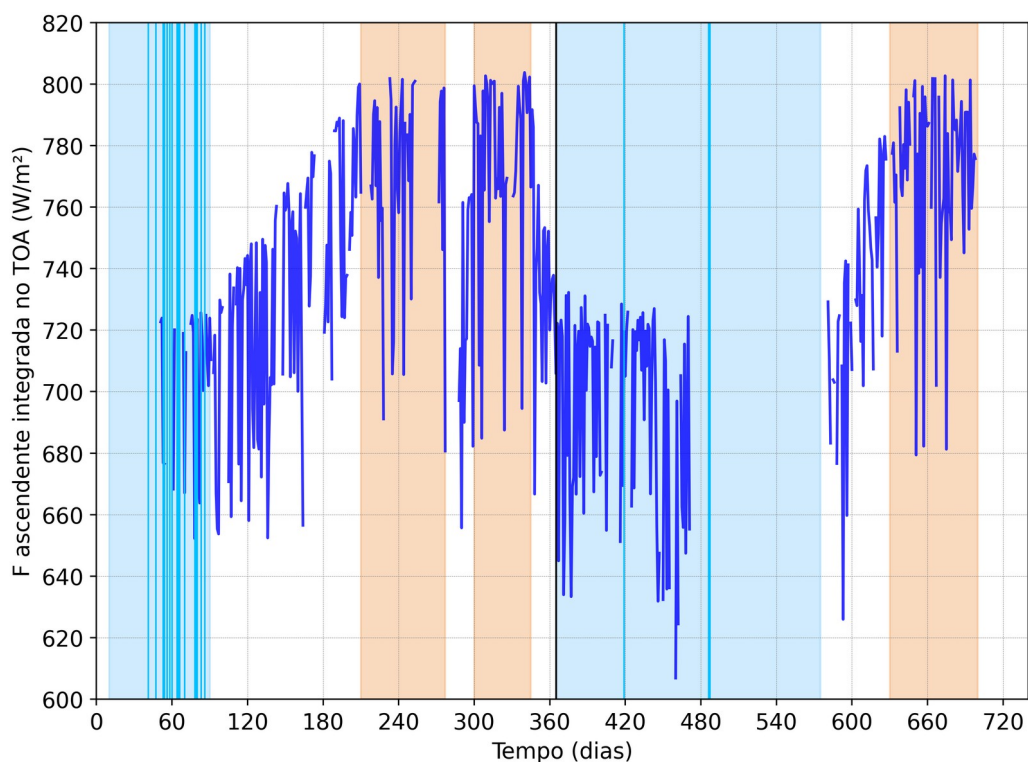


Figura 54 - Irradiâncias ascendentes integradas no TOA para 2014 e 2015. Os valores (que foram calculados para cada dia e correspondem ao meio dia solar local no sítio T3) não são afetados pela variação orbital da Terra, de modo que a variação ao longo dos anos são devidas a mudanças nas propriedades das nuvens. As áreas destacadas na cor azul (marrom) representam os períodos limpos (poluídos) para os dois anos. As linhas verticais num tom azulado mais intenso indicam os dias considerados mais limpos segundo os critérios de clusterização apresentados na seção 4.3 do Capítulo 4. Dias que não mostram valores de  $F$  integrada continham conjuntos de dados (medidos a partir do solo) incompletos de propriedades de nuvem (CBH, CTH ou LWP), impossibilitando a modelagem de nuvens quentes e, conseqüentemente, o cálculo de irradiâncias e também de forçantes radiativas. Fonte: Autor.



## **5.4 - Forçantes radiativas instantâneas devido ao efeito indireto de aerossóis**

Os valores (corrigidos pela equação 4.5) de irradiância integrada foram utilizados para o cálculo de forçantes radiativas instantâneas. Conforme a equação 4.6 mostrou, isso é feito a partir da definição de um valor de referência para  $F$ . Sendo assim, duas maneiras de estabelecer esse valor de referência foram aqui utilizadas. A primeira delas se refere à média das irradiâncias integradas obtidas para os dias elencados no Quadro 5, os quais correspondem ao cenário mais limpo possível encontrado através dos métodos de clusterização. Já a segunda, que considerou também dados de nuvens observados sobre a floresta durante a IOP 2, resultou em diferentes valores de referência para cada um dos cenários de disponibilidade de aerossóis, de modo a minimizar a influência da variabilidade sazonal que condições atmosféricas possam ter exercido sobre os valores das IRF resultantes.

### **5.4.1 - IRF segundo referência fixa dos dias limpos de 2014-2015**

Os resultados de IRF obtidos segundo o valor de irradiância no TOA tomando como referência fixa a média dos dias mais limpos de 2014 e 2015 (mostrados no Quadro 5 do Capítulo 4) são apresentados ao longo desta seção.

#### **5.4.1.1 - Ângulo solar zenital nulo**

A média de irradiância calculada para os dias mais limpos de 2014 e 2015 serviu como um valor de referência fixo para o cálculo das IRF ao meio dia local. As forçantes diárias resultantes, mostradas na Figura 55, seguem a tendência de possuir maiores módulos nos períodos mais poluídos. O sinal de forçamento radiativo nos períodos limpos, por sua vez, oscila em torno de zero, mostrando que as irradiâncias integradas dos dias limpos estão mais próximas da média dos dias mais limpos. A oscilação de dia para dia ocorre devido à maneira com que os modelos de nuvens quentes foram configurados, ou seja, a partir do emprego de percentis e medianas nas distribuições de  $r_{\text{eff}}$  e LWC. Na Figura 55 também é possível notar que durante os períodos de transição o módulo das forçantes instantâneas aumenta conforme os cenários poluídos se aproximam, quando as

forçantes são, em geral, negativas. Esse comportamento reflete principalmente as mudanças sazonais na microfísica das nuvens quentes, isto é, no tamanho médio das gotas de nuvem formadas em épocas distintas do ano. Há a indicação também de uma possível influência dos aerossóis sobre as nuvens quentes modeladas e sobre a quantidade de radiação ascendente no TOA.

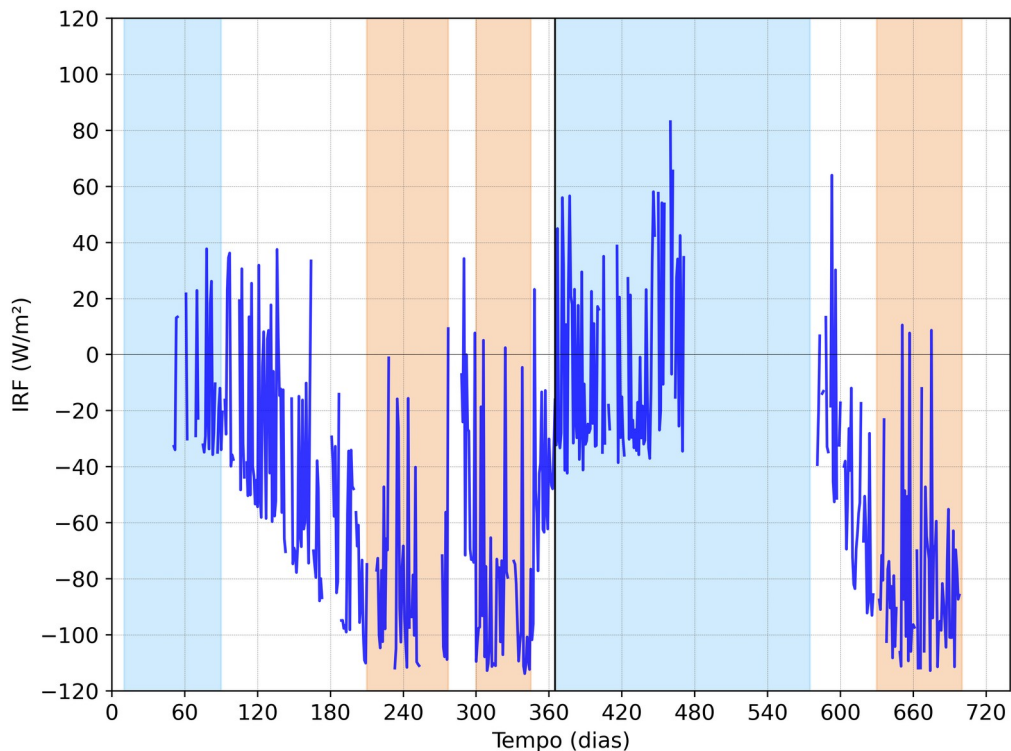


Figura 55 - IRF calculadas a partir do valor de referência fixo e obtidas ao meio-dia solar no T3. As áreas nas cores azul e marrom indicam os períodos limpo e poluído, respectivamente. Fonte: Autor.

#### 5.4.1.2 - Distribuições chuvosas/secas e segundo cenários limpo/poluído

As IRF apresentadas na Figura 55 foram calculadas a partir das irradiâncias integradas simuladas especificamente para as 12:00 horas no sítio T3. Para estudar as IRF diurnas e diárias (das 06:00 às 18:00 e das 00:00 às 23:59, respectivamente), entretanto, é necessário considerar a variação do  $\theta_0$  ao longo do dia que está sendo analisado. No caso das forçantes diurnas isso é feito através da equação 5.1, a qual considera os 120 valores de  $\theta_0$  obtidos a cada 6 minutos ao longo do período diurno do dia em questão. O valor diurno de IRF é calculado para cada dia e então multiplicado pela média diurna da  $f_c$  daquele dia, de forma que os valores finais de IRF diurnos sejam localizados para considerar a nebulosidade da

área de estudo. Uma vez que o sítio T3 esteve localizado próximo à linha do Equador, a duração do período diurno foi considerada como praticamente igual à do período noturno, além do intervalo matutino apresentar duração muito próxima à do período vespertino. Isso faz com que as IRF diárias equivalham aos intervalos matutino ou vespertino, que correspondem praticamente à metade das IRF diurnas.

$$IRF_{diurna} = \frac{IRF_{12:00} \sum_{n=06:00}^{n=18:00} \cos(\theta_0)_n}{120} \quad (5.1)$$

Os valores médios diurnos de  $f_c$  para cada dia da GoAmazon 2014/5 são mostrados na Figura 56, enquanto as IRF diurnas e diárias sem considerar e considerando a fração de cobertura do céu são exibidas nas Figuras 57 e 58, respectivamente. Quando comparadas aos valores de IRF simuladas para o meio dia solar local, as IRF diurnas e diárias apresentam valores em um intervalo mais restrito. Isso fica evidente quando os limites inferior e superior do eixo das ordenadas da Figura 55 são comparados aos das Figuras 57 e 58, pois no cálculo das IRF diurnas e diárias são considerados ângulos zenitais solares ao longo de todo o dia, inclusive valores próximos a  $90^\circ$  (nascer e ocaso do Sol). Nas Figuras 57 e 58 também é importante notar que os valores de IRF são ainda mais restritos quando a variação de  $f_c$  no T3 é levada em conta, sendo este um parâmetro relevante para o estudo das forçantes radiativas instantâneas.

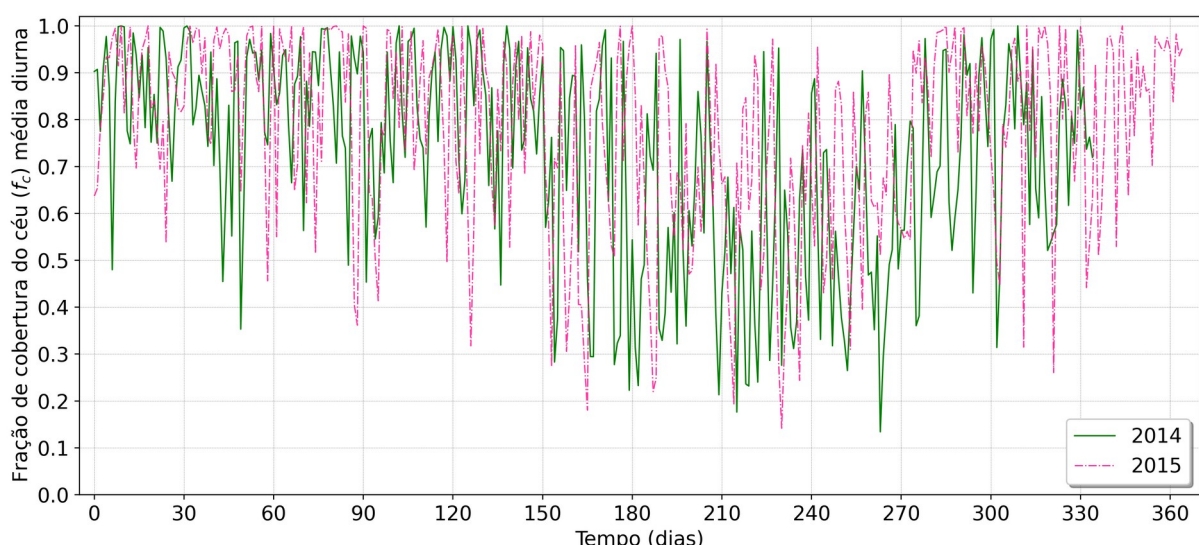


Figura 56 - Fração de cobertura do céu (incluindo todos os tipos de nuvens) média diária para cada dia dos anos de 2014 e 2015 no T3. Fonte: Autor.

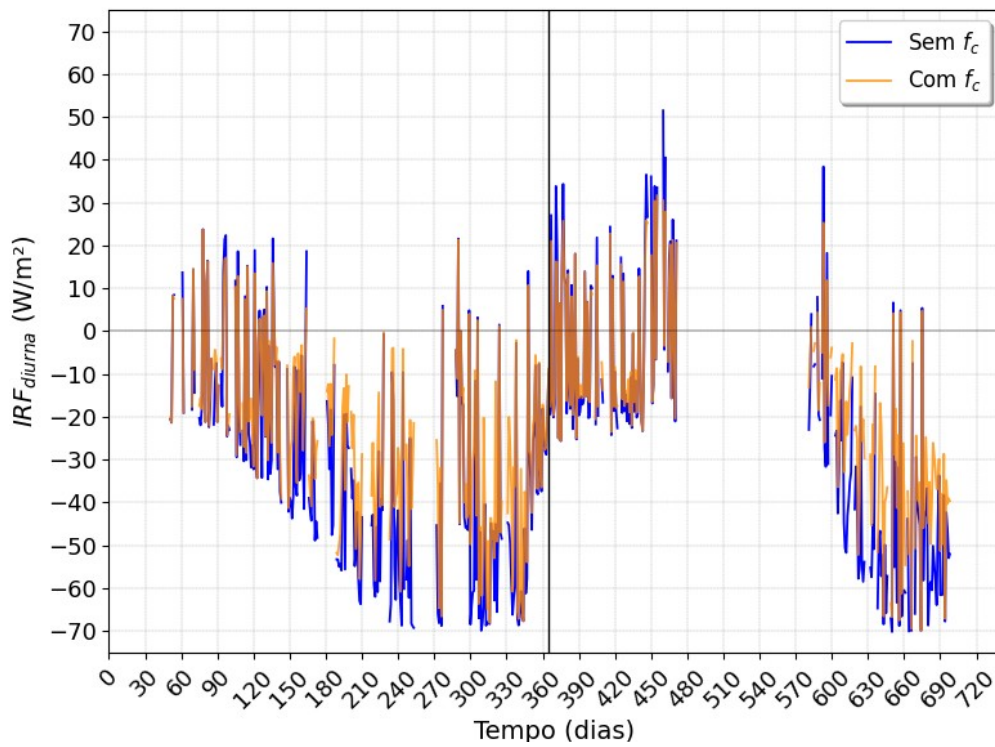


Figura 57 - Forçantes radiativas instantâneas diurnas. A indicação “Sem  $f_c$ ” (linha azul) na legenda significa que as IRF não foram multiplicadas pela média diurna de  $f_c$ , enquanto a “Com  $f_c$ ” (linha dourada) aponta para a existência do produto  $f_c \times IRF_{diurna}$ . Fonte: Autor.

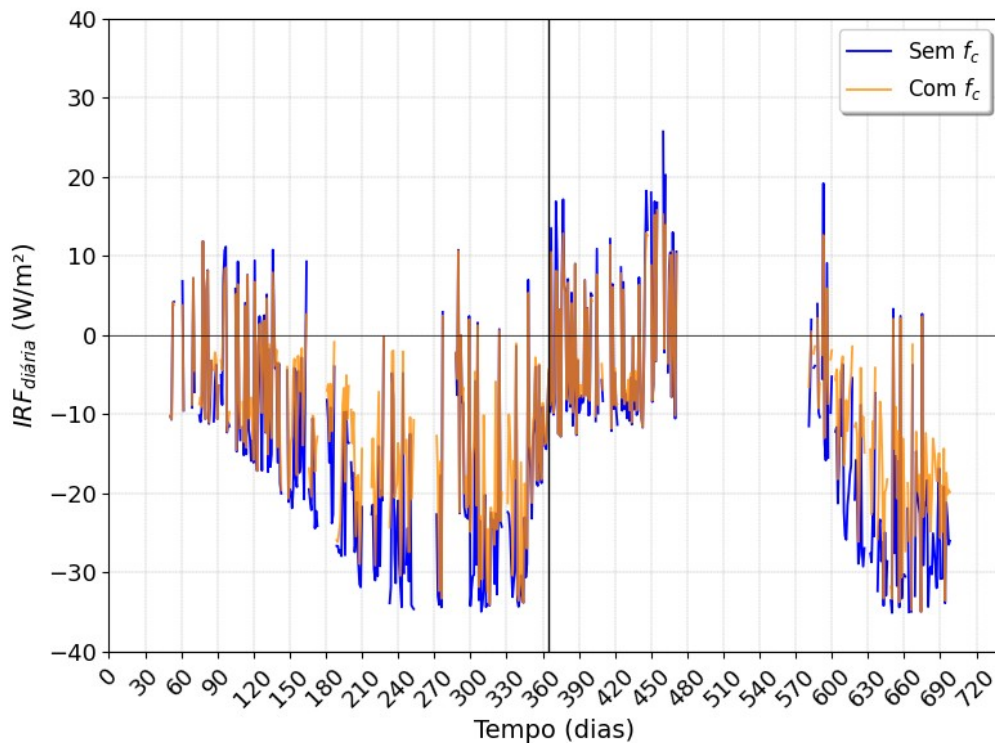


Figura 58 - Forçantes radiativas instantâneas diárias considerando ou não a média de  $f_c$  sobre o T3. Fonte: Autor.

As distribuições de IRF diurnas e diárias para as estações chuvosa e seca e também para os períodos de transição entre elas são aqui apresentadas através de diagramas de caixa (ou *boxplots*). As Figuras 59 e 60 mostram esses resultados para 2014, enquanto as Figuras 61 e 62 se referem às estatísticas obtidas para o ano de 2015. Com relação aos resultados de IRF diurnas relativas a 2014, uma observação inicial é que as médias e medianas (linhas vermelhas pontilhadas e verdes contínuas, respectivamente) obtidas quando as IRF são multiplicadas pela  $f_c$  são menos negativas que aquelas que não consideram esse parâmetro, o que ocorre para todas as estações de 2014. Todas as médias e medianas dos dois anos, assim como os percentis 25 e 75 (limites inferior e superior dos diagramas de caixa, respectivamente), adotam valores negativos de IRF diurna e diária. Há também uma diminuição, mesmo que modesta, nos valores da média e da mediana conforme a estação seca de cada ano se aproxima. É nessa estação, aliás, que a diferença entre as duas estatísticas é mais evidente, mostrando assim que as distribuições de IRF diurnas e diárias não são simétricas neste caso.

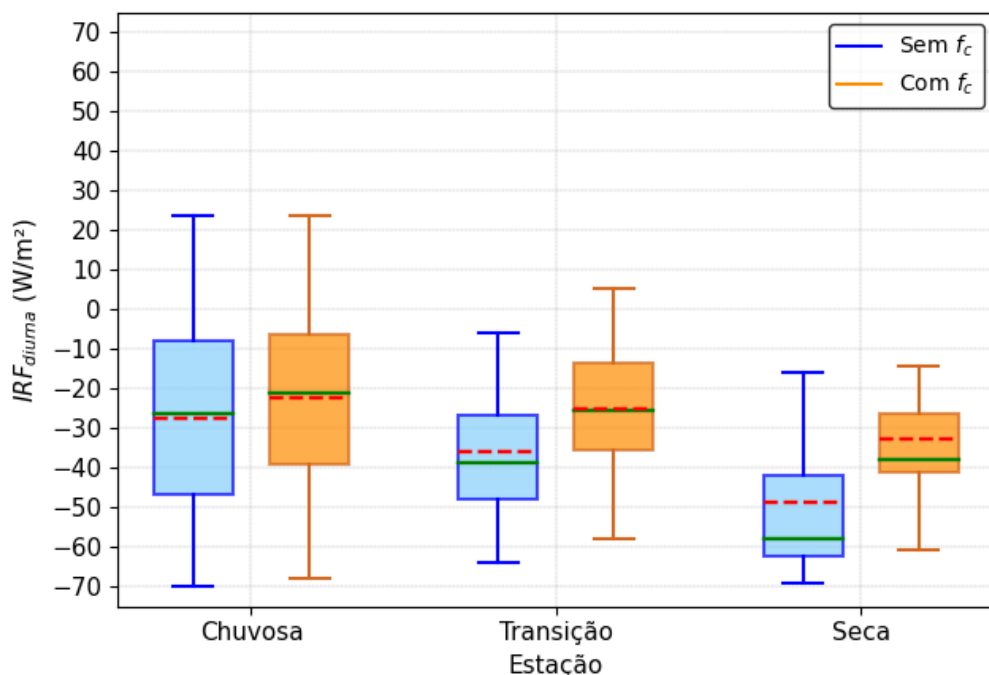


Figura 59 - Forçantes radiativas instantâneas (IRF) diurnas calculadas segundo a equação 5.1 e separadas conforme as estações de 2014. Os extremos inferior e superior indicam, respectivamente, os valores  $Q_1 - 1.5 \times IQR$  e  $Q_3 + 1.5 \times IQR$ , onde  $Q_1$  é o 1º quartil,  $Q_3$  é o 3º quartil e  $IQR = Q_3 - Q_1$  é a distância interquartil, ou *InterQuartile Range*, em inglês. Já os limites inferior e superior das caixas mostram os valores de  $Q_1$  e  $Q_3$  (respectivamente), enquanto a linha verde contínua (vermelha pontilhada) indica o valor da mediana (média). Fonte: Autor.

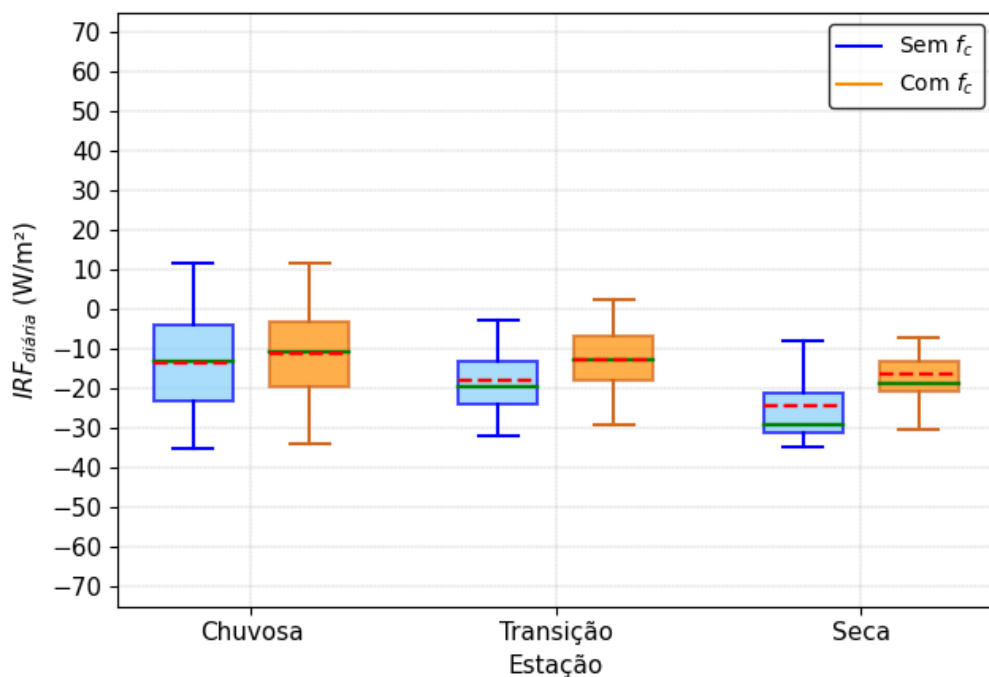


Figura 60 - IRF diárias separadas conforme as estações chuvosa, de transição e seca de 2014. Fonte: Autor.

As distribuições de IRF diurnas para a estação chuvosa de 2015 multiplicados e não multiplicados pela média de  $f_c$  (Figura 61) apresentam valores de médias e medianas distintos. Isso aponta que com ou sem o fator  $f_c$  as distribuições são assimétricas, o que é menos evidente no caso da estação seca do mesmo ano. As distribuições referentes à época chuvosa exibem medianas mais próximas aos  $-10 \text{ W/m}^2$ , enquanto para a estiagem esse valor é de (aproximadamente)  $-45 \text{ W/m}^2$  e  $-30 \text{ W/m}^2$  para os resultados que não consideram e que consideram a  $f_c$ , respectivamente. As distribuições de IRF diárias de 2015 (Figura 62), por sua vez, exibem distribuições confinadas a intervalos mais restritos de IRF. Neste caso também não há diferença entre as medianas multiplicadas (ou não) pela  $f_c$  para a estação chuvosa, as quais admitem valores bem próximos a  $-5 \text{ W/m}^2$ . Assim como as IRF diurnas do período seco, as IRF diárias da estiagem mostram distribuições menos assimétricas em comparação àquelas relativas à época chuvosa, com medianas considerando e não considerando  $f_c$  próximas a  $-15 \text{ W/m}^2$  e  $-22 \text{ W/m}^2$ , respectivamente.

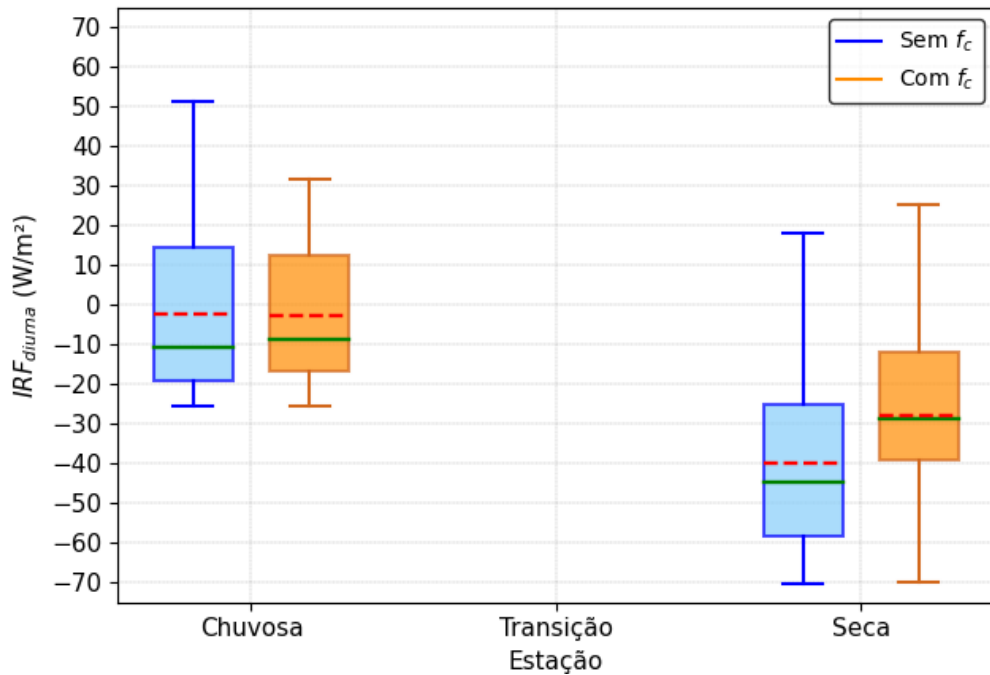


Figura 61 - IRF diurnas separadas conforme as estações chuvosa e seca de 2015. Durante o período de transição, Julho, não foi possível realizar o cálculo de IRF, e por isso um diagrama de caixa não é mostrado. Fonte: Autor.

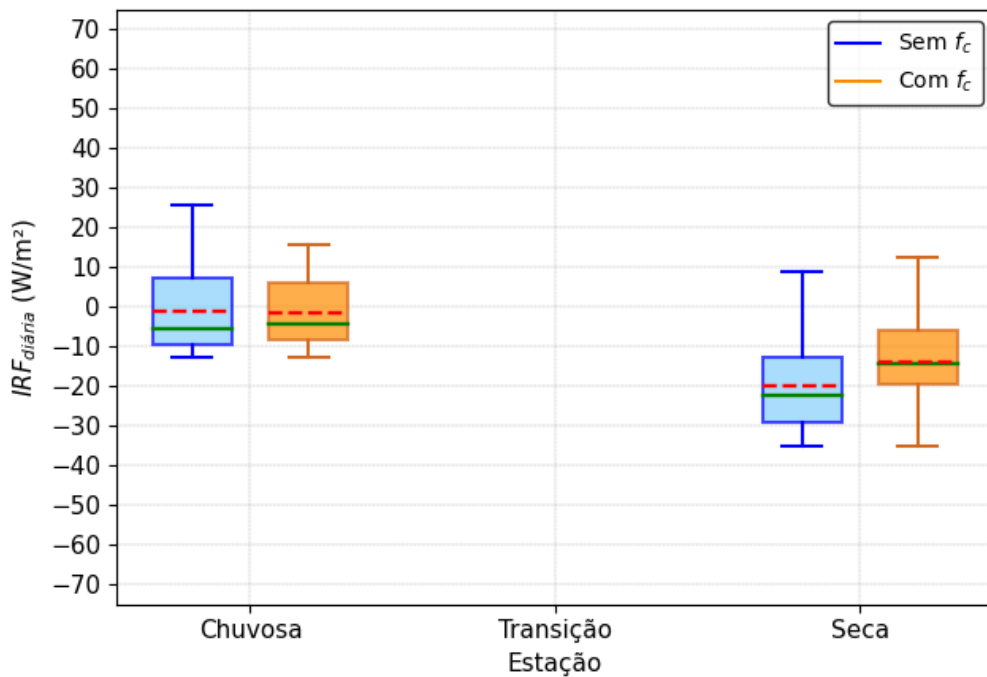


Figura 62 - IRF diárias separadas conforme as estações chuvosa e seca de 2015. Durante o período de transição, Julho, não foi possível realizar o cálculo de IRF, e por isso um *boxplot* não é mostrado. As linhas pontilhadas vermelhas indicam os valores das médias, e as contínuas verdes mostram os valores das medianas. Fonte: Autor.

Analogamente às distribuições de IRF diurnas e diárias para as estações chuvosa e seca, as distribuições obtidas de acordo com os cenários limpo e poluído dos anos de 2014 e 2015 também são apresentadas através de diagramas de caixa. As Figuras 63 e 64 mostram esses resultados para 2014, e as 65 e 66 exibem os referentes a 2015. Relativamente às IRF diurnas do primeiro desses dois anos, nota-se que os períodos poluídos produzem médias, medianas e percentis (25 e 75) com valores mais negativos que aqueles referentes aos cenários limpo e de transição. Há uma diminuição nesses valores conforme os dias transcorrem do cenário limpo para o poluído, o qual é dividido em dois subintervalos. Tal divisão se deu devido à queda significativa nas concentrações volumétricas de  $\beta_{\text{esp.}}$ , Org. e CCN mostrada nas Figuras 22 e 23, e o cenário que representa esse intervalo (“transição 2”) mostra um aumento significativo nos valores de IRF diurnas. Em comparação às IRF diurnas multiplicadas pela  $f_c$ , as médias e medianas vinculadas aos resultados que não levam em conta esse parâmetro são mais afastadas entre si, mostrando a possibilidade das distribuições serem mais assimétricas nestes casos.

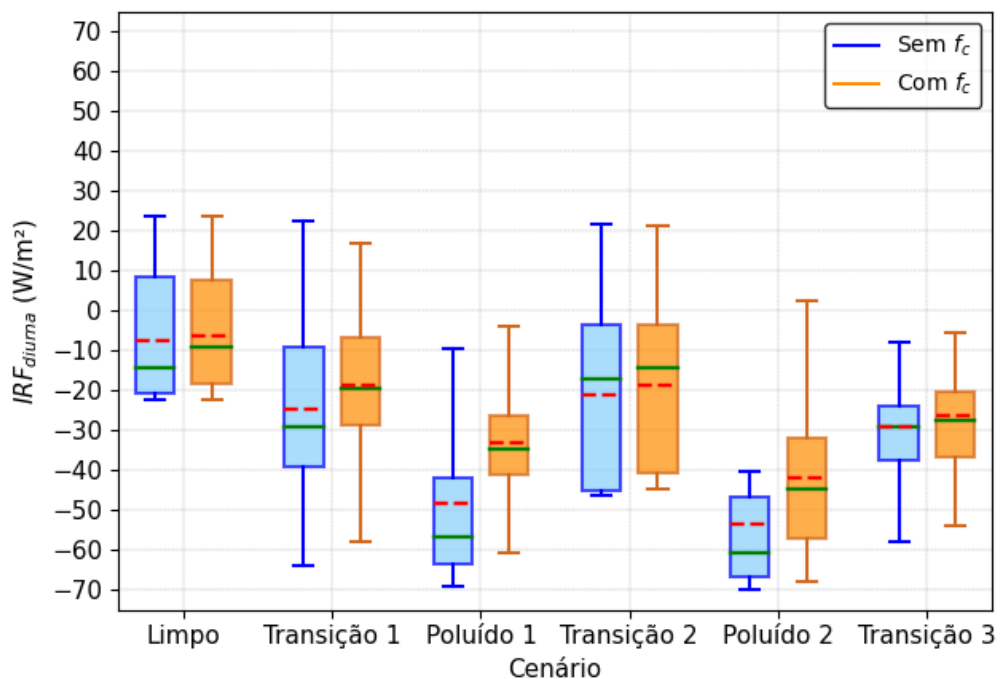


Figura 63 - IRF diurnas separadas conforme os cenários resultantes para o ano de 2014. Durante alguns dias do período poluído foram observadas quedas significativas nas médias de concentrações volumétricas de  $\beta_{\text{esp.}}$ , Org. e CCN, e por isso o cenário poluído foi dividido em 2 subintervalos, dando assim origem ao cenário "transição 2". As linhas pontilhadas vermelhas indicam os valores das médias, e as contínuas verdes mostram os valores das medianas. Fonte: Autor.



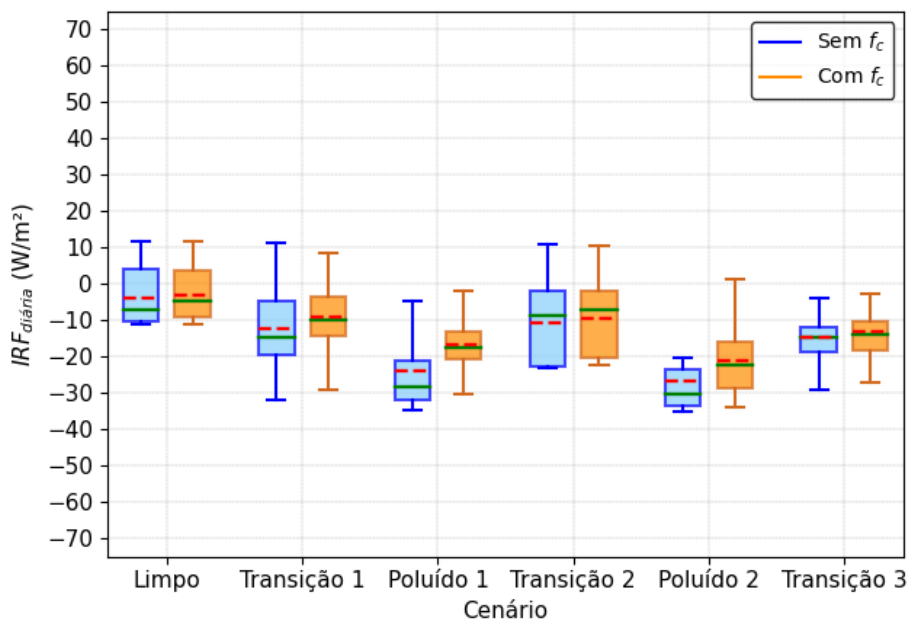


Figura 64 - IRF diárias conforme os cenários de 2014. Fonte: Autor.

Devido à maneira com que as IRF diárias foram definidas e calculadas, os resultados para todos os cenários de 2014 apresentam módulos cercados por intervalos mais restritos que os seus correspondentes diurnos. As estatísticas representativas das IRF diárias também possuem valores mais negativos conforme os dias limpos passam e os mais poluídos se aproximam, de modo que os resultados para a transição 2 ainda aumentam de acordo com o sinal de queda exibido pelos parâmetros de aerossóis na Figura 22. As IRF diárias que não consideram a  $f_c$  também são mais assimétricas que os correspondentes atrelados à variação de  $f_c$ , apesar desses últimos serem menos assimétricos (médias praticamente iguais às medianas) que aqueles referentes às IRF diurnas (Figura 63).

As IRF's diurnas e diárias calculadas para a época poluída de 2015 apresentam médias, medianas e percentis mais negativos que os resultados relativos aos períodos limpo e de transição. Enquanto as médias e medianas de IRF diária adotam valores entre 0 W/m<sup>2</sup> e -10 W/m<sup>2</sup> no período limpo, por exemplo, os valores oriundos do cenário poluído podem estar inseridos entre -20 e -30 W/m<sup>2</sup>. Uma observação importante neste ponto, aliás, é que as médias calculadas com e sem a consideração de  $f_c$  são praticamente as mesmas conforme a atmosfera está mais limpa, o que não ocorre para o cenário poluído. Isso é interessante pois, apesar do nível elevado de aerossóis e a quantidade menor de nuvens na época poluída, a refletividade das nuvens é maior que aquela causada pelos aerossóis.

Nos cenários poluído e de transição de 2015 há uma maior dispersão de dados para as IRF que não consideram a fração de cobertura do céu, o que é evidenciado pelos valores mais extremos nos limites inferior e superior dos *boxplots* azulados nas Figuras 65 e 66. Isso mostra que, apesar de haver uma maior  $f_c$  no período limpo (ver Figura 56), esse parâmetro também restringe os valores de IRF no cenário poluído.

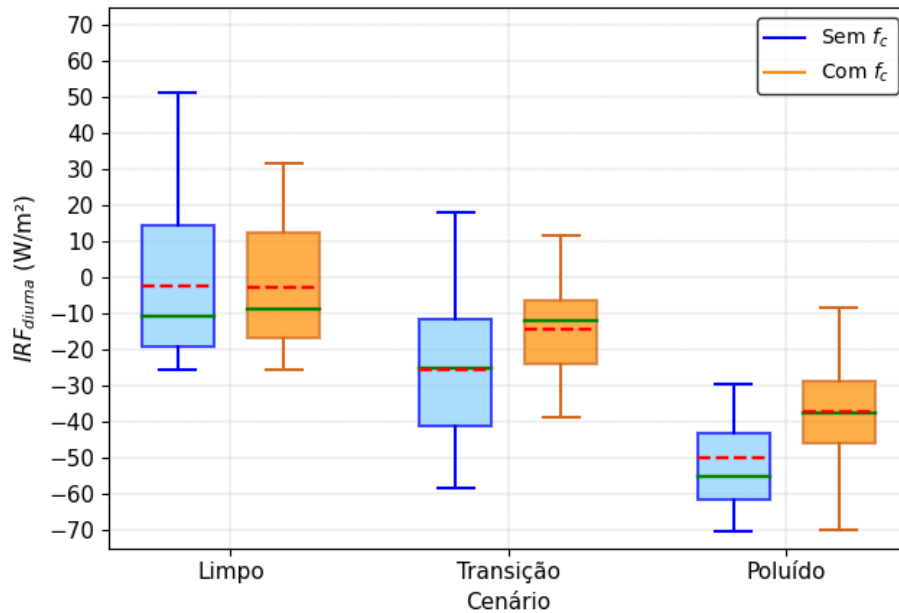


Figura 65 - IRF diurnas separadas de acordo com os cenários configurados para o ano de 2015. Fonte: Autor.

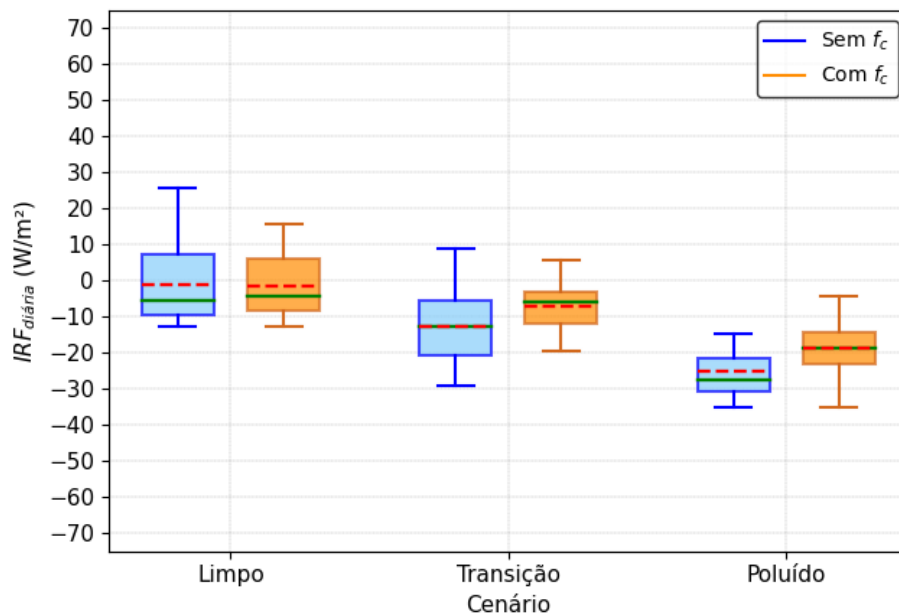


Figura 66 - IRF diárias discriminadas de acordo com os cenários configurados para o ano de 2015. Fonte: Autor.

### 5.4.1.3 - Distribuições anuais

Assim como para as distribuições mostradas na seção 5.4.1.2, os resultados de IRF diurnas e diárias anuais também são analisados a partir dos diagramas de caixa correspondentes. Aqui, no entanto, esses resultados são complementados pelos histogramas (frequências relativas) das distribuições anuais.

A Figura 67 apresenta as distribuições de IRF diurnas para 2014 e 2015 sem levar em conta a multiplicação pela média de  $f_c$ . Os resultados mostram que, em geral, as estatísticas referentes a 2014 são mais negativas que as de 2015. A mediana de 2015 equivale a cerca de 47% da de 2014, enquanto a média responde por 66% da média de 2014. Ambas as distribuições apresentam uma pequena assimetria para valores negativos, sendo que a de 2015 exibe valores mais dispersos que a de 2014. As distribuições que consideram a  $f_c$  (Figura 68), por sua vez, são um pouco mais assimétricas que as anteriores, exibindo valores de curtose mais próximos de zero. Novamente as estatísticas relativas a 2014 são mais negativas que aquelas concernentes a 2015. A mediana de 2015 cobre cerca de 44% da de 2014, e a média equivale a aproximadamente 64% da média do mesmo ano. Esses resultados sugerem que, apesar da semelhança nas proporções relativas às médias e às medianas, as diferenças no formato das distribuições com e sem considerar a  $f_c$  podem ser significativas.

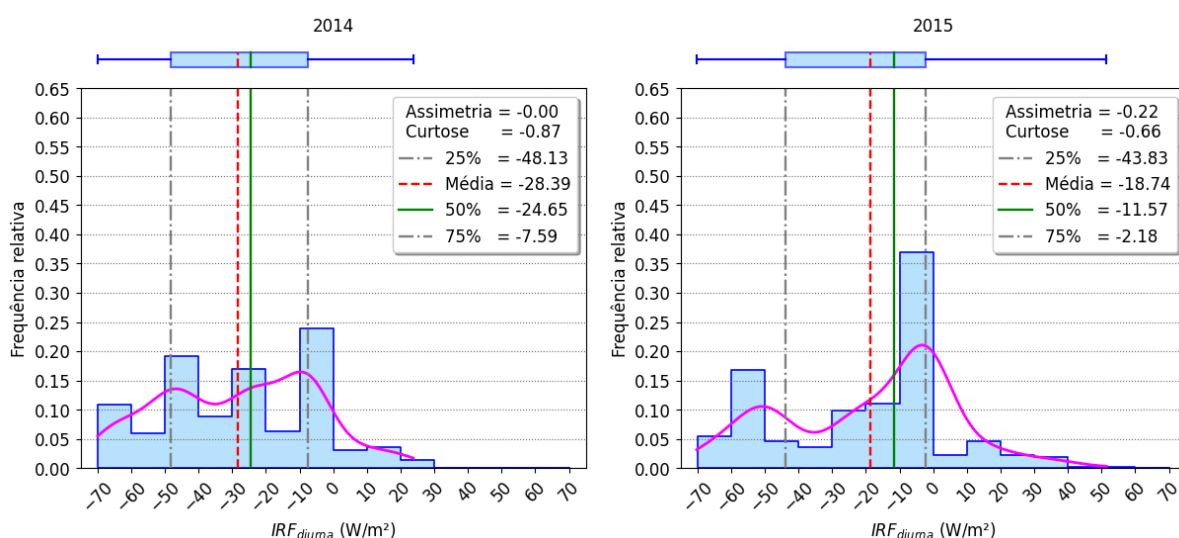


Figura 67 - *Boxplots* e histogramas de frequências relativas de IRF diurnas para 2014 e 2015 sem considerar a  $f_c$  no T3. As linhas pontilhadas vermelhas indicam o valor da média, e as linhas verdes mostram os valores das medianas. Fonte: Autor.

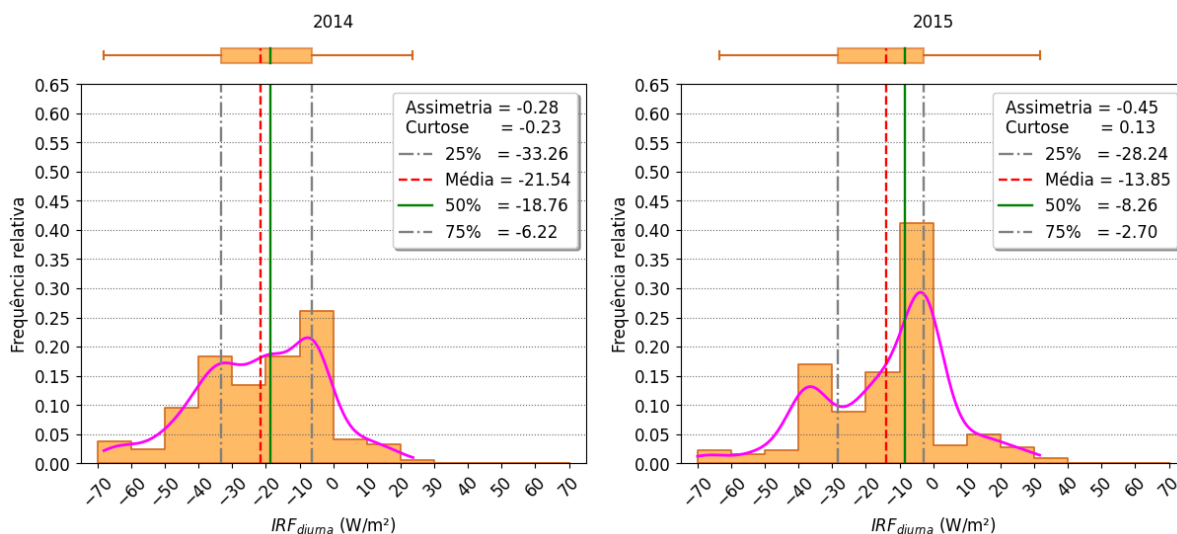


Figura 68 - *Boxplots* e histogramas de frequências relativas de IRF diurnas para 2014 e 2015 levando em conta a  $f_c$  no T3. As linhas pontilhadas vermelhas indicam o valor da média, e as linhas contínuas verdes mostram os valores das medianas. Fonte: Autor.

Os diagramas de caixa e os histogramas referentes às distribuições anuais de IRF diária são expostos na Figura 69, enquanto as multiplicadas pela  $f_c$  são exibidas na Figura 70. No caso das primeiras, quando comparadas às distribuições anuais diurnas, é possível notar que os percentis 25 e 75 estão confinados a intervalos mais restritos de valores. Também nesse caso as médias e medianas são mais próximas entre si e, devido ao modo com o qual as IRF diárias foram calculadas, as proporções entre os resultados de 2014 e 2015 são novamente equivalentes a 47% e 66% para a mediana e a média, respectivamente. Os resultados de IRF diárias multiplicados pela média diurna de  $f_c$  mostram distribuições mais homogêneas e se aproximando mais à distribuição normal, com quartis inferior ( $Q_1$ ) e superior ( $Q_3$ ) dos *boxplots* correspondentes confinados a intervalos ainda mais restritos que aqueles relativos às distribuições que não consideram a  $f_c$ . Esse resultado, conjuntamente com aqueles mostrados na Figura 68, indicam que a multiplicação das IRF pelos valores (médias diurnas para cada dia) correspondentes de  $f_c$  seleciona e restringe o conjunto de dados final, eliminando IRF extremos e gerando funções densidade de probabilidade com curtose (módulo) menor.

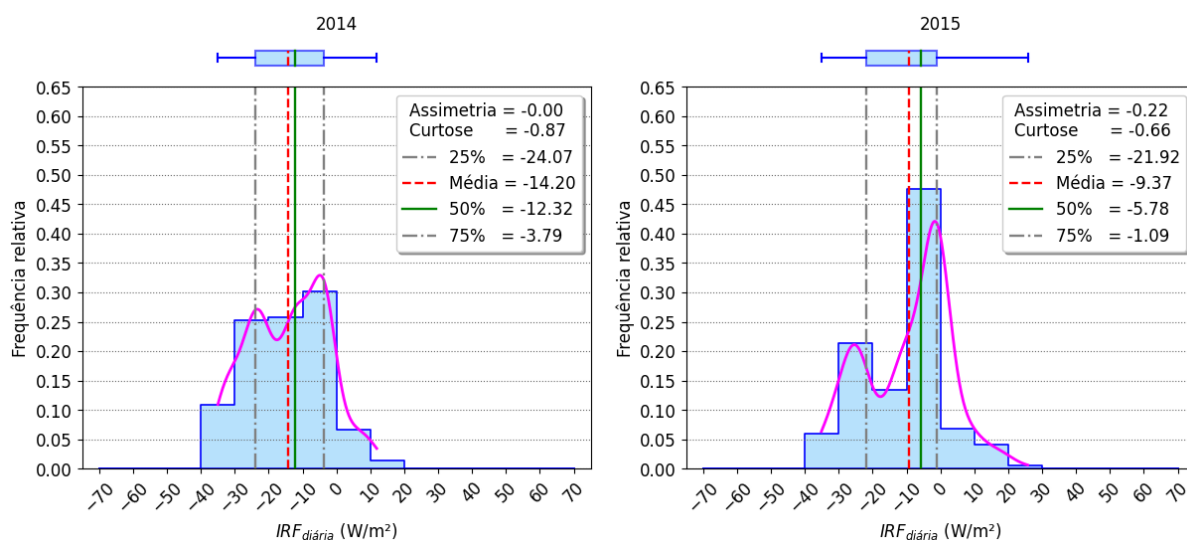


Figura 69 - *Boxplots* e histogramas de frequências relativas de IRF diárias para 2014 e 2015 sem considerar a  $f_c$  no T3. As linhas pontilhadas vermelhas indicam o valor da média, e as linhas verdes mostram os valores das medianas. Fonte: Autor.

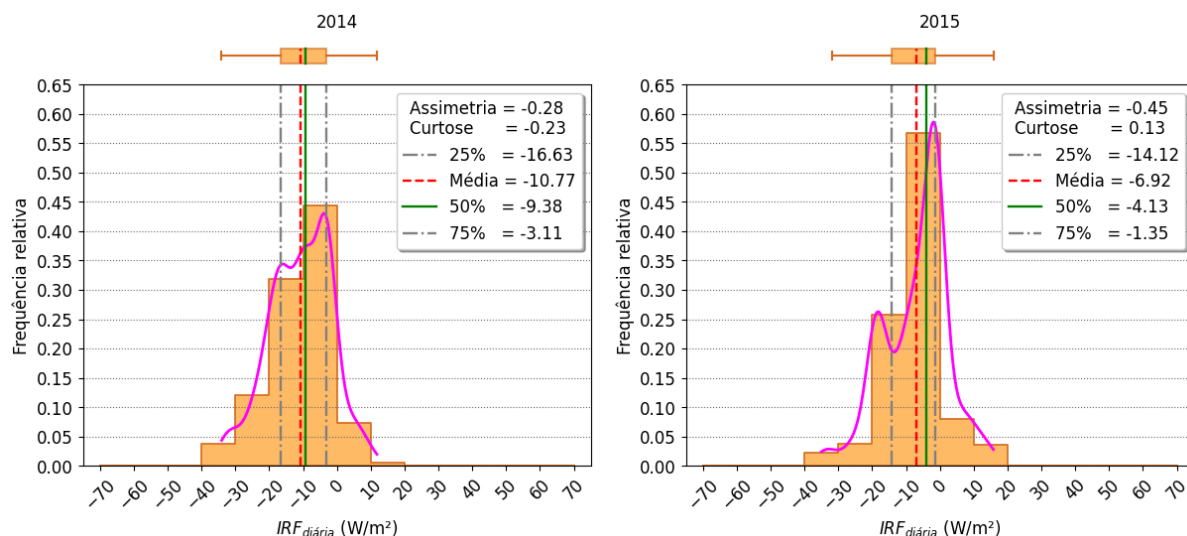


Figura 70 - *Boxplots* e histogramas de frequências relativas de IRF diárias para 2014 e 2015 levando em conta a  $f_c$  no T3. Fonte: Autor.

Os resultados das principais estatísticas (média, mediana e percentis 25 e 75) referentes às IRF diárias calculadas segundo o valor de irradiância de referência fixo foram discriminados de acordo com os períodos secos/chuvosos, de acordo com os diferentes cenários de disponibilidade de aerossóis e também conforme os trimestres de 2014 e 2015. Uma compilação dos valores finais para estes dois anos é apresentada nos Quadros 7 e 8, respectivamente.

Quadro 7 - Médias, medianas e percentis (25 e 75) calculados para as IRF diárias (unidades de  $W/m^2$ ) referentes aos diferentes períodos, cenários e trimestres de 2014. Os diagramas de caixa que ilustram as estatísticas referentes aos trimestres de 2014 são exibidos no Apêndice B deste trabalho.

Intervalos X Estatísticas	Sem <i>Cloud Fraction</i>				Com <i>Cloud Fraction</i>			
	25%	50%	75%	Média	25%	50%	75%	Média
<b>2014</b>	-24.07	-12.32	-3.79	-14.20	-16.63	-9.38	-3.11	-10.77
<b>Chuvoso</b>	-23.25	-13.15	-3.97	-13.67	-19.53	-10.59	-3.17	-11.22
<b>Transição</b>	-24.04	-19.38	-13.26	-17.87	-17.76	-12.67	-6.77	-12.64
<b>Seco</b>	-31.23	-28.97	-20.91	-24.32	-20.52	-18.84	-13.15	-16.38
<b>Limpo</b>	-10.28	-7.19	4.23	-3.79	-9.08	-4.48	3.79	-3.11
<b>Transição_1</b>	-19.51	-14.55	-4.57	-12.32	-14.37	-9.75	-3.32	-9.24
<b>Poluído_1</b>	-31.72	-28.28	-20.90	-24.07	-20.53	-17.40	-13.10	-16.63
<b>Transição_2</b>	-22.60	-8.48	-1.69	-10.57	-20.32	-7.04	-1.69	-9.38
<b>Poluído_2</b>	-33.45	-30.32	-23.39	-26.69	-28.54	-22.44	-15.97	-21.03
<b>Transição_3</b>	-18.73	-14.51	-11.85	-14.60	-18.30	-13.83	-10.16	-13.07
<b>JFM</b>	-10.18	-7.08	4.60	-3.51	-8.86	-4.45	3.87	-2.80
<b>AMJ</b>	-17.15	-12.29	-3.51	-9.46	-13.50	-9.55	-1.85	-7.28
<b>JAS</b>	-29.30	-23.47	-16.10	-22.31	-20.51	-15.65	-9.67	-15.47
<b>OND</b>	-31.76	-23.19	-13.39	-21.05	-23.99	-18.40	-10.08	-17.20

Fonte: Autor

Quadro 8 - Médias, medianas e percentis (25 e 75) calculados para as IRF diárias (unidades de  $W/m^2$ ) referentes aos diferentes períodos, cenários e trimestres de 2015. Os diagramas de caixa que ilustram as estatísticas referentes aos trimestres de 2015 são exibidos no Apêndice B deste trabalho.

Intervalos X Estatísticas	Sem <i>Cloud Fraction</i>				Com <i>Cloud Fraction</i>			
	25%	50%	75%	Média	25%	50%	75%	Média
<b>2015</b>	-21.92	-5.78	-1.09	-9.37	-14.12	-4.13	-1.35	-6.92
<b>Chuvoso</b>	-9.51	-5.37	7.20	-1.09	-8.28	-4.31	6.30	-1.35
<b>Seco</b>	-29.15	-22.33	-12.47	-20.01	-19.50	-14.34	-5.87	-13.91
<b>Limpo</b>	-9.51	-5.37	7.20	-1.09	-8.28	-4.31	6.30	-1.35
<b>Transição</b>	-20.58	-12.47	-5.65	-12.69	-11.95	-5.87	-3.09	-7.11
<b>Poluído</b>	-30.80	-27.55	-21.48	-25.05	-22.96	-18.70	-14.34	-18.58
<b>JFM</b>	-9.63	-7.27	6.42	-2.29	-8.55	-5.71	5.75	-2.32
<b>AMJ</b>	-2.17	8.42	13.01	6.09	-1.72	5.61	10.61	4.44
<b>JAS</b>	-21.92	-13.65	-6.12	-13.72	-12.66	-6.55	-3.23	-7.77
<b>OND</b>	-31.76	-28.07	-21.48	-25.29	-24.85	-18.97	-14.52	-19.05

Fonte: Autor

As médias anuais de IRF sem a multiplicação por  $f_c$  mostradas nos Quadros 7 e 8 para 2014 e 2015 foram de  $-14.20 W/m^2$  e  $-9.37 W/m^2$ , respectivamente. Já os intervalos interquartis ( $[Q_1; Q_3]$ , ou seja, dado pelos valores dos percentis 25 e 75) foram  $[-24.07; -3.79] W/m^2$  e  $[-21.92; -1.09] W/m^2$ , respectivamente.

#### 5.4.2 - IRF de acordo com fluxo radiativo de referência sazonal

A irradiância de referência utilizada para calcular as forçantes exibidas nos Quadros 7 e 8 foi obtida de acordo com os dias mais limpos identificados segundo os critérios elencados no Capítulo 4. Essa referência advém dos períodos limpos de 2014 e 2015, quando as características e condições naturais da atmosfera podem diferir daquelas apresentadas durante os períodos poluídos destes mesmos anos.

Somadas à variabilidade na carga de aerossóis já apresentada, tais diferenças sazonais modificam valores de  $r_{\text{eff}}$  e LWC das nuvens, fazendo com que o estudo isolado do primeiro efeito indireto dos aerossóis seja dificultado.

Para considerar variações sazonais nas propriedades microfísicas de nuvens quentes, uma abordagem adicional para o cálculo de IRF foi realizada. Essa aproximação consistiu em construir modelos de nuvens quentes a partir de dados de LWC (também dentro do intervalo [0.2;0.4] g/m<sup>3</sup>) e  $r_{\text{eff}}$  obtidos no cenário mais “limpo” possível identificado sobre a floresta amazônica ao longo da IOP 2. Os conjuntos de dados utilizados são oriundos dos instrumentos que estavam a bordo do avião alemão HALO. A partir destes dados foram configurados modelos de nuvens quentes (ver Quadro 1 do Apêndice C) referentes às medidas obtidas durante os voos AC09 e AC18, e esses modelos foram então inseridos no *LibRadtran*, o qual simulou as irradiâncias integradas ascendentes no TOA para  $\theta_0$  nulo e distância Terra-Sol igual a 1 U.A. Os resultados obtidos, 766.7 W/m<sup>2</sup> e 769.1 W/m<sup>2</sup>, foram utilizados para calcular a média (767.9 W/m<sup>2</sup>) para a situação de *background* mais “limpa” possível identificada sobre a floresta amazônica durante o mês de Setembro de 2014. Essa média foi utilizada como uma segunda referência para o cálculo de IRF, somente para as irradiâncias (integradas e corrigidas pela equação 5.1) relativas aos períodos poluídos de 2014 e 2015.

Assim como para o período poluído de 2014, a identificação de cenários de referência prístina (aerossóis de fundo) durante os períodos de transição possibilitaria o cálculo de IRF que acompanhasse a variabilidade sazonal das condições naturais atmosféricas. Isso poderia ser realizado de maneira mais completa, em teoria, através da identificação de valores de irradiância “limpos” para cada um dos dias pertencentes aos períodos de transição, o que a escassez de dados “limpos” de características de nuvens para esse intervalo de tempo não permite. Sendo assim, uma aproximação inicial foi considerada nestes casos. A Figura 71 mostra os valores de referência “limpos” resultantes, além daqueles previamente obtidos para os períodos limpo e poluído. Conforme mostrado, as irradiâncias de referência para cada um dos dias dos intervalos de transição foram calculadas de modo a variar linearmente entre os valores de referência dos cenários limpo e poluído, originando então novas forçantes diárias (Figura 72) que acompanham a variação sazonal das condições naturais da atmosfera.



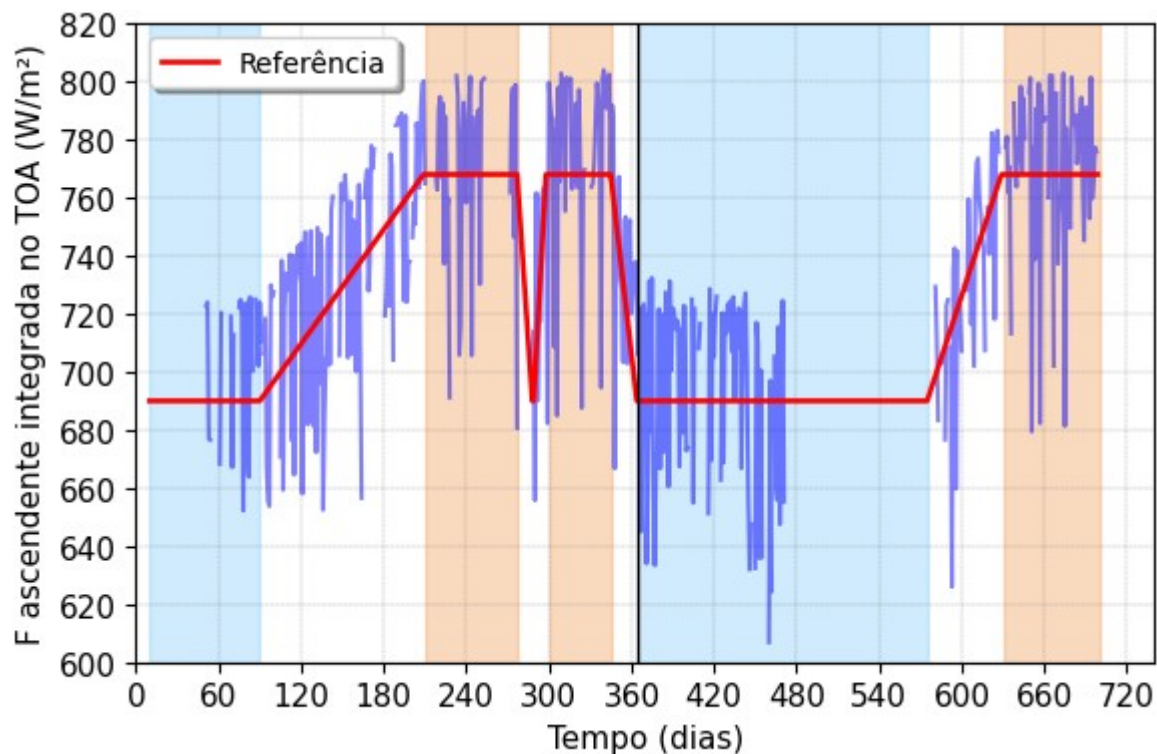


Figura 71 - F ascendentes para 2014 e 2015. Os valores foram calculados para cada dia e correspondem ao meio dia solar local no T3. A linha vermelha indica a variação do valor de referência "limpa" de acordo os cenários de 2014 e 2015. Fonte: Autor.

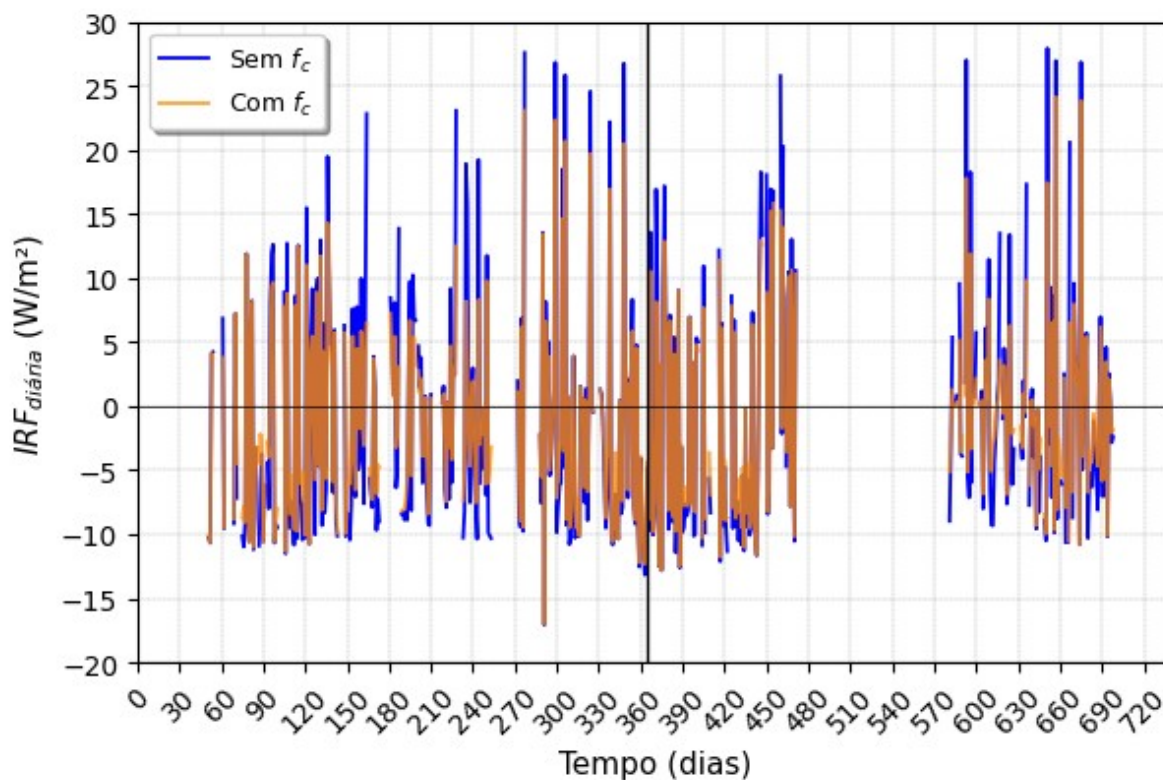


Figura 72 - Forçantes radiativas instantâneas diárias calculadas de acordo com os valores de referência representados pela linha vermelha mostrada na Figura 71. Fonte: Autor.

Conforme exibido na Figura 72, tais IRF diárias oscilam em torno do valor nulo, diferentemente do que ocorre para as calculadas de acordo com o valor de irradiância de referência fixo (Figura 58). Apesar disso, os valores mostrados são, em média, praticamente constantes ao longo de 2014 e 2015, sendo que a maioria dos pontos admite valores negativos. É possível perceber também variações sutis que, em média, podem ou não estar relacionadas a propriedades de aerossóis.

#### 5.4.2.1 - Distribuições chuvosas/secas e segundo cenários limpo/poluído

As distribuições de IRF diárias para as estações chuvosa, seca e para os períodos de transição são apresentadas pelos *boxplots* nas Figuras 73 e 74, os quais correspondem, respectivamente, aos anos de 2014 e 2015. Com relação aos resultados de 2014, os limites inferior e superior (percentis 25 e 75) dos diagramas de caixa mostram que, para todas as estações (chuvosa, seca e transição), os 50% dos dados no centro das distribuições pertencem ao intervalo  $[-10.0; +7.0]$  W/m<sup>2</sup>, com médias negativas e muito próximas de zero. A distribuição de IRF diárias para a estação chuvosa é mais heterogênea do que para a época seca, indicando que há uma maior amplitude na variação de valores para a estação chuvosa. Os resultados para todas as estações mostram que, em comparação com as IRF não multiplicadas pela  $f_c$ , aquelas que levam em conta esse parâmetro apresentam distribuições mais homogêneas e menos assimétricas, o que fica evidente devido a uma maior aproximação entre os valores das médias e das medianas. Estas estatísticas, aliás, adotam valores negativos para todas as distribuições de 2014 e 2015, sendo que para os dois anos as médias referentes à estação chuvosa são mais negativas que as relativas à época de estiagem. Tal observação é interessante, pois aponta que a forçante radiativa instantânea devido aos efeitos indiretos de aerossóis em nuvens quentes ( $IRF_{aci}$ ) é mais intensa na época chuvosa do que no período seco.

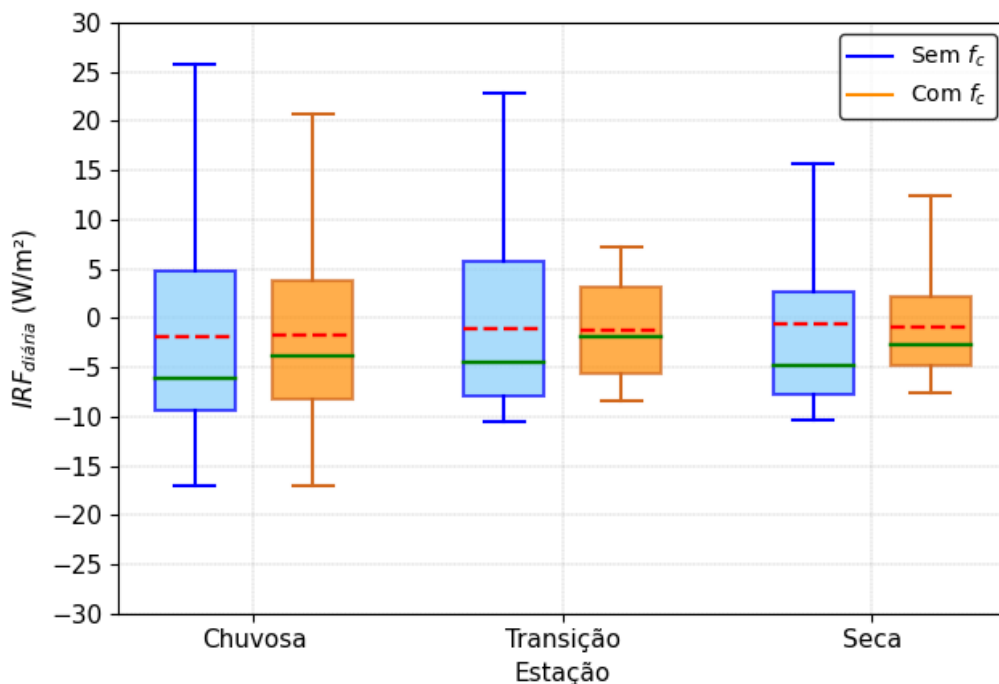


Figura 73 - IRF diárias calculadas de acordo com valores de irradiância de referência variáveis e separadas conforme as estações de 2014.

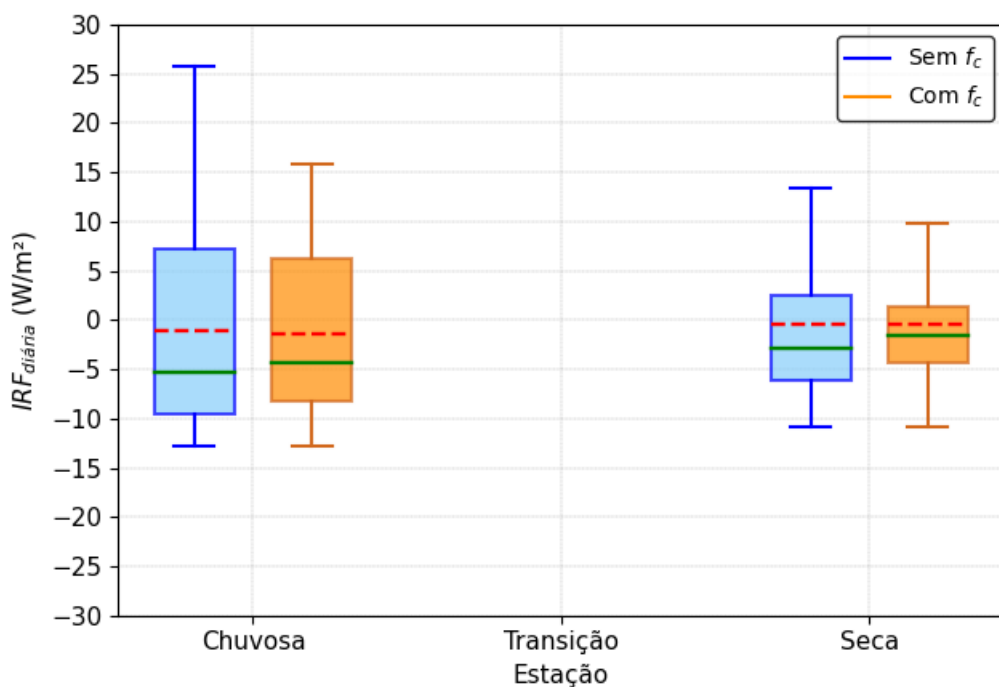


Figura 74 - IRF diárias calculadas de acordo com valores de irradiância de referência variáveis e separadas conforme as estações de 2015. As linhas pontilhadas vermelhas (contínuas verdes) indicam os valores das médias (medianas). Fonte: Autor.

Os *boxplots* de IRF diárias segundo os diferentes cenários de disponibilidade de aerossóis em 2014 e 2015 (Figuras 75 e 76, respectivamente) indicam que as distribuições multiplicadas pela  $f_c$  são mais homogêneas e menos assimétricas que as que não levam em conta esse parâmetro. As distribuições relativas a todos os cenários de ambos os anos apresentam valores centrais compreendidos entre  $-10$   $W/m^2$  e aproximadamente  $+7.0$   $W/m^2$ , assim como ocorreu para as distribuições vinculadas às estações chuvosa, seca e de transição. As médias e medianas para todos os cenários limpos e poluídos correspondem a valores negativos, sendo que o módulo de tais estatísticas é maior para os períodos limpos. Tal fato, que está vinculado a uma maior dispersão de valores de IRF diária na época limpa, pode ser explicado, no caso das distribuições que não consideram a  $f_c$ , por uma maior variabilidade nos valores de  $r_{eff}$  (ver legendas nas Figuras 40, 42, 45 e 47) das nuvens modeladas para as épocas limpas. No caso dos resultados multiplicados por  $f_c$  isso também pode ocorrer, e uma maior  $f_c$  na época limpa (ver Figura 56) torna as médias e medianas ainda mais negativas do que aquelas obtidas para os períodos poluídos.

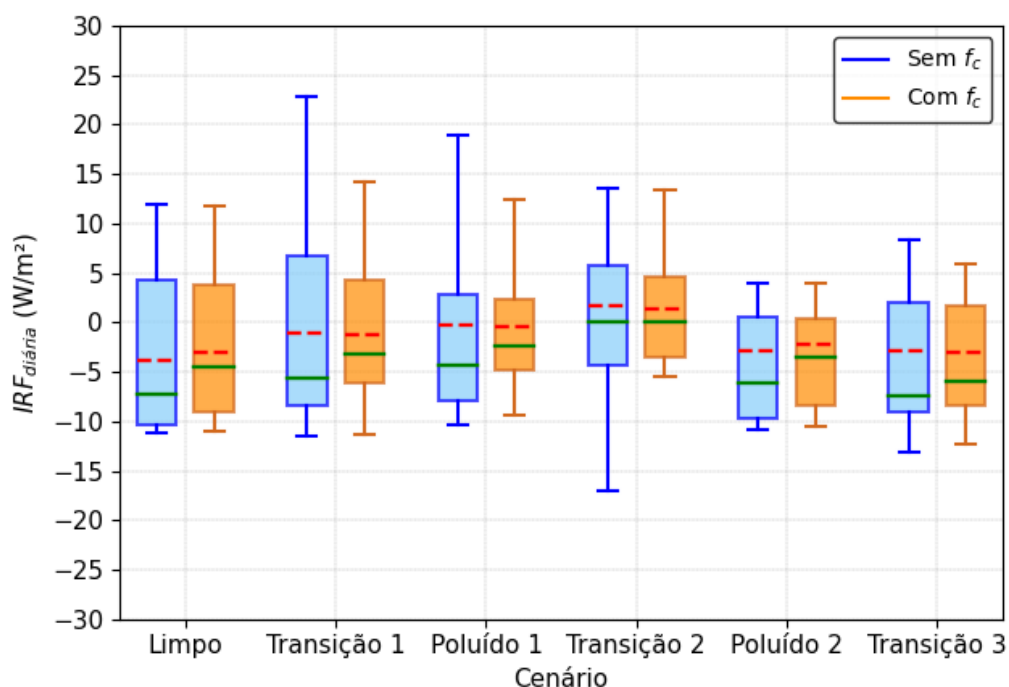


Figura 75 - IRF diárias calculadas de acordo com valores de irradiância de referência variáveis e separadas conforme os cenários de disponibilidade de aerossóis em 2014. Fonte: Autor.

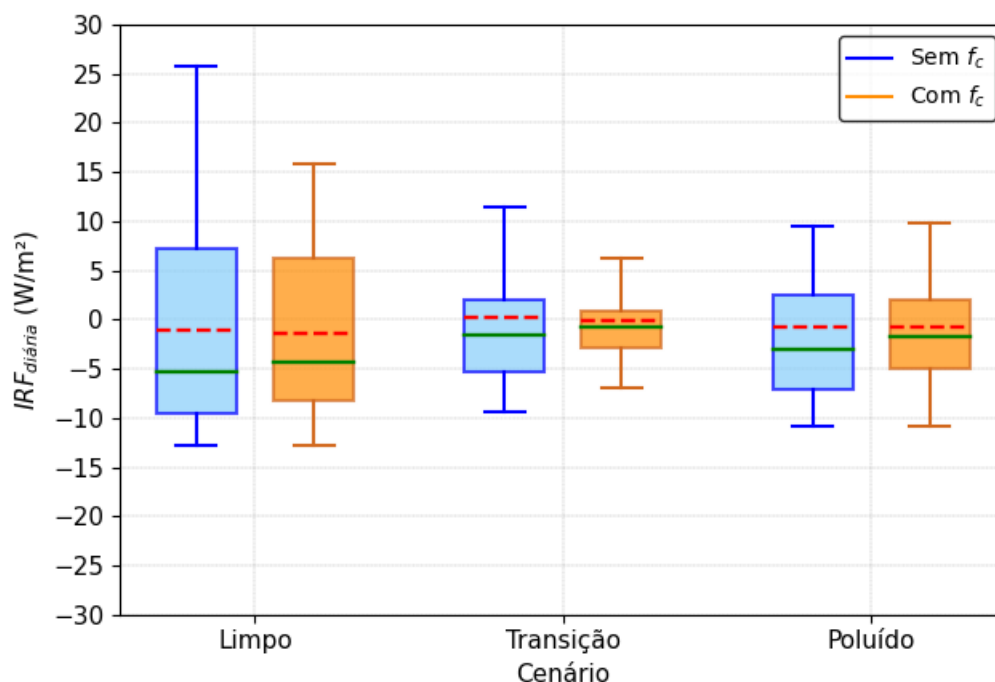


Figura 76 - IRF diárias calculadas de acordo com valores de irradiância de referência variáveis e separadas conforme os cenários de disponibilidade de aerossóis em 2015. Fonte: Autor.

#### 5.4.2.2 - Distribuições trimestrais

As variações sutis de valores de IRF diárias mostradas na Figura 72 demandam uma investigação mais detalhada. Uma tentativa de obter esse detalhamento foi realizada através da avaliação das distribuições trimestrais de IRF diárias para 2014 e 2015, as quais são exibidas nas Figuras 77 e 78, respectivamente. As séries temporais de  $\beta_{\text{esp., Org.}}$ , CCN e AOD para os anos de 2014 e 2015 (Figuras 22 e 23) permitem admitir uma atmosfera mais limpa na região do T3 para o primeiro trimestre de cada um desses anos e, no caso de atmosfera poluída, os 2 últimos trimestres podem ser considerados. Uma vez que isso seja admitido, os resultados mostram que as distribuições de IRF diária para o primeiro trimestre dos dois anos são mais heterogêneas que aquelas referentes aos dois últimos trimestres. Além disso, é possível notar também que, em comparação com os dois últimos trimestres, o primeiro apresenta distribuições que são mais assimétricas. Para todos os trimestres de 2014 e para o primeiro, terceiro e último trimestres de 2015 as médias e medianas admitem valores negativos, o que não acontece para o segundo trimestre de 2015. Uma possível explicação para a ocorrência desses valores positivos durante o segundo trimestre de 2015 reside na

própria referência escolhida, a qual utilizou dados colhidos, na sua maior parte, somente em 2014. Em comparação com os 2 últimos trimestres, as médias e medianas do primeiro (para ambos os anos) são mais negativas, novamente apontando para a interpretação de que forçantes mais negativas em períodos mais limpos podem ocorrer devido a uma maior variabilidade nos valores de  $r_{eff}$  das nuvens e também devido a uma maior fração de cobertura do céu (no caso das IRF multiplicadas por  $f_c$ ) na época limpa.

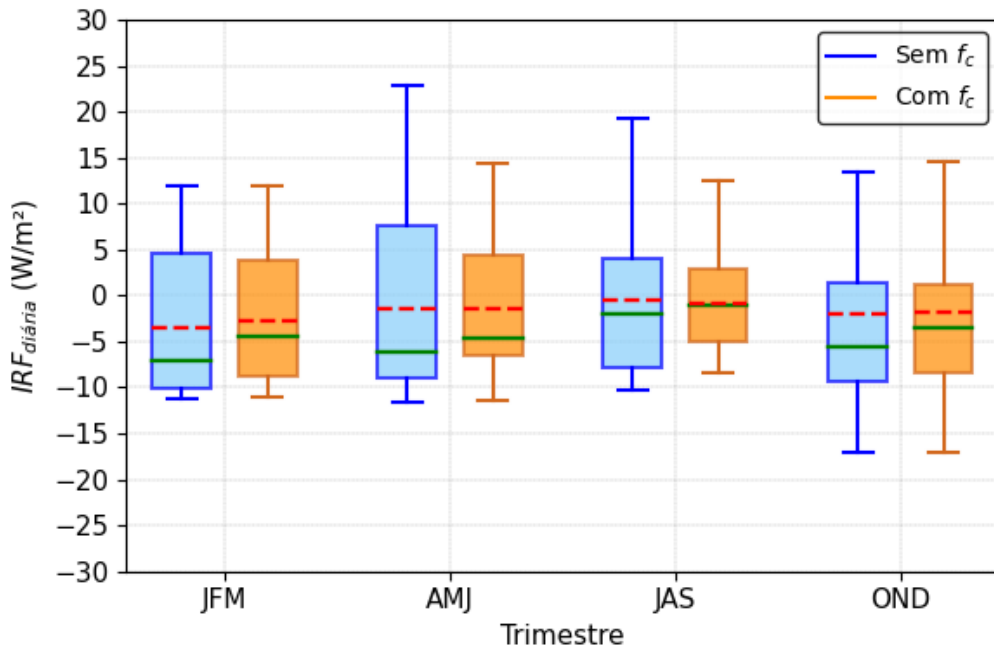


Figura 77 - IRF diárias calculadas de acordo com valores de irradiância de referência variáveis e separadas conforme os trimestres de 2014.

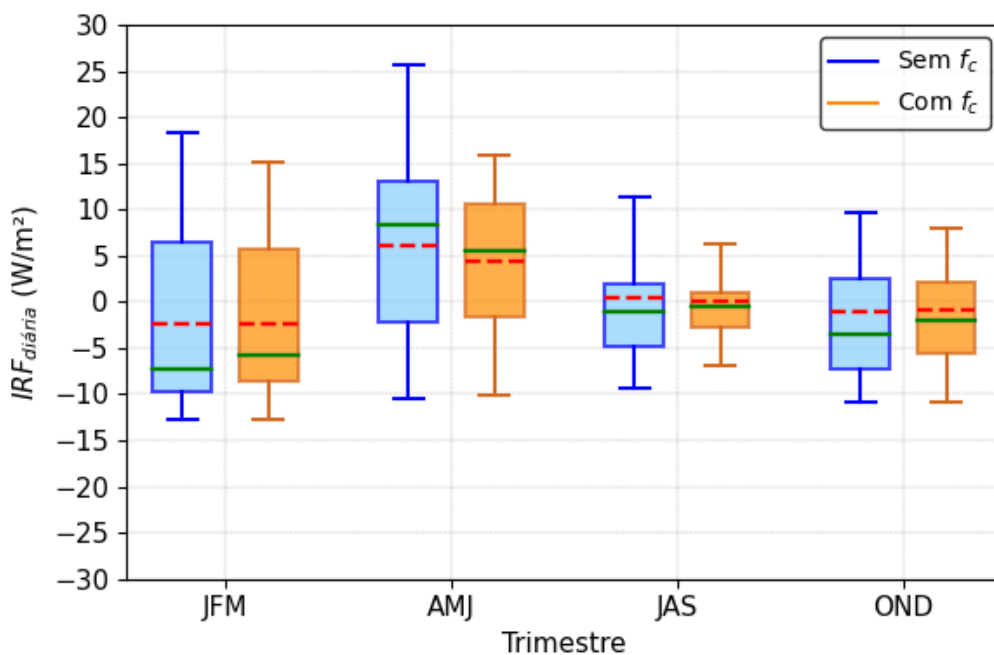


Figura 78 - IRF diárias calculadas de acordo com valores de irradiância de referência variáveis e separadas conforme os trimestres de 2015.

### 5.4.2.3 - Distribuições anuais

Os resultados de IRF diária oriundos do valor de irradiância de referência variável permitem a derivação de estatísticas anuais nas quais o primeiro efeito indireto de aerossóis é melhor descrito. As estatísticas resultantes para 2014 e 2015 exibidas nas Figuras 79 e 80 e nos Quadros 9 e 10 mostram que, comparativamente às linhas correspondentes nos Quadros 7 e 8, as IRF diárias apresentam módulos menores ao considerar as variações sazonais na estrutura microfísica das nuvens.

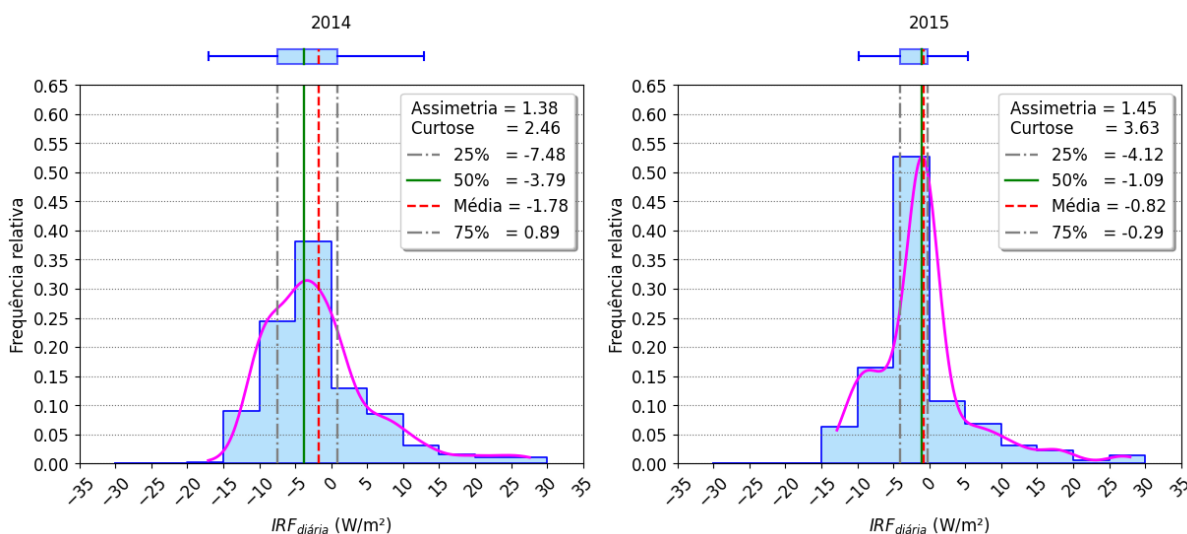


Figura 79 - *Boxplots* e histogramas de frequências relativas de IRF diárias para 2014 e 2015 sem considerar a  $f_c$  no T3 e de acordo com as irradiâncias de referência variáveis apresentadas na Figura 71. As linhas pontilhadas vermelhas indicam o valor da média, e as linhas verdes mostram os valores das medianas. Fonte: Autor.

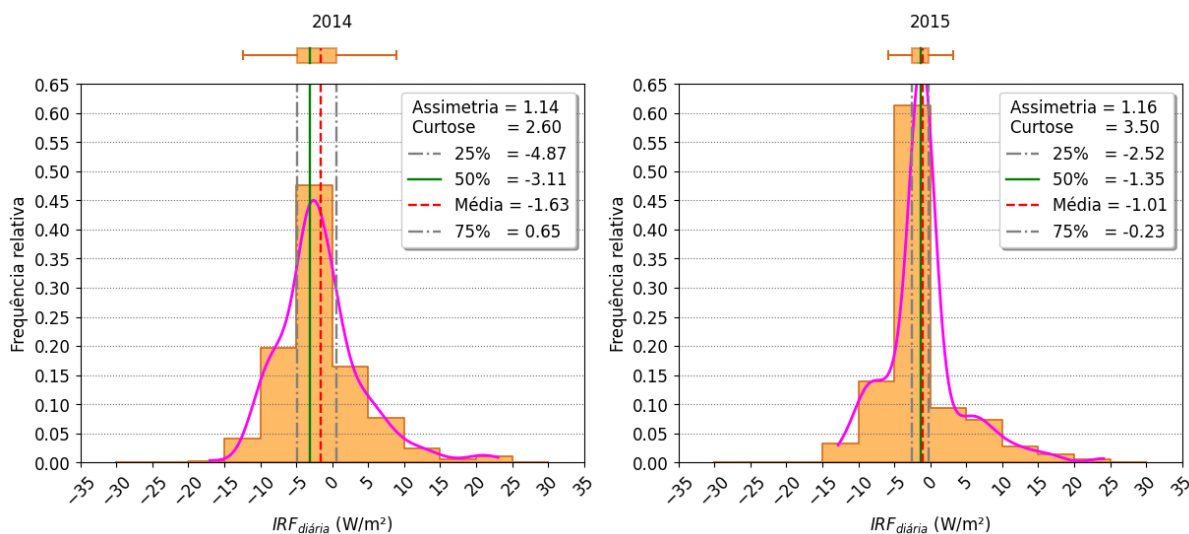


Figura 80 - *Boxplots* e histogramas de frequências relativas de IRF diárias para 2014 e 2015 (considerando a  $f_c$ ) e de acordo com as irradiâncias de referência variáveis apresentadas na Figura 71. Fonte: Autor.

O efeito das variações sazonais de condições atmosféricas sobre o tamanho das gotas de nuvens quentes é evidenciado pelas variações percentuais de  $r_{\text{eff}}$  das médias dos períodos limpos de 2014 e 2015 com relação à média dos  $r_{\text{eff}}$  no estado de referência limpo. Tais valores foram de 21.59% e 20.74%, enquanto para os intervalos poluídos os resultados foram de -18.72% (redução), para ambos os anos. As variações percentuais de fluxo no TOA, por sua vez, foram de 1.62% e 0.50%, enquanto para os intervalos poluídos os resultados foram de 0.82% e 0.34% de aumento, apesar de o LWC ser o mesmo para os períodos limpo e poluído.

Quadro 9 - Médias, medianas e percentis calculados para as IRF diárias de 2014 (unidades de  $\text{W}/\text{m}^2$ ) calculadas segundo a irradiância de referência sazonal exibida na Figura 71.

Intervalos X Estatísticas	Sem <i>Cloud Fraction</i>				Com <i>Cloud Fraction</i>			
	25%	50%	75%	Média	25%	50%	75%	Média
<b>2014</b>	-7.48	-3.79	0.89	-1.78	-4.87	-3.11	0.65	-1.63
<b>Chuvoso</b>	-9.46	-6.08	4.79	-1.89	-8.19	-3.88	3.81	-1.67
<b>Transição</b>	-7.85	-4.53	5.71	-1.10	-5.67	-1.87	3.12	-1.26
<b>Seco</b>	-7.72	-4.85	2.71	-0.63	-4.82	-2.67	2.16	-0.84
<b>Limpo</b>	-10.28	-7.19	4.23	-3.79	-9.08	-4.48	3.79	-3.11
<b>Transição_1</b>	-8.41	-5.63	6.71	-1.12	-6.14	-3.25	4.34	-1.20
<b>Poluído_1</b>	-7.91	-4.33	2.84	-0.25	-4.89	-2.45	2.27	-0.48
<b>Transição_2</b>	-4.31	0.04	5.81	1.65	-3.54	0.02	4.56	1.30
<b>Poluído_2</b>	-9.69	-6.14	0.50	-2.81	-8.37	-3.55	0.35	-2.23
<b>Transição_3</b>	-9.11	-7.40	2.04	-2.88	-8.39	-5.95	1.76	-2.97
<b>JFM</b>	-10.18	-7.08	4.60	-3.51	-8.86	-4.45	3.87	-2.80
<b>AMJ</b>	-9.01	-6.16	7.59	-1.48	-6.54	-4.58	4.46	-1.41
<b>JAS</b>	-7.91	-2.01	4.00	-0.50	-5.02	-1.08	2.81	-0.85
<b>OND</b>	-9.30	-5.62	1.32	-1.97	-8.35	-3.55	1.16	-1.73

Fonte: Autor



Quadro 10 - Médias, medianas e percentis calculados para as IRF diárias de 2015 (unidades de  $W/m^2$ ) calculadas segundo a irradiância de referência sazonal exibida na Figura 71.

Intervalos X Estatísticas	Sem <i>Cloud Fraction</i>				Com <i>Cloud Fraction</i>			
	25%	50%	75%	Média	25%	50%	75%	Média
<b>2015</b>	-4.12	-1.09	-0.29	-0.82	-2.52	-1.35	-0.23	-1.01
<b>Chuvoso</b>	-9.51	-5.37	7.20	-1.09	-8.28	-4.31	6.30	-1.35
<b>Seco</b>	-6.20	-2.85	2.51	-0.40	-4.28	-1.58	1.38	-0.51
<b>Limpo</b>	-9.51	-5.37	7.20	-1.09	-8.28	-4.31	6.30	-1.35
<b>Transição</b>	-5.38	-1.58	1.94	0.17	-2.86	-0.84	0.95	-0.11
<b>Poluído</b>	-7.02	-3.02	2.52	-0.79	-4.91	-1.70	2.07	-0.78
<b>JFM</b>	-9.63	-7.27	6.42	-2.29	-8.55	-5.71	5.75	-2.32
<b>AMJ</b>	-2.17	8.42	13.01	6.09	-1.72	5.61	10.61	4.44
<b>JAS</b>	-4.92	-0.97	1.97	0.39	-2.75	-0.54	0.97	0.02
<b>OND</b>	-7.28	-3.55	2.54	-1.06	-5.49	-1.96	2.09	-0.95

Fonte: Autor

As médias anuais de IRF sem a multiplicação por  $f_c$  mostradas nos Quadros 9 e 10 para 2014 e 2015 foram, respectivamente, iguais a  $-1.78 W/m^2$  e a  $-0.82 W/m^2$ . Os respectivos intervalos interquartis foram  $[-7.48; 0.89] W/m^2$  e  $[-4.12; -0.29] W/m^2$ , enquanto as distâncias interquartis (dadas pela diferença entre os percentis 75 e 25) foram de  $8.37 W/m^2$  e  $3.83 W/m^2$ , significativamente menores que as obtidas ( $20.28 W/m^2$  e  $20.83 W/m^2$ ) para a irradiância de referência oriunda somente dos métodos de clusterização.

## 5.5 - Discussões

Nesta seção são elencadas algumas considerações sobre os dois estados de referência utilizados, assim como os resultados de IRF obtidos segundo cada um deles. Uma primeira aproximação para a avaliação da sensibilidade das IRF com relação aos aerossóis também é apresentada, e uma comparação entre resultados anuais selecionados e alguns previamente publicados encerra a seção.

### 5.5.1 - Considerações acerca dos estados de referência adotados

As forçantes radiativas instantâneas devido ao primeiro efeito indireto de aerossóis obtidas neste trabalho foram discriminadas entre aquelas calculadas segundo as irradiâncias de referência de valor constante (segundo os métodos de clusterização apresentados no Capítulo 4) e de valor sazonal (construída a partir das medidas realizadas durante a IOP 2). Os resultados (médias anuais) para 2014 e 2015 relativos à primeira referência foram, respectivamente, iguais a  $-14.20$   $[-24.07; -3.79]$   $\text{W/m}^2$  e  $-9.37$   $[-21.92; -1.09]$   $\text{W/m}^2$ . No caso da referência sazonal, os resultados foram  $-1.78$   $[-7.48; 0.89]$   $\text{W/m}^2$  e  $-0.82$   $[-4.12; -0.29]$   $\text{W/m}^2$ . Esses resultados, além de mostrarem que 2014 apresentou uma maior variabilidade de IRF que 2015, também indicam um grau de incerteza menor ao se levar em conta as variações sazonais na estrutura microfísica das nuvens analisadas.

Para as duas referências adotadas foram obtidos valores de IRF positivos, os quais correspondem a casos em que a irradiância (no TOA) de referência foi maior que a do estado perturbado. Isso não significa que é possível a generalização de que as nuvens quentes baixas aquecem a superfície. Lembrando que os modelos de nuvens quentes foram construídos a partir de estatísticas (médias, medianas e percentis 12.5 e 87.5) oriundas das distribuições diárias de CBH, CTH, LWC e  $r_{\text{eff}}$ , a ocorrência de forçantes instantâneas positivas se dá pelo próprio método empregado, que buscou refletir a variabilidade natural das propriedades das nuvens que existe durante o período diurno (06:00 às 18:00). Além disso, é importante notar também que os dias selecionados para representar os dois estados de referência foram escolhidos a partir de análises da disponibilidade (também médias diurnas) de aerossóis, e não a partir das características das nuvens quentes. Dado isso, é desejável a existência de uma flutuação diária nas irradiâncias e nos valores de IRF

obtidos, a qual reflete a flutuação natural das propriedades de nuvens quentes baixas que existe de dia para dia.

Para ambas as referências houve uma diferença interanual nos resultados, sendo que IRF mais intensas foram observadas em 2014 do que em 2015. Uma vez que a primeira referência, obtida de maneira mais simples e direta que a segunda, considera um valor fixo de irradiância para todo o período da GoAmazon, maiores módulos de IRF são esperados, o que de fato aconteceu (principalmente para os períodos mais poluídos). A primeira referência utiliza menos suposições intermediárias que a segunda, além de não necessitar que dados não contaminados sejam colhidos também durante as épocas poluídas de 2014 e 2015. Essa primeira referência, porém, não leva em conta a variabilidade sazonal das condições naturais da atmosfera ao longo do período estudado, variabilidade esta que pode influenciar a microfísica das nuvens analisadas e, conseqüentemente, as IRF calculadas. Já a irradiância de referência variável, por sua vez, acompanha as variações sazonais das condições atmosféricas, fazendo com que exista uma menor chance de que os resultados obtidos neste segundo caso sejam influenciados por tal variabilidade natural. Isso faz com que, apesar de corresponder a uma primeira aproximação, os resultados calculados a partir do emprego do valor de irradiância sazonal do segundo estado de referência sejam mais adequados para a análise de forçantes radiativas instantâneas devido ao primeiro efeito indireto de aerossóis, de modo que essas  $IRF_{aci}$  possam ser confrontadas com algumas estimativas obtidas em estudos publicados.

### **5.5.2 - Sensibilidades com relação aos aerossóis**

A profundidade óptica do aerossol (AOD) é amplamente reconhecida como um indicador crítico na compreensão da física atmosférica e da qualidade do ar regional devido à sua capacidade de quantificar a carga de aerossol na atmosfera (WEI et al., 2020). Levando isso em consideração, uma maneira de avaliar a sensibilidade das forçantes diárias com relação à disponibilidade de aerossóis durante o período limpo de um ano (por exemplo, 2014) consiste em calcular a razão entre a média da  $IRF_{aci}$  diária da época limpa (disponíveis nos Quadros 9 e 10, por exemplo) e a variação percentual de AOD também da época limpa daquele ano.

Posteriormente então o mesmo procedimento pode ser adotado para o período poluído do mesmo ano, e as sensibilidades nas épocas limpa e poluída podem então ser comparadas. O Quadro 11 elenca as sensibilidades das épocas limpa e poluída de 2014 e 2015 calculadas a partir dos resultados referentes à irradiância de referência sazonal. Os resultados indicam que a sensibilidade das nuvens quentes baixas em relação à variação na carga de aerossóis pode ser maior em ambientes mais limpos do que naqueles já altamente poluídos.

Quadro 11 - Variações percentuais de AOD e sensibilidades de  $IRF_{aci}$  diárias de acordo com os períodos limpos e poluídos de 2014 e 2015. Os valores médios de AOD para os dias constituintes das referências limpa e poluída foram iguais a 0.07 e 0.20, respectivamente. O módulo da média de  $IRF_{aci}$  diária para o período poluído de 2014 equivale à média\* dos valores mostrados nas linhas "Poluído\_1" e "Poluído\_2" no Quadro 9.

Ano - Período	Média $IRF_{aci}$ diária	Média AOD	Variação percentual AOD (%)	Sensibilidade x100 ( $Wm^{-2}/\% \Delta AOD$ )
2014 - Limpo	3.79	0.09	31.26	12.12
2014 - Poluído	1.53*	0.28	37.54	4.08
2015 - Limpo	1.09	0.13	81.10	1.34
2015 - Poluído	0.79	0.59	191.04	0.41

Fonte: Autor

### 5.5.3 - Comparação com resultados selecionados

As diferenças existentes entre as  $IRF_{aci}$  calculadas de acordo com os dois estados de referência aqui considerados concorda com o apontamento de GRYSPEERDT et al. (2023) para a importância que os estados atmosféricos nas condições de atmosfera mais limpa exercem sobre as forçantes instantâneas resultantes. As variações percentuais ligeiramente maiores de fluxo integrado no TOA nos períodos limpos do que nos poluídos mostram a importância das condições mais limpas sobre o cálculo das  $IRF_{aci}$ . Os resultados do Quadro 11, por sua vez, indicam que a sensibilidade das nuvens quentes baixas em relação aos aerossóis

antropogênicos pode ser maior em ambientes mais limpos do que naqueles já influenciados por altos índices de poluição atmosférica.

As  $IRF_{aci}$  obtidas segundo as irradiâncias de referência sazonal foram iguais a  $-1.78 [-7.48; 0.89] \text{ W/m}^2$  ( $-1.63 [-4.87; 0.65] \text{ W/m}^2$  para o efeito extrínseco) e  $-0.82 [-4.12; -0.29] \text{ W/m}^2$  ( $-1.01 [-2.52; -0.23] \text{ W/m}^2$ , referente ao efeito extrínseco) para 2014 e 2015, respectivamente. Uma vez que a concentração de CCN e de AOD foram bastante elevadas durante a segunda metade de 2014 e 2015 e, levando em consideração todos os aspectos e parametrizações apontados anteriormente na seção 5.5.1, tais resultados possuem ordem de grandeza compatível com alguns trabalhos previamente publicados (e.g. WALL et al., 2023; WANG et al., 2023). Os valores de  $IRF_{aci}$  devido ao primeiro efeito indireto para a campanha GoAmazon (média calculada a partir das médias de  $IRF_{aci}$  de 2014 e 2015) relativos às duas referências utilizadas foram de  $-11.79 [-23.0; -2.44] \text{ W/m}^2$  e  $-1.30 [-5.8; 0.59] \text{ W/m}^2$ , respectivamente. Apesar das diferentes condições de estudo (plataforma experimental e, inclusive, irradiância de referência), os resultados obtidos de acordo com as duas referências aqui utilizadas pertencem ao intervalo indicado por HERBERT & STIER (2023), a saber, forçantes instantâneas totais (devido à influência de aerossóis de queimada) de até  $-50 \text{ W/m}^2$  para um AOD igual à unidade. Embora a comparação direta não seja adequada, a segunda referência aqui utilizada (que buscou acompanhar as variações sazonais das condições naturais da atmosfera) originou valores de  $IRF_{aci}$  (devido ao efeito *Twomey*) mais próximos à estimativa obtida ( $-0.7 \pm 0.5 \text{ W/m}^2$ , também referente ao efeito *Twomey*) pelo último relatório produzido pelo IPCC (FORSTER et al., 2021), mostrando a importância da definição do estado atmosférico de referência nos cálculos de  $IRF_{aci}$ , os quais são significativamente influenciados pela irradiância de referência escolhida.



## Capítulo 6 - Conclusões

A quantificação das forçantes radiativas instantâneas devido às interações entre aerossóis e nuvens ( $IRF_{aci}$ ) é realizada através da avaliação dos efeitos indiretos (em geral, os efeitos *Twomey* e *Lifetime effect*) que os aerossóis antropogênicos exercem sobre o equilíbrio radiativo terrestre. Estes efeitos correspondem à maior fonte de incerteza acerca da influência humana sobre o clima. Esta pesquisa buscou obter estimativas regionais de  $IRF_{aci}$  devido especificamente ao efeito *Twomey*, sendo que a influência de aerossóis antropogênicos em nuvens quentes baixas sobre a Amazônia brasileira teve um papel de destaque.

Primeiramente foram expostas algumas características gerais de aerossóis e nuvens, além de conceitos e definições acerca da radiação atmosférica, como a extinção de radiação por constituintes atmosféricos e a equação de transferência radiativa (ETR). Uma visão geral sobre a campanha GoAmazon 2014/5, com uma breve caracterização do sítio T3, foi também fornecida. Logo após foram apresentadas diversas características dos materiais e instrumentos responsáveis pela aquisição dos conjuntos de dados utilizados, os quais foram colhidos *in situ* (através dos instrumentos a bordo dos aviões G-1 e HALO) e também por sensoriamento remoto a partir do solo. A metodologia utilizada para a identificação e caracterização de cenários mais e menos influenciados por aerossóis antropogênicos (cenários “limpo” e “poluído”, respectivamente) ao longo da GoAmazon 2014/5 foi apresentada, assim como a abordagem para a obtenção dos parâmetros microfísicos de nuvens quentes requeridos pelo *LibRadtran* para resolver a ETR e simular valores de irradiância espectrais e integrados no TOA. Na sequência foram apresentadas as hipóteses e correções assumidas quando do cálculo de  $IRF_{aci}$ , forçantes que foram discriminadas segundo os anos de 2014 e 2015, segundo os períodos secos e chuvosos, segundo os trimestres de cada ano e também de acordo com os diferentes cenários de disponibilidade de aerossóis aqui definidos.

Relativamente aos resultados, foram expostas as distribuições de LWC e  $r_{eff}$ , assim como as irradiâncias (espectrais e integradas) simuladas resultantes e as distribuições de  $IRF_{aci}$  diárias obtidas a partir de duas referências de atmosfera “limpa” diferentes. Os *boxplots* de LWC para cada cenário de disponibilidade de

aerossóis em 2014 e 2015 mostraram que as medianas admitem valores bastante próximos entre si, praticamente não variando ( $0.27 \text{ g/m}^3$  a  $0.28 \text{ g/m}^3$ ) de acordo com os cenários. A média de LWC ( $0.26 \text{ g/m}^3$ ) calculada a partir das nuvens modeladas utilizadas na obtenção da irradiância de referência relativa à IOP 2 é bem próxima aos valores médios de LWC obtidos a partir de instrumentação em solo no T3, o que garante uma variação de LWC praticamente nula entre os dois casos. Este fato é importante pois, como exposto na definição do efeito *Twomey*, o LWC das nuvens analisadas deve ser constante entre os diferentes casos de disponibilidade de aerossóis considerados. Os histogramas de  $r_{\text{eff}}$ , por sua vez, exibiram distribuições bastante características para cada cenário, sendo que as médias de 2014 e 2015 admitem valores de  $14.3 \mu\text{m}$  e  $5.6 \mu\text{m}$  para os cenários limpo e poluído, respectivamente. A análise das irradiâncias espectrais mostrou que o intervalo de  $\lambda$  entre 400 e 500 nm compreende os maiores valores de irradiância sendo refletida de volta ao espaço, e que a principal diferença entre as irradiâncias dos cenários limpo e poluído (para os dois anos) ocorre principalmente para  $\lambda$  maiores ou iguais a 450 nm. As irradiâncias integradas evidenciaram que, comparativamente às épocas de atmosfera mais limpa, os períodos mais afetados por altas concentrações de aerossóis antropogênicos apresentam mais radiação sendo refletida de volta ao espaço.

As  $\text{IRF}_{\text{aci}}$  calculadas a partir de irradiâncias integradas obtidas ao meio-dia solar e de acordo com o valor de irradiância de referência fixo apontaram que, conforme os cenários poluídos se aproximam, as forçantes se tornam, em geral, mais negativas. A variação do  $\theta_0$  ao longo de cada dia foi considerada, e as  $\text{IRF}_{\text{aci}}$  diurnas e diárias, também considerando a referência obtida pelos métodos de clusterização, foram derivadas. Tais forçantes indicam que, ao levar em conta a variação de  $f_c$ , valores compreendidos em um intervalo mais restrito são alcançados. Os *boxplots* de  $\text{IRF}_{\text{aci}}$  diurnas e diárias separadas de acordo com os períodos chuvoso e seco de 2014 mostram que as distribuições são menos assimétricas durante os períodos chuvosos, enquanto para 2015 acontece o contrário. Somado a isso, as estatísticas representativas das  $\text{IRF}_{\text{aci}}$  diurnas e diárias possuem valores mais negativos conforme os dias limpos passam e os mais poluídos se aproximam. As médias calculadas com e sem a consideração de  $f_c$  são praticamente as mesmas conforme a atmosfera está mais limpa, o que não ocorre para o cenário poluído. Esta constatação aponta que, apesar de haver uma maior cobertura de nuvens nos



períodos limpos, a influência da cobertura de nuvens na quantidade de radiação refletida de volta ao espaço é mais importante durante o cenário mais poluído. As distribuições anuais de  $IRF_{aci}$  diurnas e diárias indicam que, em geral, as estatísticas referentes a 2014 são mais negativas que as de 2015. Os valores de  $IRF_{aci}$  diárias multiplicados pela  $f_c$  indicam que essas distribuições podem ser próximas à distribuição normal, com percentis inferior e superior dos *boxplots* correspondentes confinados a intervalos ainda mais restritos que aqueles relativos às distribuições que não consideram a  $f_c$ . Esse resultado indica que as  $IRF_{aci}$  extrínsecas (resultados multiplicados pela  $f_c$ ) correspondem a um conjunto de dados mais restrito, o qual contempla poucos valores extremos e faz com que as funções densidade de probabilidade estejam vinculadas a valores menores (em módulo) de curtose.

Com relação às  $IRF_{aci}$  calculadas de acordo com fluxo radiativo de referência sazonal, as estatísticas resultantes para 2014 e 2015 mostraram que, comparativamente aos valores obtidos segundo a primeira irradiância de referência, as  $IRF_{aci}$  diárias (para as componentes extrínseca e relativa ao efeito *Twomey*) apresentam módulos menores. Tais forçantes oscilam em torno do valor nulo, diferentemente do que foi obtido para as forçantes calculadas de acordo com o valor de irradiância de referência fixo. Apesar disso, os valores são, em média, praticamente constantes ao longo da GoAmazon 2014/5, sendo que a maior parte deles admite valores negativos. Contrariamente ao que os resultados provenientes da irradiância de referência fixa apontam, não há uma variação de  $IRF_{aci}$  diária vinculada aos diferentes cenários de disponibilidade de aerossóis, apresentando a hipótese de que as variações de  $IRF_{aci}$  entre as diferentes épocas do ano não podem ser diretamente correlacionadas às variações na carga de aerossóis. As distribuições de  $IRF_{aci}$  diárias mostram que, comparativamente aos resultados referentes ao efeito *Twomey*, os que consideram a  $f_c$  apresentam distribuições mais homogêneas. Essas distribuições também apontam para a interpretação de que forçantes mais negativas em períodos mais limpos podem ocorrer devido a uma maior variabilidade nos valores de  $r_{eff}$  das nuvens e também devido a uma maior fração de cobertura do céu (no caso dos efeitos extrínsecos) na época limpa.

Os resultados de sensibilidade de  $IRF_{aci}$  mostram que, em comparação aos períodos mais afetados pela poluição de origem antrópica, as forçantes vinculadas a nuvens quentes baixas formadas no começo dos anos de 2014 e 2015 são mais sensíveis a mudanças na quantidade de aerossóis disponíveis na atmosfera e que,

consequentemente, estas nuvens são responsáveis pelos valores de  $IRF_{aci}$  ligeiramente maiores observados. Esta é uma indicação de que a sensibilidade das nuvens quentes em relação aos aerossóis antropogênicos é maior em ambientes mais limpos do que naqueles já altamente influenciados (saturados) por altos índices de poluição de origem antrópica.

Os valores finais de  $IRF_{aci}$  devido ao primeiro efeito indireto para a campanha GoAmazon 2014/5 e relativos às duas referências de atmosfera limpa utilizadas foram de  $-11.79$   $[-23.0; -2.44]$   $W/m^2$  e  $-1.30$   $[-5.8; 0.59]$   $W/m^2$ , mostrando que o efeito radiativo final relativo às nuvens quentes colabora para o resfriamento da superfície. Apesar de a comparação direta não consistir em uma avaliação adequada dos resultados, o último destes é equivalente à estimativa obtida ( $-0.7 \pm 0.5$   $W/m^2$ ) pelo IPCC no seu último relatório de avaliação, AR6 (FORSTER et al., 2021).

Dada toda a complexidade da questão e, apesar da tentativa de acompanhar a variabilidade das condições atmosféricas naturais (dinâmica de ventos, variação nos perfis de umidade e temperatura, passagens de linhas de instabilidade, dentre outras), incertezas significativas podem existir especialmente nos resultados vinculados ao efeito extrínseco, uma vez que a fração de cobertura do céu utilizada contempla não só as nuvens quentes baixas, mas todos os tipos de nuvens que pairavam sobre o T3 na ocasião da GoAmazon 2014/5. Todavia, os resultados aqui alcançados advêm de uma tentativa de obter forçantes radiativas instantâneas inteiramente a partir de dados obtidos *in situ* e oriundos de sensoriamento remoto a partir da superfície amazônica, uma abordagem única no que diz respeito ao cálculo de forçantes radiativas instantâneas devido ao primeiro efeito indireto de aerossóis antropogênicos em nuvens quentes na Amazônia.

Conforme destacado na revisão da literatura apresentada no final do Capítulo 1, grande parcela dos estudos que buscaram quantificar  $RF_{aci}$  vinculadas a nuvens quentes se concentrou especificamente no estudo de nuvens estratiformes sobre o oceano, além de não apresentarem muitos achados acerca de  $IRF_{aci}$  devido ao efeito *Twomey* de aerossóis antropogênicos, especialmente no caso da região amazônica. Além disso, o único trabalho (HERBERT & STIER, 2023) que buscou realizar tal investigação se baseou em medidas obtidas a partir de sensoriamento remoto orbital, diferentemente do que foi aqui realizado. Tais observações mostram que a investigação de forçantes instantâneas devido ao efeito *Twomey* vinculado a nuvens quentes sobre a floresta amazônica ainda carece de investigação, e esta pesquisa

caminha neste sentido. Sendo assim, os achados aqui apresentados colaboram para um melhor entendimento do primeiro efeito indireto relacionado à influência que aerossóis antropogênicos podem exercer sobre nuvens quentes baixas na Amazônia, podendo também ser utilizados em outros trabalhos que buscam quantificar as  $IRF_{aci}$  da região, assim como as forçantes indiretas vinculadas a nuvens quentes em geral.



## Referências

ACKERMAN, A. S. et al. Reduction of Tropical Cloudiness by Soot. **Science**, v. 288, n. 5468, p. 1042–1047, 12 maio 2000.

ACKERMAN, A. S. et al. The impact of humidity above stratiform clouds on indirect aerosol climate forcing. **Nature**, v. 432, n. 7020, p. 1014–1017, dez. 2004.

ALBRECHT, B. A. Aerosols, Cloud Microphysics, and Fractional Cloudiness. **Science**, v. 245, n. 4923, p. 1227–1230, 15 set. 1989.

ALEXANDROV, M. D. et al. Automated cloud screening algorithm for MFRSR data. **Geophysical Research Letters**, v. 31, n. 4, 2004.

ANDREAE, M. O. et al. The Amazon Tall Tower Observatory (ATTO): overview of pilot measurements on ecosystem ecology, meteorology, trace gases, and aerosols. **Atmospheric Chemistry and Physics**, v. 15, n. 18, p. 10723–10776, 28 set. 2015.

ANSMANN, A. et al. Dust mass, cloud condensation nuclei, and ice-nucleating particle profiling with polarization lidar: updated POLIPHON conversion factors from global AERONET analysis. **Atmospheric Measurement Techniques**, v. 12, n. 9, p. 4849–4865, 10 set. 2019.

BESWICK, K. M. et al. Application of the Aventech AIMMS20AQ airborne probe for turbulence measurements during the Convective Storm Initiation Project. **Atmospheric Chemistry and Physics**, v. 8, n. 17, p. 5449–5463, 11 set. 2008.

BOND, T. C. et al. Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment. **Journal of Geophysical Research: Atmospheres**, v. 118, n. 11, p. 5380–5552, 2013.

BOUCHER, O. **Atmospheric Aerosols: Properties and Climate Impacts**. [s.l.] Springer Netherlands, 2015.

BURAS, R.; DOWLING, T.; EMDE, C. New secondary-scattering correction in DISORT with increased efficiency for forward scattering. **Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer**, v. 112, n. 12, p. 2028–2034, 1 ago. 2011.

CARNEIRO, R. G.; FISCH, G. Observational analysis of the daily cycle of the planetary boundary layer in the central Amazon during a non-El Niño year and El Niño year (GoAmazon project 2014/5). **Atmospheric Chemistry and Physics**, v. 20, n. 9, p. 5547–5558, 12 maio 2020.

CECCHINI, M. A. et al. Sensitivities of Amazonian clouds to aerosols and updraft speed. **Atmospheric Chemistry and Physics**, v. 17, n. 16, p. 10037–10050, 28 ago. 2017.

CHANDRASEKHAR, S. **Radiative Transfer**. New York: Dover Publications, 1960.

CHARLSON, R. J.; HEINTZENBERG, J. (EDS.). **Aerosol Forcing of Climate**. 1st edition ed. Chichester; New York: Wiley, 1995.

CHEN, Y.-C. et al. Satellite-based estimate of global aerosol–cloud radiative forcing by marine warm clouds. **Nature Geoscience**, v. 7, n. 9, p. 643–646, set. 2014.

CHRISTENSEN, M. W. et al. Unveiling aerosol–cloud interactions – Part 1: Cloud contamination in satellite products enhances the aerosol indirect forcing estimate. **Atmospheric Chemistry and Physics**, v. 17, n. 21, p. 13151–13164, 7 nov. 2017.

CHRISTENSEN, M. W.; CHEN, Y.-C.; STEPHENS, G. L. Aerosol indirect effect dictated by liquid clouds. **Journal of Geophysical Research: Atmospheres**, v. 121, n. 24, p. 14,636–14,650, 27 dez. 2016.

CORREIA, A. L. et al. **Forçantes radiativas naturais e antrópicas (Cap. 7). Painel Brasileiro de Mudanças Climáticas**. Rio de Janeiro: Universidade Federal do Rio de Janeiro, 2014. v. 1

CORREIA, A. L. et al. Preconditioning, aerosols, and radiation control the temperature of glaciation in Amazonian clouds. **Communications Earth & Environment**, v. 2, n. 1, p. 1–7, 19 ago. 2021.

DA ROCHA, H. R. et al. Patterns of water and heat flux across a biome gradient from tropical forest to savanna in Brazil. **Journal of Geophysical Research: Biogeosciences**, v. 114, n. G1, 2009.

DAGAN, G.; KOREN, I.; ALTARATZ, O. Competition between core and periphery-based processes in warm convective clouds – from invigoration to suppression. **Atmospheric Chemistry and Physics**, v. 15, n. 5, p. 2749–2760, 10 mar. 2015.

DELENE, D. J.; OGREN, J. A. Variability of Aerosol Optical Properties at Four North American Surface Monitoring Sites. **Journal of the Atmospheric Sciences**, v. 59, n. 6, p. 1135–1150, 1 mar. 2002.

DIAMOND, M. S. et al. Substantial Cloud Brightening From Shipping in Subtropical Low Clouds. **AGU Advances**, v. 1, n. 1, p. e2019AV000111, 2020.

DONG, X.; MACE, G. G. Arctic Stratus Cloud Properties and Radiative Forcing Derived from Ground-Based Data Collected at Barrow, Alaska. **Journal of Climate**, v. 16, n. 3, p. 445–461, 1 fev. 2003.

DÜRR, B.; PHILIPONA, R. Automatic cloud amount detection by surface longwave downward radiation measurements. **Journal of Geophysical Research: Atmospheres**, v. 109, n. D5, 2004.

EISBERG, R. R.; RESNICK. **Física Quântica - Átomos, Moléculas, Sólidos, Núcleos e Partículas**. 1ª edição ed. [s.l.] GEN LTC, 1979.

EMDE, C. et al. The libRadtran software package for radiative transfer calculations (version 2.0.1). **Geoscientific Model Development**, v. 9, n. 5, p. 1647–1672, 3 maio 2016.

FAN, J. et al. Review of Aerosol–Cloud Interactions: Mechanisms, Significance, and Challenges. **Journal of the Atmospheric Sciences**, v. 73, n. 11, p. 4221–4252, 11 jul. 2016.

FORSTER, P. et al. **The Earth's Energy Budget, Climate Feedbacks and Climate Sensitivity**. [s.l.] Cambridge University Press, 2021. Disponível em: <<https://www.cambridge.org/core/books/climate-change-2021-the-physical-science-basis/earths-energy-budget-climate-feedbacks-and-climate-sensitivity/AE57C97E588FF3060C7C7E47DD4F3C6E>>. Acesso em: 3 jul. 2023.

GASTEIGER, J. et al. Representative wavelengths absorption parameterization applied to satellite channels and spectral bands. **Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer**, v. 148, p. 99–115, 1 nov. 2014.

GENTNER, D. R. et al. Review of Urban Secondary Organic Aerosol Formation from Gasoline and Diesel Motor Vehicle Emissions. **Environmental Science & Technology**, v. 51, n. 3, p. 1074–1093, 7 fev. 2017.

GIANGRANDE, S. E. et al. Cloud characteristics, thermodynamic controls and radiative impacts during the Observations and Modeling of the Green Ocean Amazon (GoAmazon2014/5) experiment. **Atmospheric Chemistry and Physics**, v. 17, n. 23, p. 14519–14541, 6 dez. 2017.

GILES, D. M. et al. Advancements in the Aerosol Robotic Network (AERONET) Version 3 database – automated near-real-time quality control algorithm with improved cloud screening for Sun photometer aerosol optical depth (AOD) measurements. **Atmospheric Measurement Techniques**, v. 12, n. 1, p. 169–209, 11 jan. 2019.

GRYSPEERDT, E. et al. Uncertainty in aerosol–cloud radiative forcing is driven by clean conditions. **Atmospheric Chemistry and Physics**, v. 23, n. 7, p. 4115–4122, 5 abr. 2023.

HAMERLY, G.; ELKAN, C. **Learning the k in k-means**. Advances in Neural Information Processing Systems. Anais...MIT Press, 2003. Disponível em: <<https://proceedings.neurips.cc/paper/2003/hash/234833147b97bb6aed53a8f4f1c7a7d8-Abstract.html>>. Acesso em: 26 maio. 2023

HANSEN, J. et al. Efficacy of climate forcings. **Journal of Geophysical Research: Atmospheres**, v. 110, n. D18, 2005.

HARRISON, L.; MICHALSKY, J. Objective algorithms for the retrieval of optical depths from ground-based measurements. **Applied Optics**, v. 33, n. 22, p. 5126–5132, 1 ago. 1994.

HASEKAMP, O. P.; GRYSPEERDT, E.; QUAAS, J. Analysis of polarimetric satellite measurements suggests stronger cooling due to aerosol-cloud interactions. **Nature Communications**, v. 10, n. 1, p. 5405, 27 nov. 2019.

HAYWOOD, J.; BOUCHER, O. Estimates of the direct and indirect radiative forcing due to tropospheric aerosols: A review. **Reviews of Geophysics**, v. 38, n. 4, p. 513–543, 2000.

HERBERT, R.; STIER, P. Satellite observations of smoke–cloud–radiation interactions over the Amazon rainforest. **Atmospheric Chemistry and Physics**, v. 23, n. 7, p. 4595–4616, 17 abr. 2023.

HESS, M.; KOEPKE, P.; SCHULT, I. Optical Properties of Aerosols and Clouds: The Software Package OPAC. **Bulletin of the American Meteorological Society**, v. 79, n. 5, p. 831–844, 1 maio 1998.

HEYN, I. et al. Assessment of simulated aerosol effective radiative forcings in the terrestrial spectrum. **Geophysical Research Letters**, v. 44, n. 2, p. 1001–1007, 2017.

IPCC. **Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change** [Stocker, T.F., D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S.K. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex and P.M. Midgley (eds.)]. Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA: Cambridge University Press, 2013.

IPCC. **Climate Change 2021: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change** [Masson-Delmotte, V., P. Zhai, A. Pirani, S. L. Connors, C. Péan, S. Berger, N. Caud, Y. Chen, L. Goldfarb, M. I. Gomis, M. Huang, K. Leitzell, E. Lonnoy, J. B. R. Matthews, T. K. Maycock, T. Waterfield, O. Yelekçi, R. Yu and B. Zhou (eds.)]. Cambridge University Press. In Press. [s.l.] Cambridge University Press, 2021.

JIA, H. et al. Significant underestimation of radiative forcing by aerosol–cloud interactions derived from satellite-based methods. **Nature Communications**, v. 12, n. 1, p. 3649, 15 jun. 2021.

JIANG, H. et al. Aerosol effects on the lifetime of shallow cumulus. **Geophysical Research Letters**, v. 33, n. 14, 2006.

JOHNSON, B. T.; SHINE, K. P.; FORSTER, P. M. The semi-direct aerosol effect: Impact of absorbing aerosols on marine stratocumulus. **Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society**, v. 130, n. 599, p. 1407–1422, 2004.

KAUFMAN, Y. J.; NAKAJIMA, T. Effect of Amazon Smoke on Cloud Microphysics and Albedo-Analysis from Satellite Imagery. **Journal of Applied Meteorology and Climatology**, v. 32, n. 4, p. 729–744, 1 abr. 1993.

KEIL, A.; HAYWOOD, J. M. Solar radiative forcing by biomass burning aerosol particles during SAFARI 2000: A case study based on measured aerosol and cloud properties. **Journal of Geophysical Research: Atmospheres**, v. 108, n. D13, 2003.

KELLER, M. et al. (EDS.). **Amazonia and Global Change: 186**. Washington, DC: American Geophysical Union, 2009.

KIM, D.; RAMANATHAN, V. Solar radiation budget and radiative forcing due to aerosols and clouds. **Journal of Geophysical Research: Atmospheres**, v. 113, n. D2, 2008.

KING, W. D.; PARKIN, D. A.; HANDSWORTH, R. J. A Hot-Wire Liquid Water Device Having Fully Calculable Response Characteristics. **Journal of Applied Meteorology and Climatology**, v. 17, n. 12, p. 1809–1813, 1 dez. 1978.



KODINARIYA, T.; MAKWANA, P. Review on Determining of Cluster in K-means Clustering. **International Journal of Advance Research in Computer Science and Management Studies**, v. 1, p. 90–95, 1 jan. 2013.

KOLLIAS, P. et al. The Atmospheric Radiation Measurement Program Cloud Profiling Radars: Second-Generation Sampling Strategies, Processing, and Cloud Data Products. **Journal of Atmospheric and Oceanic Technology**, v. 24, n. 7, p. 1199–1214, 1 jul. 2007.

KOPP, G.; LEAN, J. L. A new, lower value of total solar irradiance: Evidence and climate significance. **Geophysical Research Letters**, v. 38, n. 1, 2011.

LEBSOCK, M. D.; STEPHENS, G. L.; KUMMEROW, C. Multisensor satellite observations of aerosol effects on warm clouds. **Journal of Geophysical Research: Atmospheres**, v. 113, n. D15, 2008.

LIU, K. N. **An Introduction to Atmospheric Radiation**. 2<sup>o</sup> edição ed. [s.l.] Academic Press, 2002.

LIU, Y.; HALLETT, J. The '1/3' power law between effective radius and liquid-water content. **Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society**, v. 123, n. 542, p. 1789–1795, 1997.

LLOYD, S. Least squares quantization in PCM. **IEEE Transactions on Information Theory**, v. 28, n. 2, p. 129–137, mar. 1982.

LOHMANN, U.; FEICHTER, J. Global indirect aerosol effects: a review. **Atmospheric Chemistry and Physics**, v. 5, n. 3, p. 715–737, 3 mar. 2005.

LOHMANN, U.; LÜÖND, F.; MAHRT, F. **An Introduction to Clouds: From the Microscale to Climate**. Cambridge: Cambridge University Press, 2016.

LONG, C. N. et al. Estimation of fractional sky cover from broadband shortwave radiometer measurements. **Journal of Geophysical Research: Atmospheres**, v. 111, n. D11, 2006.

LU, M.-L.; SEINFELD, J. H. Study of the Aerosol Indirect Effect by Large-Eddy Simulation of Marine Stratocumulus. **Journal of the Atmospheric Sciences**, v. 62, n. 11, p. 3909–3932, 1 nov. 2005.

MACE, G. G.; BENSON, S.; KATO, S. Cloud radiative forcing at the Atmospheric Radiation Measurement Program Climate Research Facility: 2. Vertical redistribution of radiant energy by clouds. **Journal of Geophysical Research: Atmospheres**, v. 111, n. D11, 2006.

MAO, K. et al. Changes in Global Cloud Cover Based on Remote Sensing Data from 2003 to 2012. **Chinese Geographical Science**, v. 29, n. 2, p. 306–315, 1 abr. 2019.

MARSING, A. et al. Investigating the radiative effect of Arctic cirrus measured in situ during the winter 2015–2016. **Atmospheric Chemistry and Physics**, v. 23, n. 1, p. 587–609, 16 jan. 2023.

MARTIN, S. T. et al. An overview of the Amazonian Aerosol Characterization Experiment 2008 (AMAZE-08). **Atmospheric Chemistry and Physics**, v. 10, n. 23, p. 11415–11438, 2 dez. 2010.

MARTIN, S. T. et al. Introduction: Observations and Modeling of the Green Ocean Amazon (GoAmazon2014/5). **Atmospheric Chemistry and Physics**, v. 16, n. 8, p. 4785–4797, 19 abr. 2016.

MARTINS, J. V. et al. Remote sensing the vertical profile of cloud droplet effective radius, thermodynamic phase, and temperature. **Atmospheric Chemistry and Physics**, v. 11, n. 18, p. 9485–9501, 16 set. 2011.

MCCOY, I. L. et al. The hemispheric contrast in cloud microphysical properties constrains aerosol forcing. **Proceedings of the National Academy of Sciences**, v. 117, n. 32, p. 18998–19006, 11 ago. 2020.

MICHALSKY, J. J. et al. Multiyear measurements of aerosol optical depth in the Atmospheric Radiation Measurement and Quantitative Links programs. **Journal of Geophysical Research: Atmospheres**, v. 106, n. D11, p. 12099–12107, 2001.

MIHALAS, D. **Stellar Atmospheres**. 2ª edição ed. San Francisco: W H Freeman & Co, 1978.

MISHCHENKO, M. I. Vector radiative transfer equation for arbitrarily shaped and arbitrarily oriented particles: a microphysical derivation from statistical electromagnetics. **Applied Optics**, v. 41, n. 33, p. 7114–7134, 20 nov. 2002.

MORRISON, H.; CURRY, J. A.; KHVOROSTYANOV, V. I. A New Double-Moment Microphysics Parameterization for Application in Cloud and Climate Models. Part I: Description. **Journal of the Atmospheric Sciences**, v. 62, n. 6, p. 1665–1677, 1 jun. 2005.

NEEL, C. B. A heated-wire liquid-water-content instrument and results of initial flight tests in icing conditions. **NASA Res. Memo. RM A54123**, p. 33, 1955.

PEARSON, K. LIII. On lines and planes of closest fit to systems of points in space. **The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science**, v. 2, n. 11, p. 559–572, 1 nov. 1901.

PÖSCHL, U. et al. Rainforest Aerosols as Biogenic Nuclei of Clouds and Precipitation in the Amazon. **Science**, v. 329, n. 5998, p. 1513–1516, 17 set. 2010.

QUAAS, J. et al. Aerosol indirect effects – general circulation model intercomparison and evaluation with satellite data. **Atmospheric Chemistry and Physics**, v. 9, n. 22, p. 8697–8717, 16 nov. 2009.

REID, J. S. et al. Relationships between cloud droplet effective radius, liquid water content, and droplet concentration for warm clouds in Brazil embedded in biomass smoke. **Journal of Geophysical Research: Atmospheres**, v. 104, n. D6, p. 6145–6153, 1999.

RIIHIMAKI, L. D. et al. **Radiative Flux Analysis (RADFLUXANAL) Value-Added Product: Retrieval of Clear-Sky Broadband Radiative Fluxes and Other Derived Values**. [s.l.: s.n.]. Disponível em: <<http://www.osti.gov/servlets/purl/1569477/>>. Acesso em: 18 nov. 2021.

ROGERS, R. R.; YAU, M. K. **A Short Course in Cloud Physics**. 3rd edition ed. Woburn, Mass.: Butterworth-Heinemann (Elsevier), 1989.

ROSENFELD, D. TRMM observed first direct evidence of smoke from forest fires inhibiting rainfall. **Geophysical Research Letters**, v. 26, n. 20, p. 3105–3108, 1999.

ROSENFELD, D. et al. Global observations of aerosol-cloud-precipitation-climate interactions. **Reviews of Geophysics**, v. 52, n. 4, p. 750–808, 1 dez. 2014.

ROSENFELD, D.; WOODLEY, W. L. Closing the 50-year circle: From cloud seeding to space and back to climate change through precipitation physics. Em: **Cloud Systems, Hurricanes, and the Tropical Rainfall Measuring Mission (TRMM)**. [s.l.] Meteorological Monographs, American Meteorological Society, 2003. p. 59–80.

SCHMID, B. et al. The DOE ARM Aerial Facility. **Bulletin of the American Meteorological Society**, v. 95, n. 5, p. 723–742, 1 maio 2014.

SEINFELD, J. H.; PANDIS, S. N. **Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change**. 2nd ed. edição ed. Hoboken, N.J: Wiley, 2006.

SEINFELD, J. H.; PANDIS, S. N. **Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change**. 3rd ed. edição ed. Hoboken, New Jersey: Wiley, 2016.

SENA, E. T. **Variabilidade espacial e temporal da forçante radiativa direta de aerossóis de queimadas e os efeitos da mudança de uso do solo na Amazônia**. text—[s.l.] Universidade de São Paulo, 12 ago. 2013.

SHERIDAN, P. J.; DELENE, D. J.; OGREN, J. A. Four years of continuous surface aerosol measurements from the Department of Energy's Atmospheric Radiation Measurement Program Southern Great Plains Cloud and Radiation Testbed site. **Journal of Geophysical Research: Atmospheres**, v. 106, n. D18, p. 20735–20747, 2001.

SMALL, J. D. et al. Can aerosol decrease cloud lifetime? **Geophysical Research Letters**, v. 36, n. 16, 2009.

STAMMES, K. et al. **DISORT, a General-Purpose Fortran Program for Discrete-Ordinate-Method Radiative Transfer in Scattering and Emitting Layered Media: Documentation of Methodology**. Hoboken, NJ: Dept. of Physics and Engineering Physics, Stevens Institute of Technology, 2000. Disponível em: <<http://www.libradtran.org/lib/exe/fetch.php?media=disortreport1.1.pdf>>.

STAMNES, K. The theory of multiple scattering of radiation in plane parallel atmospheres. **Reviews of Geophysics**, v. 24, n. 2, p. 299–310, 1986.

STAMNES, K. et al. Numerically stable algorithm for discrete-ordinate-method radiative transfer in multiple scattering and emitting layered media. **Applied optics**, v. 27, p. 2502–9, 15 jun. 1988.

STEPHENS, G. L. Radiation Profiles in Extended Water Clouds. II: Parameterization Schemes. **Journal of the Atmospheric Sciences**, v. 35, n. 11, p. 2123–2132, 1 nov. 1978.

STEVENS, B. et al. Large-Eddy Simulations of Strongly Precipitating, Shallow, Stratocumulus-Topped Boundary Layers. **Journal of the Atmospheric Sciences**, v. 55, n. 24, p. 3616–3638, 1 dez. 1998.

STEVENS, B.; FEINGOLD, G. Untangling aerosol effects on clouds and precipitation in a buffered system. **Nature**, v. 461, n. 7264, p. 607–613, out. 2009.

STRAPP, J. W. et al. Wind Tunnel Measurements of the Response of Hot-Wire Liquid Water Content Instruments to Large Droplets. **Journal of Atmospheric and Oceanic Technology**, v. 20, n. 6, p. 791–806, 1 jun. 2003.

THALMAN, R. et al. CCN activity and organic hygroscopicity of aerosols downwind of an urban region in central Amazonia: seasonal and diel variations and impact of anthropogenic emissions. **Atmospheric Chemistry and Physics**, v. 17, n. 19, p. 11779–11801, 5 out. 2017.

TOLL, V. et al. Weak average liquid-cloud-water response to anthropogenic aerosols. **Nature**, v. 572, n. 7767, p. 51–55, ago. 2019.

TURNER, D. D. et al. Retrieving Liquid Water Path and Precipitable Water Vapor From the Atmospheric Radiation Measurement (ARM) Microwave Radiometers. **IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing**, v. 45, n. 11, p. 3680–3690, nov. 2007.

TWOMEY, S. The nuclei of natural cloud formation part II: The supersaturation in natural clouds and the variation of cloud droplet concentration. **Geofisica pura e applicata**, v. 43, n. 1, p. 243–249, 1 maio 1959.

TWOMEY, S. Pollution and the planetary albedo. **Atmospheric Environment (1967)**, v. 8, n. 12, p. 1251–1256, 1 dez. 1974.

TWOMEY, S. The Influence of Pollution on the Shortwave Albedo of Clouds. **Journal of the Atmospheric Sciences**, v. 34, n. 7, p. 1149–1152, 1 jul. 1977.

UIN, J. et al. Atmospheric Radiation Measurement (ARM) Aerosol Observing Systems (AOS) for Surface-Based In Situ Atmospheric Aerosol and Trace Gas Measurements. **Journal of Atmospheric and Oceanic Technology**, v. 36, n. 12, p. 2429–2447, 1 dez. 2019.

WALL, C. J.; STORELVMO, T.; POSSNER, A. Global Observations of Aerosol Indirect Effects from Marine Liquid Clouds. **EGUsphere**, p. 1–28, 29 jun. 2023.

WALLACE, J. M.; HOBBS, P. V. **Atmospheric Science: An Introductory Survey**. 2<sup>o</sup> edição ed. [s.l.] Academic Press, 2006.

WANG, H. et al. Aerosol Effective Radiative Forcing in the Online Aerosol Coupled CAS-FGOALS-f3-L Climate Model. **Atmosphere**, v. 11, n. 10, p. 1115, out. 2020.

WANG, M. et al. Radiative contributions of different cloud types to regional energy budget over the SACOL site. **Climate Dynamics**, v. 61, n. 3, p. 1697–1715, 1 ago. 2023.

WEI, X. et al. Satellite remote sensing of aerosol optical depth: advances, challenges, and perspectives. **Critical Reviews in Environmental Science and Technology**, v. 50, n. 16, p. 1640–1725, 17 ago. 2020.

WENDISCH, M. et al. 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**, v. 97, n. 10, p. 1885–1908, 1 out. 2016.

WETZEL, M. A.; STOWE, L. L. Satellite-observed patterns in stratus microphysics, aerosol optical thickness, and shortwave radiative forcing. **Journal of Geophysical Research: Atmospheres**, v. 104, n. D24, p. 31287–31299, 1999.

WMO. **Classifying clouds**. Disponível em: <<https://public.wmo.int/en/WorldMetDay2017/classifying-clouds>>. Acesso em: 10 maio. 2023.

WMO. **Definitions of clouds**. Disponível em: <<https://cloudatlas.wmo.int/clouds-definitions.html>>. Acesso em: 10 maio. 2023.

WRIEDT, T. Mie Theory: A Review. Em: HERGERT, W.; WRIEDT, T. (Eds.). **The Mie Theory: Basics and Applications**. Springer Series in Optical Sciences. Berlin, Heidelberg: Springer, 2012. p. 53–71.

WYSER, K. The Effective Radius in Ice Clouds. **Journal of Climate**, v. 11, n. 7, p. 1793–1802, 1 jul. 1998.

YAMASOE, M. A.; CORRÊA, M. DE P. **Processos Radiativos na Atmosfera: Fundamentos**. 1ª edição ed. [s.l.] Editora Oficina de Textos, 2016.

## Apêndice A

Neste Apêndice são apresentados os histogramas de frequência relativa das variáveis de aerossol utilizadas para definir cada um dos *clusters* para os anos de 2014 e 2015. Em todos os gráficos a linha vertical vermelha aponta o valor da mediana, enquanto a legenda indica a quantidade de pontos e os valores mínimo, máximo, da mediana e da média, respectivamente.

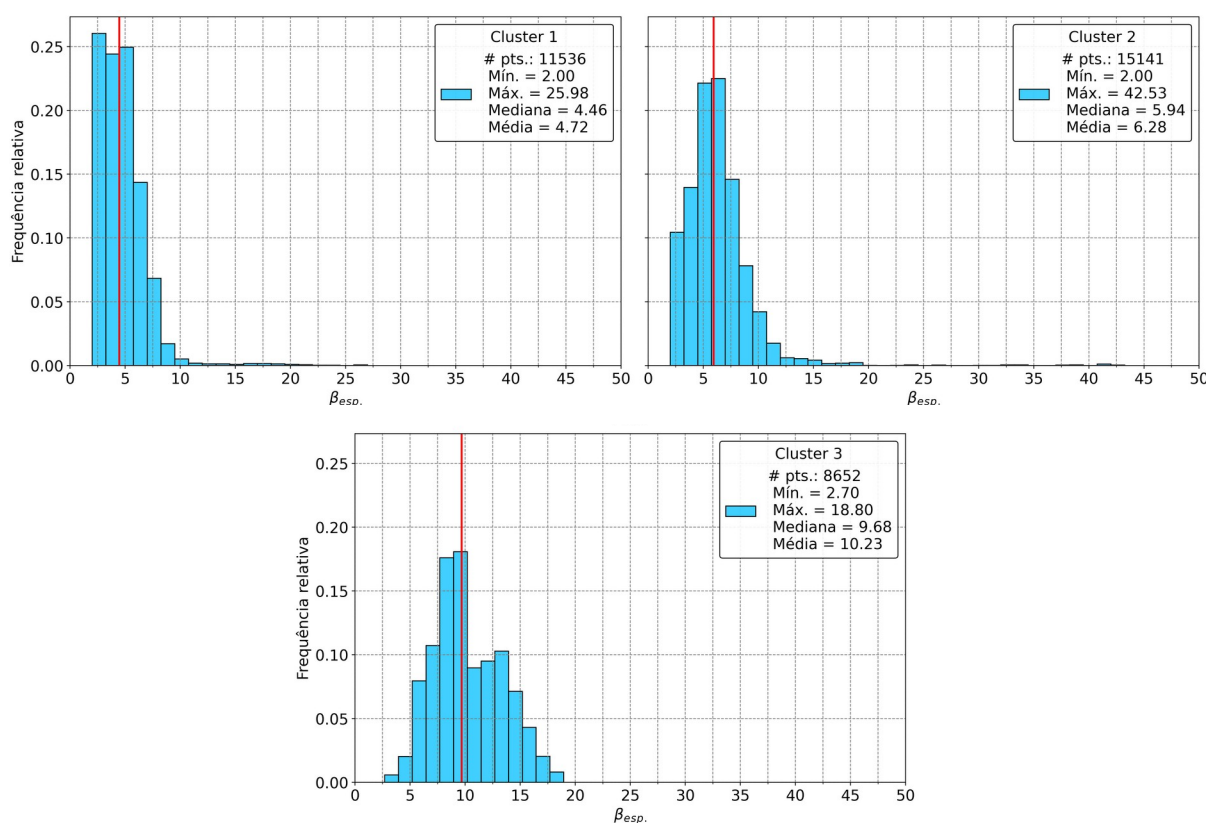


Figura A1 – Histogramas de frequência relativa do coeficiente de espalhamento ( $\beta_{esp.}$ ) para os 3 *clusters* obtidos para o ano de 2014.

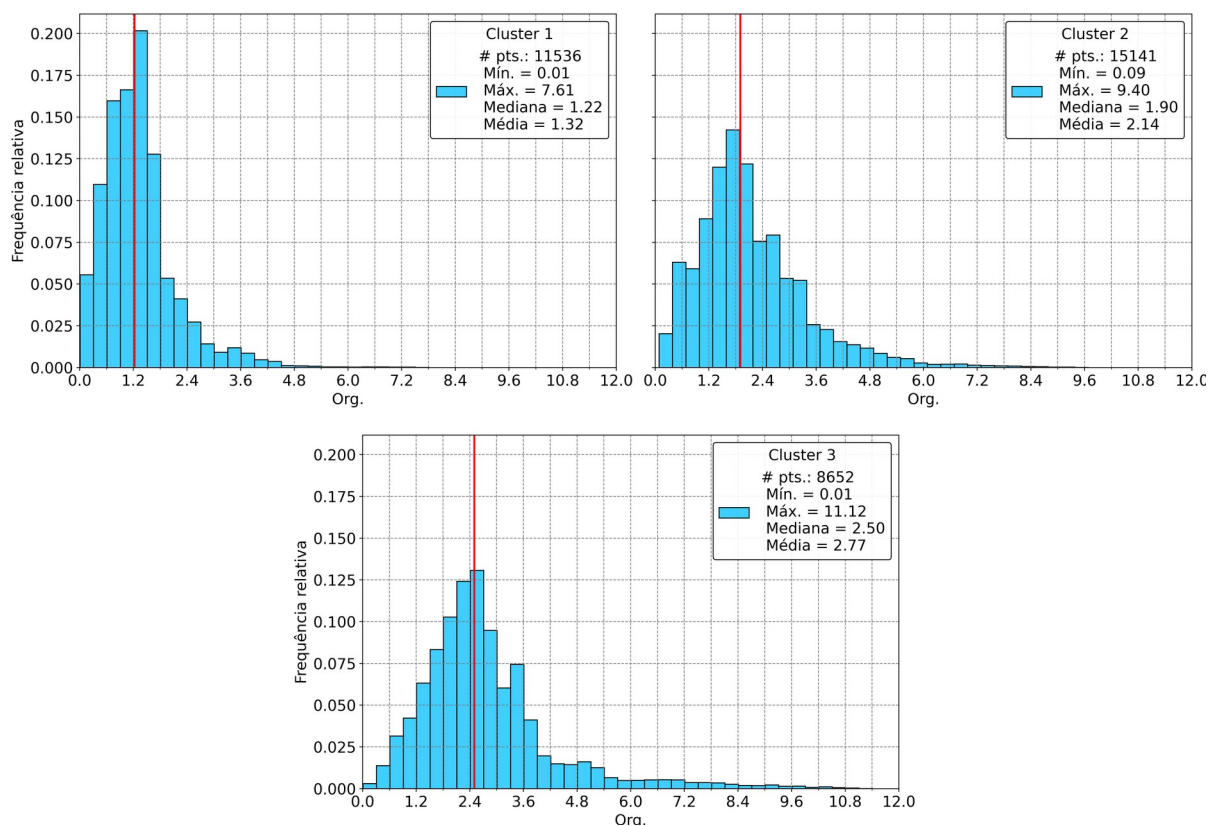


Figura A2 – Histogramas de frequência relativa da concentração total de orgânicos (Org.) para os 3 *clusters* obtidos para o ano de 2014.

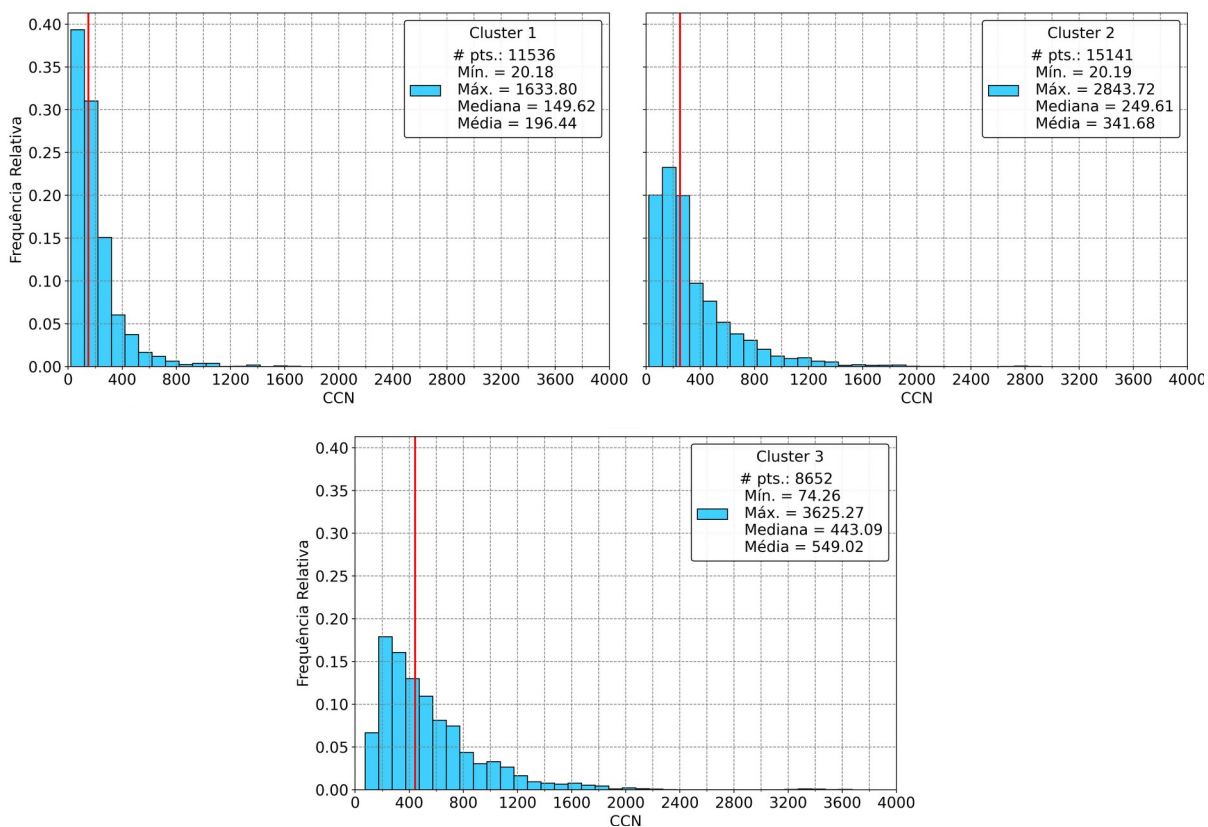


Figura A3 – Histogramas da concentração de núcleos de condensação de nuvens (CCN) para os 3 *clusters* obtidos para 2014.

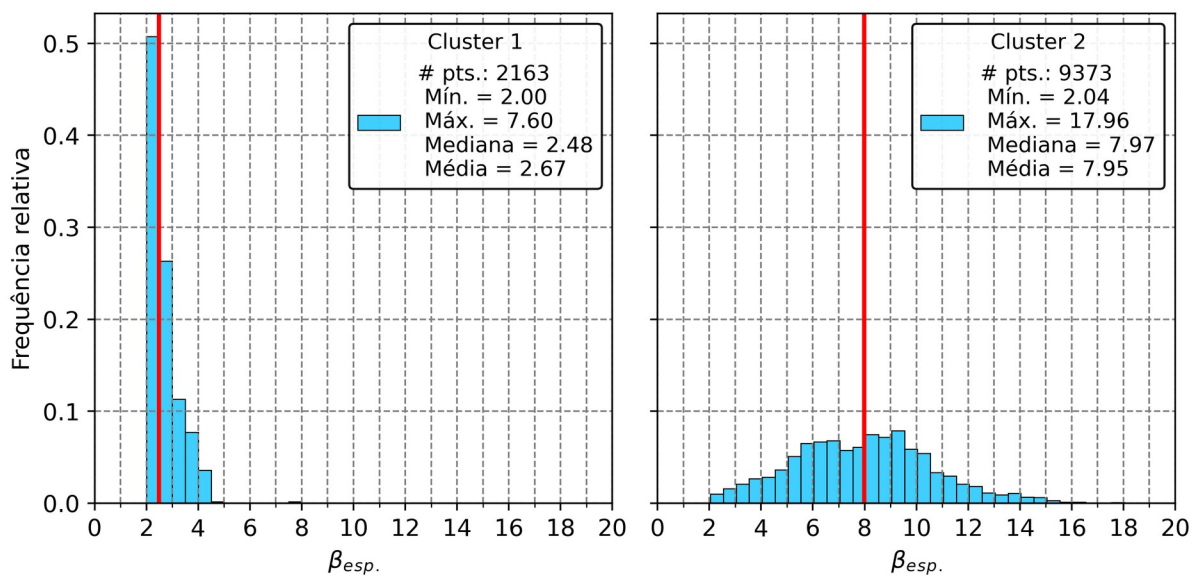


Figura A4 - Histogramas de frequência relativa do coeficiente de espalhamento ( $\beta_{esp.}$ ) para os 2 *clusters* obtidos para o ano de 2015.



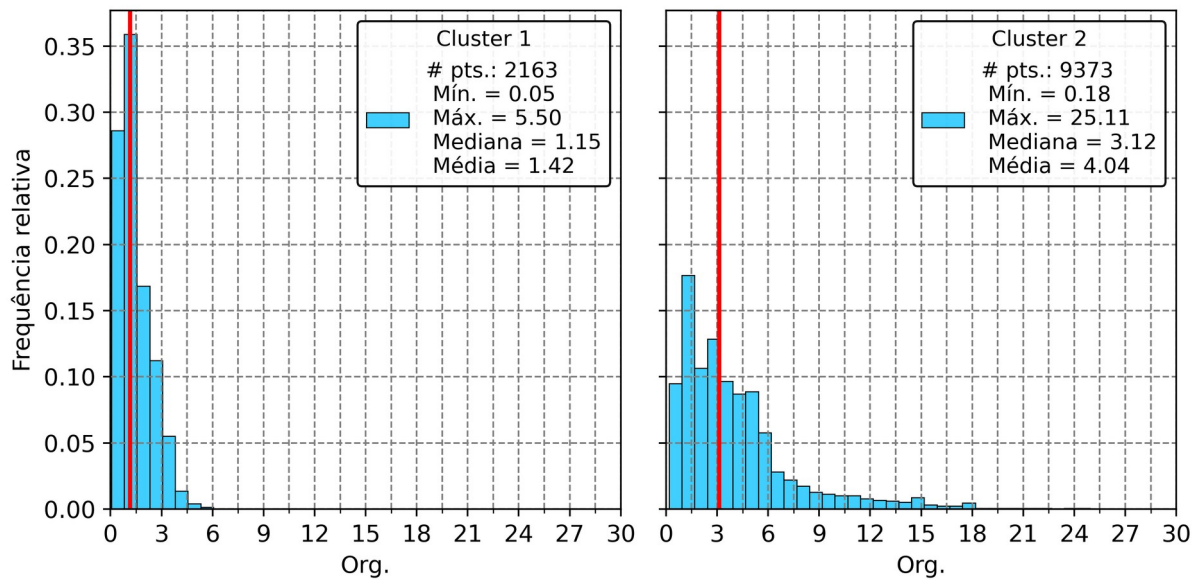


Figura A5 - Histogramas de frequência relativa da concentração total de orgânicos (Org.) para os 2 *clusters* obtidos para o ano de 2015.

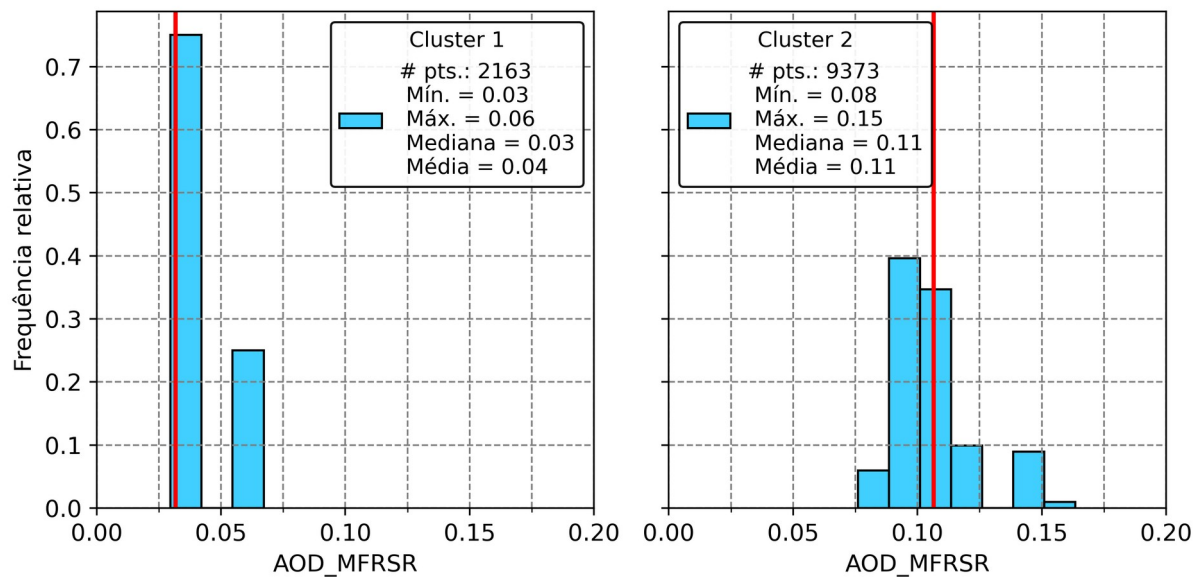


Figura A6 - Histogramas de frequência relativa da profundidade óptica de aerossóis (AOD) para os 2 *clusters* obtidos para o ano de 2015.

## Apêndice B

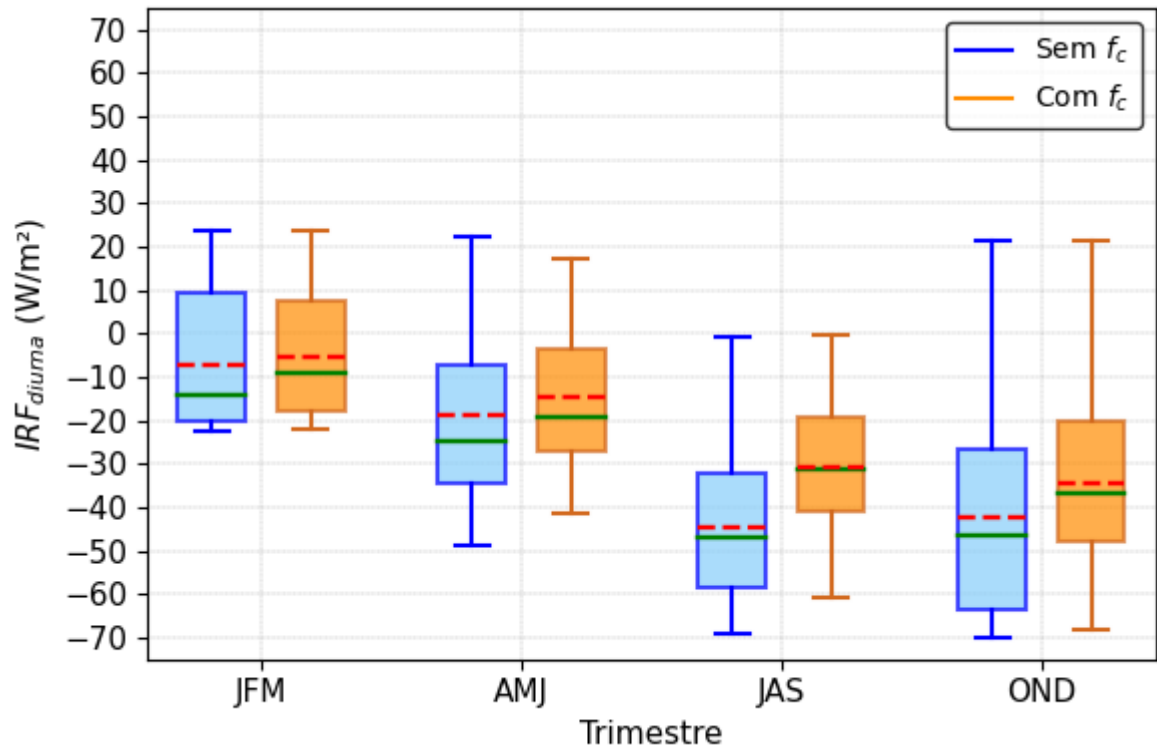


Figura B1 – *Boxplots* para as IRF diurnas com e sem a média de  $f_c$  para os trimestres de 2014. As linhas pontilhadas vermelhas indicam o valor da média, e as linhas verdes mostram os valores das medianas.

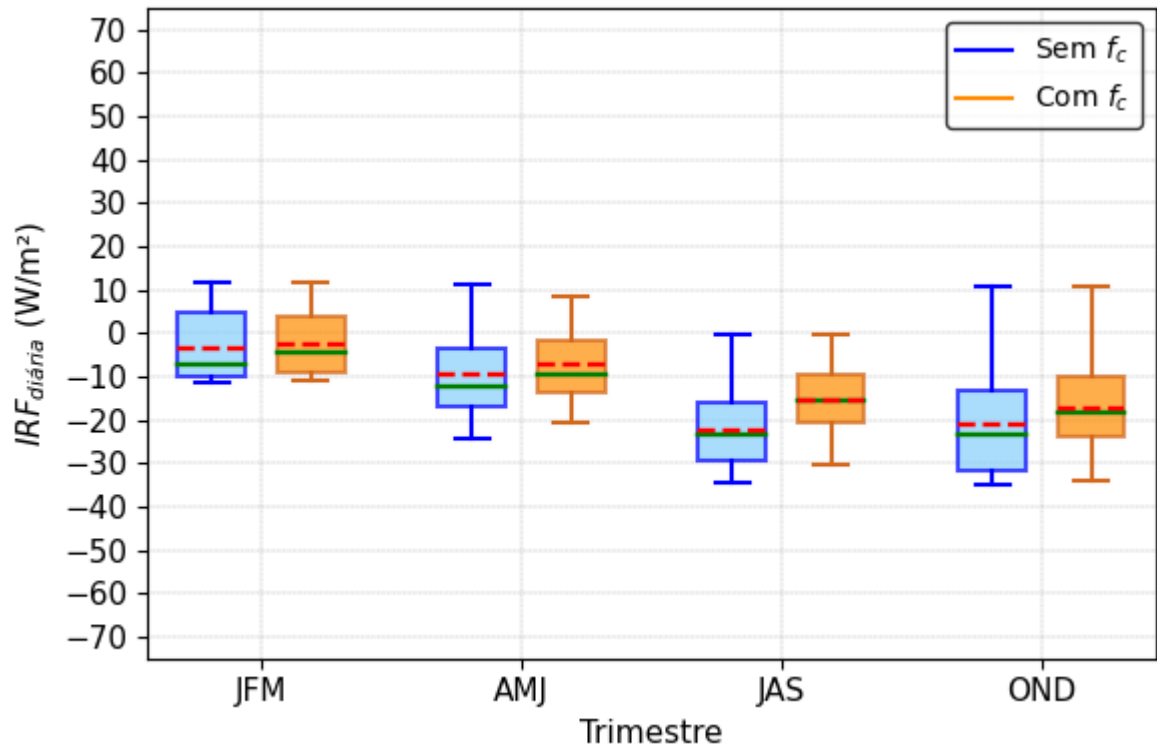


Figura B2 – *Boxplots* para as IRF diárias com e sem a média de  $f_c$  para os trimestres de 2014.

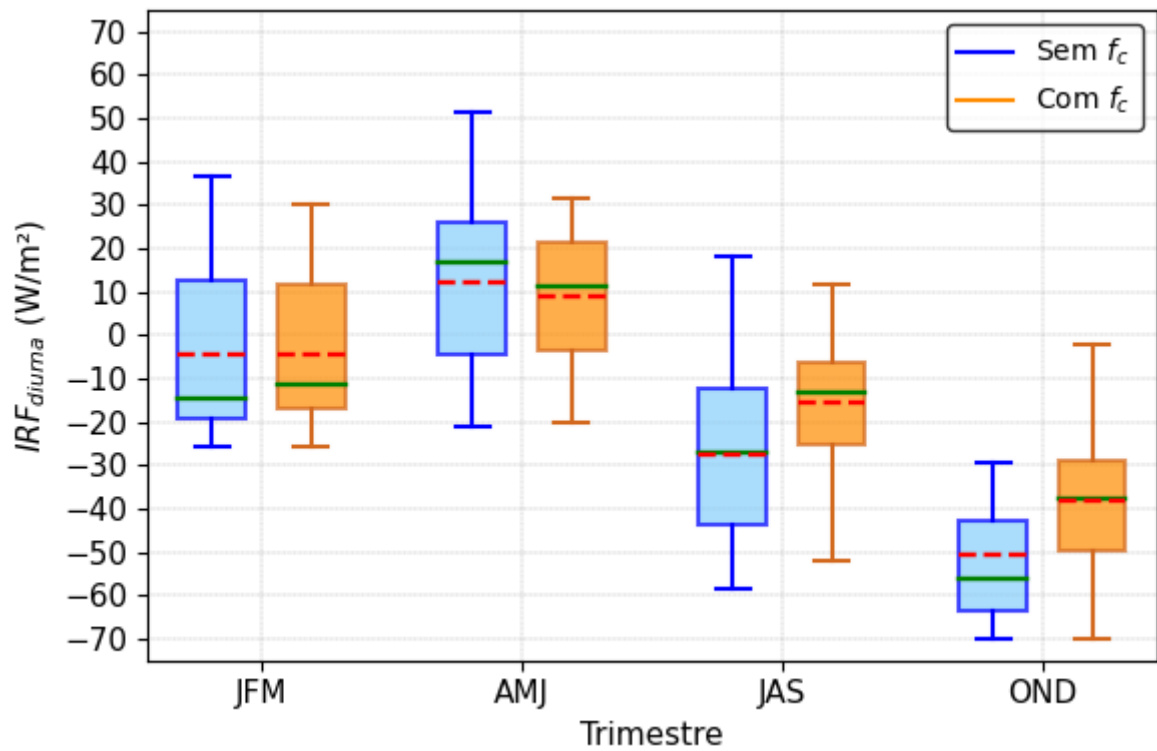


Figura B3 – *Boxplots* para as IRF diurnas com e sem a média de  $f_c$  para todos os trimestres de 2015.

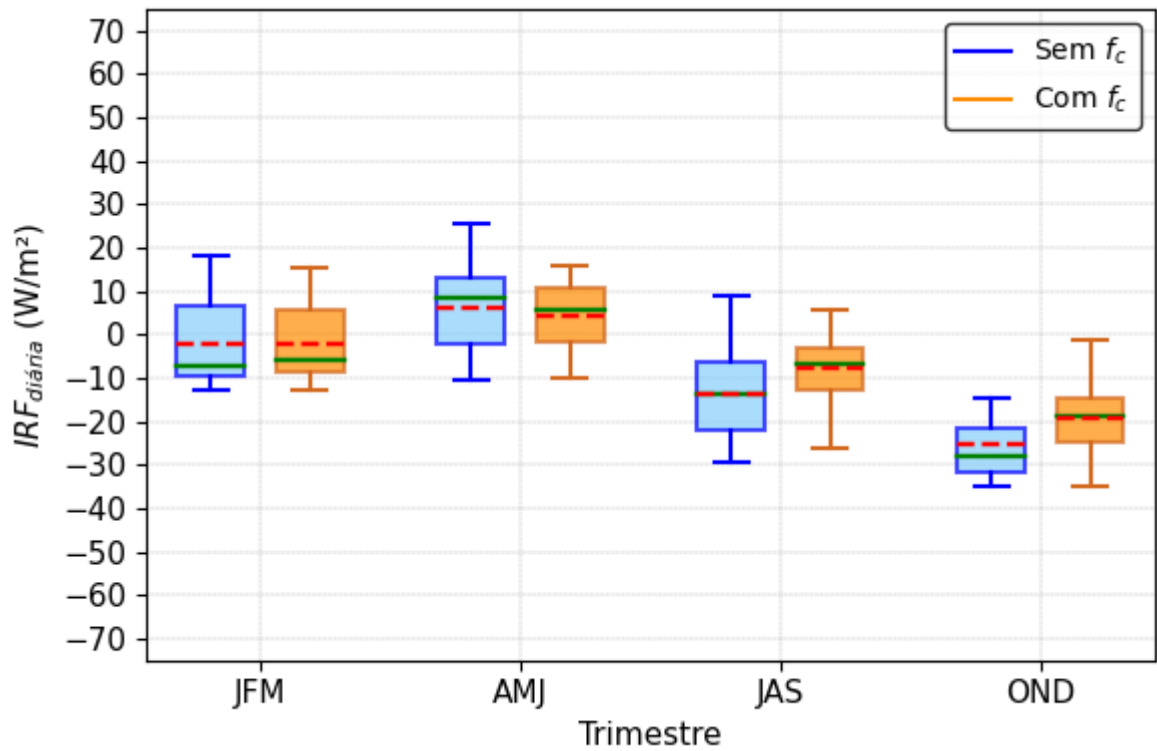


Figura B4 – *Boxplots* para as IRF diárias com e sem a média de  $f_c$  para todos os trimestres de 2015.

## Apêndice C

Quadro C.1 - Configuração das nuvens para os dias 11/09/2014 e 28/09/2014, durante a IOP 2. Os valores de LWC e  $r_{\text{eff}}$  correspondem a medianas calculadas a partir dos conjuntos de dados obtidos pelo instrumento CAS-DPOL a bordo do avião alemão HALO. As médias (considerando os modelos para os dois dias) obtidas para  $r_{\text{eff}}$  e LWC foram de  $6.89 \mu\text{m}$  e  $0.26 \text{ g/m}^3$ , sendo esta última muito próxima ao intervalo de valores (LWC entre  $0.27 \text{ g/m}^3$  e  $0.28 \text{ g/m}^3$ ) obtido através da instrumentação em solo para 2014 e 2015. Os valores nulos nas extremidades das bases e dos topos são necessários para que o *LibRadtran* simule corretamente os limites das nuvens modeladas.

Região da nuvem X Propriedade	Altura (km)	LWC ( $\text{g/m}^3$ )	$r_{\text{eff}}$ ( $\mu\text{m}$ )
<b>Dia 11/09/2014</b>			
<b>Topo</b>	2.0 a 3.0	0.28 a 0.00	8.30 a 0.0
<b>Centro</b>	1.0 a 2.0	0.26 a 0.28	6.09 a 8.30
<b>Base</b>	0.0 a 1.0	0.00 a 0.26	0.00 a 6.09
<b>Dia 28/09/2014</b>			
<b>Topo</b>	2.0 a 3.0	0.27 a 0.00	8.03 a 0.0
<b>Centro</b>	1.0 a 2.0	0.24 a 0.27	5.48 a 8.03
<b>Base</b>	0.0 a 1.0	0.00 a 0.24	0.00 a 5.48



Fonte: Autor

## **Anexo A**

Ao longo do curso de doutorado o autor foi coautor no artigo intitulado *A Multi-Year Study of GOES-13 Droplet Effective Radius Retrievals for Warm Clouds over South America and Southeast Pacific*, publicado na revista *Atmosphere* (MDPI) em 2022.

## Article

# A Multi-Year Study of GOES-13 Droplet Effective Radius Retrievals for Warm Clouds over South America and Southeast Pacific

Alexandre L. Correia <sup>1,\*</sup> , Marina M. Mendonça <sup>2</sup> and Thiago F. Nobrega <sup>1</sup>, Andre C. Pugliesi <sup>1</sup> and Micael A. Cecchini <sup>3</sup> 

<sup>1</sup> Institute of Physics, University of Sao Paulo, Sao Paulo 05508-090, Brazil; thiago.ferreira.nobrega@usp.br (T.F.N.); andre.cezar.silva@usp.br (A.C.P.)

<sup>2</sup> Department of Environmental Engineering, Sao Paulo State University, Sao Paulo 18087-180, Brazil; marina.monteiro@unesp.br

<sup>3</sup> Department of Atmospheric Science, Colorado State University, Fort Collins, CO 80523, USA; Micael.Cecchini@colostate.edu

\* Correspondence: a.correia@if.usp.br

**Abstract:** Geostationary satellites can retrieve the cloud droplet effective radius ( $r_c$ ) but suffer biases from cloud inhomogeneities, internal retrieval nonlinearities, and 3-D scattering/shadowing from neighboring clouds, among others. A 1-D retrieval method was applied to Geostationary Operational Environmental Satellite 13 (GOES-13) imagery, over large areas in South America (5° N–30° S; 20°–70° W), the Southeast Pacific (5° N–30° S; 70°–120° W), and the Amazon (2° N–7° S; 54°–73° W), for four months in each year from 2014–2017. Results were compared against in situ aircraft measurements and the Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer cloud product for Terra and Aqua satellites. Monthly regression parameters approximately followed a seasonal pattern. With up to 108,009 of matchups, slope, intercept, and correlation for Terra (Aqua) ranged from about 0.71 to 1.17, –2.8 to 2.5  $\mu\text{m}$ , and 0.61 to 0.91 (0.54 to 0.78, –1.5 to 1.8  $\mu\text{m}$ , 0.63 to 0.89), respectively. We identified evidence for  $r_c$  overestimation (underestimation) correlated with shadowing (enhanced reflectance) in the forward (backscattering) hemisphere, and limitations to illumination and viewing configurations accessible by GOES-13, depending on the time of day and season. A proposition is hypothesized to ameliorate 3-D biases by studying relative illumination and cloud spatial inhomogeneity.

**Keywords:** cloud effective radius; remote sensing; microphysics; GOES; tropics



**Citation:** Correia, A.L.; Mendonça, M.M.; Nobrega, T.F.; Pugliesi, A.C.; Cecchini, M.A. A Multi-Year Study of GOES-13 Droplet Effective Radius Retrievals for Warm Clouds over South America and Southeast Pacific. *Atmosphere* **2022**, *13*, 77. <https://doi.org/10.3390/atmos13010077>

Academic Editor: Xianwen Jing

Received: 30 November 2021

Accepted: 29 December 2021

Published: 2 January 2022

**Publisher's Note:** MDPI stays neutral with regard to jurisdictional claims in published maps and institutional affiliations.



**Copyright:** © 2022 by the authors. Licensee MDPI, Basel, Switzerland. This article is an open access article distributed under the terms and conditions of the Creative Commons Attribution (CC BY) license (<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>).

## 1. Introduction

Clouds are the main radiative modulator in the atmosphere [1] and have relevant impacts on climate. In order to adequately describe these impacts, global climate models need constant improvements in the parametrization of cloud properties, and how they respond to changes in atmospheric dynamics and composition. The radiative effect of clouds is influenced by atmospheric aerosol loading [2–5] and constitutes one of the greatest uncertainties in estimates of climate radiative forcing [6].

Aerosol effects on clouds, at local and global scales, are often modeled as changes in the effective radius of cloud droplets ( $r_c$ ) (e.g., [7,8]), and as the net radiative forcing originating from these changes (e.g., [9]). In case the droplet size is larger than or very close to the incident radiation wavelength, which often happens for warm (i.e., liquid phase) clouds,  $r_c$  is defined [10] according to:

$$r_c = \frac{\int_0^\infty r^3 n_d(r) dr}{\int_0^\infty r^2 n_d(r) dr} \quad (1)$$

where  $n_d(r)$  is the number concentration of droplets of radius  $r$  per size distribution interval.

Nakajima and King [1] have developed a bispectral method to simultaneously derive  $r_c$  and the cloud optical depth  $\tau$ . Most of the orbital  $r_c$  retrieval methods today employ, in one way or another, the ideas put forward in their seminal paper. The method uses radiance measurements at one water-absorbing wavelength, typically in the near-infrared, and a weakly absorbing wavelength, usually in the visible part of the spectrum. A commonly used strategy is to apply forward modeling to simulate sensor-specific radiance measurements, for a myriad of physical conditions, with 1-D cloud properties, illumination, and viewing angles. A look-up table (LUT) with these results is compiled for use in the inverse problem, i.e., minimizing a cost function defined as the difference between actual radiance measurements and the precomputed LUT solutions.

Assessing  $r_c$  over large extents of the globe is only practical if performed using satellite remote sensing retrievals. National Aeronautics and Space Administration (NASA) operates the Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS) instruments aboard Terra and Aqua satellites, routinely retrieving cloud microphysics [11]. Due to their polar orbits, these satellites can sample cloud properties over the entire globe. However, at surface locations near the Equator, MODIS will have at most one daytime overpass for each satellite, while multiple passes occur near the poles. The instrument has a nominal cross-track swath of 2330 km, which causes gaps between consecutive orbits near the Equator. Therefore, even though MODIS  $r_c$  retrievals are considered a worldwide standard, we still lack more frequent, accurate information on cloud microphysics, to better understand cloud development and lifetime cycle, especially in the tropics.

Instruments onboard geostationary satellites, which have been routinely used for weather forecast-related applications, can also be employed for microphysical retrievals. For example, previous works have studied warm cloud  $r_c$  retrievals, from radiance measured by the imager sensor on Geostationary Operational Environmental Satellites (GOESs) operated by the National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA). These included retrievals by GOES-8 over the land [12], GOES-8, -10, and -11 also over land [13], GOES-10 over the Southeast Pacific [14], and GOES-13 over the North Atlantic [15]. In all these cases,  $r_c$  was retrieved with a repeatability rate of about 30 min, a much higher frequency than possible with polar satellites.

Although useful for gathering a broad perspective on cloud microphysics,  $r_c$  retrievals by instruments in polar or geostationary platforms are indirect estimates. They show statistically significant biases when compared to in situ measurements by aircraft (e.g., [14–19]), or surface measurements (e.g., [12,13,20]).  $r_c$  retrievals also show angular dependence with solar illumination and viewing angles (e.g., [13,21–24]). The sources of these discrepancies are manifold. Operational retrievals rely on the 1-D LUT approach described above, with biases that are inherent to this methodology (internal biases), and others that are not directly related to it (external). Some general external biases are instrument deviations from calibration, unaccounted above-cloud gaseous absorption, surface albedo contamination [25], and the presence of precipitation [16,26]. Internal biases originate from limitations in the 1-D modeling of cloud properties to accurately describe what in fact are 3-D radiative transfer phenomena. These can be further classified into biases due to resolved and unresolved (subpixel) variability [25]. At the subpixel scale, cloud inhomogeneities (e.g., broken cloud fields) may result in horizontal photon transport that cannot be represented by 1-D modeling [27,28]. Another type of unresolved bias originates from the nonlinear relation between the measured near-infrared radiance and  $r_c$ . Due to this nonlinearity, averaging or gridding processes result in a negative bias to the retrieved  $r_c$  [25,26]. In addition to this effect, the fact the two wavelengths used to build the LUT have a certain degree of covariance results in an underestimated  $r_c$ , associated with averaging radiances at the subpixel scale [29]. Fortunately, a framework has been put forward to mitigate the effects of these unresolved biases [27,29]. Resolved variability refers to enhanced scattering or shadowing effects from nearby 3-D cloud parts, which change the effective radiance measured out of a given cloud section, hence altering the retrieved  $r_c$  [25,28,30].

Comparing GOES and surface-derived  $r_c$ , McHardy et al. [13] have identified important biases related to 3-D effects. The authors analyzed more than 8 years of data, for one specific land site, and concluded that solar and viewing geometries are important factors to be considered in geostationary  $r_c$  retrievals. Some other works have analyzed geostationary  $r_c$  retrievals in a broader spatial context, however, under a limited temporal domain [12,14–16]. This limitation is necessary to avoid technical or practical difficulties related to in situ samplings, but it also restricts the range of accessible illumination and viewing geometries, which are found lacking.

From the operational point of view, 1-D modeling is currently the only option to address  $r_c$  retrievals, across broad spatial domains, in a timely manner [28]. Still, the literature has shown the importance of understanding 3-D effects due to cloud inhomogeneity at various levels, and the role of viewing and illuminating geometries in geostationary platforms. This work proposes discussing these issues by using a simple 1-D retrieval methodology and analyzing regressions of GOES-13  $r_c$  against the reference MODIS Terra and Aqua cloud products. We seek to answer how these inter-satellite comparisons change over the seasons and to discuss the role played by geometrical factors. Large areal extents in the tropics are studied over continental South America and the Southeast Pacific. We present our results in the context of previous studies in the Discussion section. The following sections are structured as follows: Section 2.1 presents the datasets used in this study; Section 2.2 discusses the retrieval methodology and assumptions that have been made; Sections 2.3 and 2.4 describe the strategy used for matching up GOES to MODIS and aircraft datasets; results of matchups are shown in Sections 3.1 and 3.2; Section 3.3 discusses the influence of illumination on the retrievals; Section 3.4 shows a comparison of some of our retrieval results with in situ aircraft data. We discuss our results in Section 4, with a proposition for moving forward in future studies; our conclusions are discussed in Section 5.

## 2. Materials and Methods

### 2.1. Spatial–Temporal Domain and Datasets

The spatial domain for this study was divided into three sections: one designated as the West sector (5° N to 30° S; 70° to 120° W), another as the East sector (5° N to 30° S; 20° to 70° W), and a special quadrant designated as the Amazon sector (2° N to 7° S; 54° to 73° W). The East sector is characterized by a large extent of continental South America, covering a profusion of different surface types, including forests, savannah, grasslands, cities, and mountainous regions over the Andes. The Amazon sector corresponds to mostly forested surfaces and large rivers. The West sector area is dominated by the oceanic surface of the Southeast Pacific, as shown in Figure 1. Over the East sector, many different cloud systems may occur, ranging from small to mid-level cumuli up to deep convective cells, mesoscale convective systems, propagating squall lines, and frontal systems, especially during the austral winter. In the Amazon sector, intense convective activity is often observed, with rapid daily cloud formation, from initial shallow convection to deep convective cells, organization of squall lines, and mesoscale convective systems. In contrast, the West sector is dominated by stratocumuli or stratus cloud decks in the Pacific Ocean, but deeper convective cells may occur closer to the Intertropical Convergence Zone, also subject to seasonal fluctuations. For the sake of this work, we note that these different cloud properties are key to understanding differences in results for each of the regions under study. Statistically, for broken cloud fields and convective cells, under different stages of development in the East and Amazon sectors, shape irregularities on cloud tops are more likely subject to 3-D illumination or shadow casting effects than the more homogeneous conditions in the West sector [25]. Pockets of open cells in the Pacific can be screened out based on their lower average albedo.

GOES-13 imager, Terra MODIS, and Aqua MODIS data over the three sectors were obtained from online repositories administered by NASA (<https://atmosphere-imager.gsfc.nasa.gov/products/cloud>, accessed 9 November 2021 12:00 UTC) and NOAA (<https://>



//www.avl.class.noaa.gov/saa/products/welcome, accessed 9 November 2021 12:00 UTC). Data from these sensors were retrieved for January, April, July, and October, between 2014 and 2017. Restricting the analyses to these months was motivated by limitations in managing sizable data files, due to the large areal extent in each sector. This constraint does not impact the goals in this work. Only daytime data were used, hence, for each sector, a specific daily time interval was considered. For the East and Amazon sectors GOES and MODIS data were retrieved between 11:00 UTC and 19:59 UTC. For the West sector, this interval was 13:30 UTC to 22:29 UTC. Since the geostationary sensor at  $75.2^\circ$  W has a fixed observation geometry for each given surface pixel, the different months chosen in the study were intended to probe how varying illumination angles along Earth's orbit would impact GOES vs. MODIS retrieval comparisons. MODIS  $r_c$  retrievals have been investigated for biases under inhomogeneous cloud fields, due to 3-D effects arising from the illumination and observation geometries [23]. Horváth et al. [23] have shown that, under observation conditions analogous to the ones used in this work, MODIS  $r_c$  retrieval biases due to variations in the sensor view zenith angle,  $\theta_v$ , are minimized. Therefore, such biases do not compromise our results.



**Figure 1.** Spatial domain used in this study: East ( $5^\circ$  N to  $30^\circ$  S;  $20^\circ$  to  $70^\circ$  W), West ( $5^\circ$  N to  $30^\circ$  S;  $70^\circ$  to  $120^\circ$  W), and Amazon ( $2^\circ$  N to  $7^\circ$  S;  $54^\circ$  to  $73^\circ$  W) sectors.

Collection 6.1 Terra and Aqua MODIS cloud products (M<sup>\*</sup>D06) [11] were considered as baseline references in this study. Average and sample standard deviation statistics of  $r_c$ , from MODIS  $3.7\ \mu\text{m}$  channel “best quality” pixels, were compared to GOES  $r_c$  retrievals in matched-up grid cells. No modification was applied to the regular M<sup>\*</sup>D06 product other than grid averaging. Choosing the MODIS  $3.7\ \mu\text{m}$   $r_c$  product was motivated by the following: first, this is the closest wavelength to the nominal  $3.9\ \mu\text{m}$  GOES channel, hence both retrievals should be constrained by similar physical processes, regarding cloud droplet photon scattering and absorption. Secondly, the  $3.7\ \mu\text{m}$  wavelength vertical photon transport within the cloud is shallower than the shorter  $2.2$  and  $1.6\ \mu\text{m}$  wavelengths [31], thus it is less susceptible to variations in the vertical profile of cloud hydrometeor size. Lastly, the  $3.7\ \mu\text{m}$  MODIS  $r_c$  product has shown better resilience against biases due to the presence of precipitation, the occurrence of 3-D effects, and subpixel horizontal photon transport inhomogeneity, and fares better against in situ measurements, when compared to the  $2.2$  and  $1.6\ \mu\text{m}$  products [17,23]. Geolocation products (M<sup>\*</sup>D03) were used to assess MODIS viewing geometry, surface type (i.e., land/sea mask), and hydrometeor thermodynamic phase. Only daytime MODIS data were used due to the limitation in the GOES-13 retrieval algorithm, which requires information on the visible (VIS) channel cloud reflectance, as discussed below.

GOES-13 imager raw count data from VIS, infrared (IR), and thermal infrared (TIR) channels, at 0.63, 3.90, and 11.0  $\mu\text{m}$ , were converted to calibrated radiances (VIS at 1 km nominal spatial resolution, IR at 4 km), and brightness temperature (TIR at 4 km), according to NOAA's specifications (<https://www.ospo.noaa.gov/Operations/GOES/calibration/index.html>, accessed 9 November 2021 21:00 UTC) [32]. GOES-13 "scan coverages" designate specific regions, delimited by latitude–longitude boxes, for which imagery is acquired at regular time intervals. In this study we used the "Full Disk" and the "Northern Hemisphere Extended" scan schedules, resulting in having GOES imagery data typically every 30 min.

## 2.2. GOES-13 $r_c$ and Phase Retrievals

We describe below the general retrieval strategy used to derive  $r_c$  from GOES-13 radiance measurements. This is not intended to be an operational retrieval program, but rather a simple approach anchored in physical processes. The assumptions described below arise from 1-D radiative transfer concepts, and as such need to have their limitations of applicability recognized [26,27]. Yet the same set of concepts constitutes the current core of NOAA's official  $r_c$  retrieval algorithm for GOES-16, as indicated by their Algorithm Theoretical Basis Document ([https://www.ospo.noaa.gov/Products/Suites/files/atbd/DCOMP\\_ATBD\\_2016\\_Apr.pdf](https://www.ospo.noaa.gov/Products/Suites/files/atbd/DCOMP_ATBD_2016_Apr.pdf), accessed 9 November 2021 12:00 UTC).

Pixel-level VIS radiances,  $L_{0.63}$ , measured by the GOES-13 imager sensor, at 1 km nominal spatial resolution, were expressed in terms of the reflectance function  $\rho_{0.63}$  as:

$$\rho_{0.63} = \frac{L_{0.63}}{F_0^{0.63} \mu_0 / \pi d^2} \quad (2)$$

where  $F_0^{0.63}$  is the extraterrestrial solar flux at 0.63  $\mu\text{m}$  (i.e., integrated over the VIS channel filter function),  $\mu_0$  is the pixel-level cosine of the instantaneous solar zenith angle, and  $d$  is the Sun–Earth distance, in astronomical units, for a given day of the year.  $\rho_{0.63}$  was used to identify cloudy pixels that could be potential candidates for a retrieval attempt, as explained below.

Planck's blackbody emission at 3.90  $\mu\text{m}$ ,  $B_{3.90}(T_B)$ , was subtracted from the measured IR radiance  $L_{3.90}$  to derive  $\rho_{3.90}$ , at 4 km spatial resolution, following Kaufman and Nakajima [33]:

$$\rho_{3.90} = \frac{L_{3.90} - t'_{3.90} B_{3.90}(T_B)}{t_{3.90}^0 F_0^{3.90} \mu_0 / \pi d^2 - t'_{3.90} B_{3.90}(T_B)} \quad (3)$$

where  $F_0^{3.90}$  is the extraterrestrial solar flux at 3.90  $\mu\text{m}$  [34],  $t_{3.90}^0$  and  $t'_{3.90}$  are, respectively, the bidirectional and the upward solar radiation transmission functions at 3.90  $\mu\text{m}$ , and  $T_B$  is the brightness temperature derived from the TIR channel. Notice that  $B_{3.90}(T_B)$ ,  $F_0^{3.90}$ ,  $t_{3.90}^0$  and  $t'_{3.90}$  were specifically derived using the GOES-13 IR channel filter function (<https://www.ospo.noaa.gov/Operations/GOES/goes-imager-srfs.html>, accessed 9 November 2021 21:00 UTC).

The transmission functions  $t_{3.90}^0$  and  $t'_{3.90}$  were parameterized as functions of the pixel-level  $T_B$  of a cloudy pixel, using the libRadtran [35] radiative transfer code package. The parameterization is shown in Table 1 and represents the fact that, on average, the lower (i.e., warmer) the cloud, the more water vapor is present in the column above it, hence resulting in lower  $t_{3.90}^0$  and  $t'_{3.90}$ . In practice,  $t_{3.90}^0$  varies between about 0.6 and 1.0 depending on the cloudy pixel  $T_B$ , while Kaufman and Nakajima [33] considered a fixed value of 0.75.

One key issue in this study is what constitutes a cloudy pixel. Our definition is based on a simple threshold method. For small clouds the classification results will deviate from more intricate methodologies, like the one used in the MODIS product chain. In our study GOES-13 pixels were classified as cloudy when having  $\rho_{0.63} > 0.35$  and  $T_B < 290\text{ K}$ . We reckon this is a rather stringent requirement for the VIS reflectance threshold. It ensures only optically thick clouds ( $\tau$  above 8–10) are selected for subsequent  $r_c$  retrievals, and corresponds to a region of approximate orthogonal solutions for  $\tau$  and  $r_c$  in Nakajima–King

type diagrams [33]. The choice does impact the mean GOES-13  $r_c$  retrieval results since it imposes limitations on the subset of cloud regions selected for analysis. In other words, the resulting  $r_c$  is constrained to optically thicker clouds, and cannot be identical (i.e., along the 1:1 line) to results intended for broad application, including all types of clouds, such as the MODIS operational product. This does not interfere with the main goal in this study, which is to gather new insights on seasonal variations for the retrievals. In future developments, it will be possible to reevaluate the threshold specifications to admit more demanding cloudy pixel definitions, or to use external ancillary data to improve the cloud selection method.

**Table 1.** Parameterized transmission functions, according to the pixel-level  $T_B$ .

Cloudy Pixel Condition	Transmission Function
$T_B > 300$ K	$I_{3.90}^0 = 0.6$
$200$ K $< T_B < 300$ K	$I_{3.90}^0 = a_0 + a_1 T_B + a_2 T_B^2 + a_3 T_B^3 + a_4 T_B^4$
$T_B < 200$ K	$I_{3.90}^0 = 1.0$
$I'_{3.90} = (I_{3.90}^0)^{0.5}$	
$a_0 = -3.11175 \times 10^1; a_1 = 5.60850 \times 10^{-1} \text{K}^{-1}; a_2 = -3.66394 \times 10^{-3} \text{K}^{-2}$ $a_3 = 1.06237 \times 10^{-5} \text{K}^{-3}; a_4 = -1.15596 \times 10^{-8} \text{K}^{-4}$	

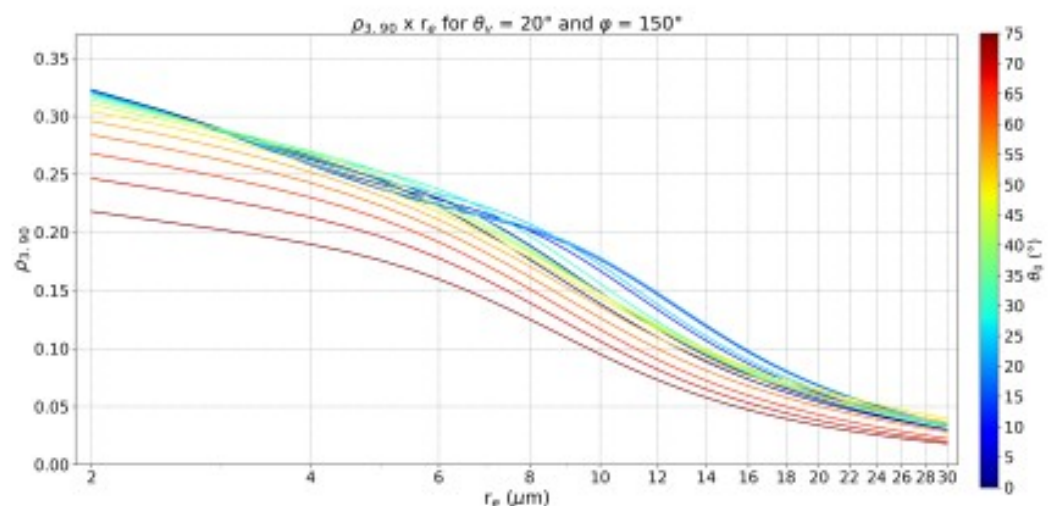
To avoid inhomogeneous regions near cloud edges, only sections containing at least  $8 \times 8$  km contiguous cloudy pixels were retained for subsequent analysis. This restriction favors the selection of the central core of cloud sections. Avoiding cloud edges [30], and considering clouds with  $\tau > 8$ , aims at reducing subpixel and pixel-level variability [26], and the likelihood of having surface scattered radiance diverted toward the sensor field of view. This cloud edge detection routine was performed in the following steps: (1)  $T_B$  was resampled to 1 km to match the  $\rho_{0.63}$  spatial resolution (these resampled  $T_B$  data were used only internally in this routine); (2) an initial cloud mask at 1 km was derived applying the  $\rho_{0.63}$  and  $T_B$  threshold levels described above, by assigning 0 or 1 to noncloudy or cloudy pixels, respectively; (3) the average of  $8 \times 8$  pixel cloud mask boxes was calculated; if a box showed an average value below unity, none of the corresponding pixels in  $\rho_{0.63}$  and  $T_B$  arrays were further used by the algorithm. The  $8 \times 8$  km size is arbitrary. We empirically found this to be an adequate compromise in ensuring the screening of inhomogeneous cloud edges and keeping enough statistics for robust results.

The thermodynamic phase of cloudy pixels was determined based on the spectral  $\rho_{0.63}/\rho_{3.90}$  signature due to water and ice differential wavelength absorption properties in the VIS and IR. By analyzing the  $\rho_{0.63}/\rho_{3.90}$  ratio for cloudy pixels in the water phase (i.e.,  $T_B > 0$  °C) and pixels in the ice phase ( $T_B < -40$  °C), this quantity can identify the thermodynamic phase in hydrometeors and their glaciation temperature [36], for use in future works involving mixed-phase clouds. In this study, only warm water phase pixels were selected.

A LUT with precomputed simulated  $L_{3.90}$  radiances, under a number of preset conditions, was derived by Mendonça [37] using libRadtran [35]. The LUT was originally developed for tropical atmospheric profile conditions, considering a homogeneous dark surface with 0.09 albedo at 3.90  $\mu\text{m}$ , 1-D plane-parallel clouds with constant  $r_c$ , considering  $r_c$  values from 2.0 to 59.0  $\mu\text{m}$  in each simulation,  $\theta_v$  of 10°, 20°, and 30°, solar zenith angles,  $\theta_0$ , ranging from 0° to 75°, relative azimuth angles  $\varphi$  (sensor view minus solar illumination azimuth:  $\varphi = \varphi_v - \varphi_0$ ) of 30° and 150°, and  $\tau$  ranging from 1.0 to 50. In this work, only the optically thick, asymptotic results for  $\tau = 50$  were used. Surface locations with  $\theta_v < 15^\circ$ ,  $15^\circ \leq \theta_v < 25^\circ$ , and  $25^\circ \leq \theta_v \leq 60^\circ$ , respectively, used corresponding LUT solutions for  $\theta_v = 10^\circ$ ,  $20^\circ$ , and  $30^\circ$ . No retrievals were attempted for  $\theta_v > 60^\circ$  locations. No modifications were introduced to account for the fact the nominal wavelength for GOES-13 at 3.90  $\mu\text{m}$  differs from the 3.7  $\mu\text{m}$  used in MODIS cloud products. The full LUT included calculations for both water droplets and ice particles. Ice phase solutions were

based on bulk scattering properties using a general mixture of crystal habits provided by libRadtran [35,38]. Here, only the water phase LUT section was used.

The general GOES-13  $r_c$  retrieval process operated in this fashion: (1) for pixels within a section of at least  $8 \times 8$  km cloudy pixels, the warm water phase was selected by identifying pixels with  $T_B > 0$  °C; (2) for the selected pixels,  $\varphi$  was determined based on pixel-level latitude, longitude coordinates, day of the year, and the imagery acquisition time. This provided the information to select the LUT subset of solutions in the forward ( $\varphi > 90^\circ$ ) or backward ( $\varphi < 90^\circ$ ) scattering hemispheres. Notice that since the LUT uses 1-D calculations, the choice of the scattering hemisphere refers to anisotropic characteristics of the hydrometeor phase function, not related to shading/illumination issues that can only arise in 3-D modeling; (3) considering the particularly observed illumination and viewing geometries, the measured  $\rho_{3,90}$  was sought over the LUT; (4) the retrieved  $r_c$  solution corresponded to the linear interpolation between the two nearest matching results found in the LUT. Figure 2 illustrates one particular subset of conditions in the LUT, where  $\theta_v = 20^\circ$ ,  $\varphi = 150^\circ$ , and the nonlinear relation between  $\rho_{3,90}$  and  $r_c$  is evident. This inherent nonlinearity is in itself a potential source of unaccounted subpixel bias in 1-D radiative transfer simulations [25], but mitigating strategies [27,29] can ameliorate this issue. We did not seek to retrieve  $\tau$  from the measured VIS reflectance, since our goal is specifically to study  $r_c$  retrievals, considered approximately independent of  $\rho_{0.63}$  for  $\tau > 8$  clouds.



**Figure 2.** LUT subsection with solutions for water phase cloud droplets with  $\tau = 50$ ,  $2 \leq r_c \leq 30$   $\mu\text{m}$ ,  $\varphi = 150^\circ$ , and  $\theta_v = 20^\circ$ . The curves correspond to the interval  $0^\circ \leq \theta_0 \leq 75^\circ$ .

### 2.3. MODIS Match Up and Spatial–Temporal Comparison Strategy

GOES-13 imager radiance scans take a regular amount of time to be completed, hence their start times do not directly reflect the instant of acquisition over the region of interest. For instance, a “Full Disk” scan schedule takes about 13 min from the start to get to the Equator region, while in “Northern Hemisphere Extended” scans the same process takes about 7.5 min. Thus, all GOES-13 retrieval times in this study were adjusted to their equivalent Equator scanning times.

Due to Terra and Aqua polar orbits, MODIS retrievals closer to the Equator can typically have one overpass during daytime for each satellite, while closer to the poles several retrieval occasions can occur each day. To match up these multiple retrieval opportunities, a temporal window of 20 min was established, centered at each GOES-13 Equator scanning time. In this way, any MODIS data granule within this time slot was considered apt for comparison.  $\theta_v$  was limited at below  $60^\circ$  for both MODIS and GOES-13 [39].

To compare the GOES-13 derived  $r_c$  to the reference MODIS  $r_c$ , both these quantities were bilinearly interpolated over a regular  $0.2^\circ$  latitude/longitude grid, across the spatial domain in each sector, to allow for a direct comparison in coincidentally cloudy pixels.

A post-gridding cut-off value of  $1.0 \mu\text{m}$  was defined to represent a physical consistency check, i.e., as a lower limit of acceptable gridded values for effective radii. The gridding process can introduce artifacts if a cell contains cloud edges, or if pixels with significantly different  $r_e$  end up in the same gridding cell. This can be controlled by excluding from the analysis cells with a relatively large  $r_e$  standard deviation ( $\sigma_{r_e}$ ), compared to the gridded value  $\langle r_e \rangle$ , such as:

$$\frac{\sigma_{r_e}}{\langle r_e \rangle} = \frac{\sqrt{\langle r_e^2 \rangle - \langle r_e \rangle^2}}{\langle r_e \rangle} \quad (4)$$

where the brackets  $\langle \rangle$  denote the bilinear gridding. Only grid cells with a relative standard deviation below 10% were retained for comparison. Besides excluding gridding artifacts, this also eliminates regions with high  $r_e$  variability, arising from other sources of resolved inhomogeneities, such as juxtaposed interfaces with shadowed/illuminated cloud sections [30], or with clouds at different top heights [25]. The computed  $\sigma_{r_e}$  in each grid cell was further used as an estimate of the uncertainty in regressions, i.e., the larger the  $\sigma_{r_e}$  in a grid cell, the smaller its weight in computing the regression  $Q^2$  statistic.

The aim in imposing these series of strict sets of requirements for matchups is assessing the performance of this GOES-13 retrieval algorithm under relatively uniform, although realistic, atmospheric conditions representative of a panoply of environments. In future studies, more challenging cases can be used.

#### 2.4. Aircraft In Situ Match Up and Comparison Strategy

The GOES-13  $r_e$  retrievals were also compared to aircraft in situ measurements collected during the GoAmazon2014/5 experiment [40,41]. During the first GoAmazon2014/5 Intensive Operations Period (IOP1), the US Department of Energy (DOE) Atmospheric Radiation Measurement (ARM) Gulfstream-1 (G-1) aircraft [42] performed 16 research flights near the city of Manaus ( $3^\circ 06' \text{ S}$ ,  $60^\circ 01' \text{ W}$ ) to measure aerosol, clouds, radiation, and gas-phase chemistry characteristics. The IOP1 took place between February and March 2014, corresponding to the local wet season. During this time of the year, the background atmospheric conditions are rather clean in terms of aerosol pollution due to the frequent rain showers. On the other hand, Manaus emits daily pollution plumes downwind (most often towards the southwest) due in large part to car traffic and urban activities. This creates a contrast between clean and polluted atmospheric conditions, with the respective variety in cloud microphysical properties.

Cecchini et al. [43] have analyzed the statistical differences between clouds affected or not by the pollution plume emitted from Manaus. In this study, the authors organized the 1 Hz Fast Cloud Droplet Probe (FCDP, Spec Inc.) measurements for all G-1 flights, excluding all occurrences of thin clouds with droplet number concentrations below  $0.3 \text{ cm}^{-3}$ , or liquid water content below  $0.02 \text{ g m}^{-3}$ . Additionally, the data collected during aircraft maneuvers were filtered out. These observations were synchronized with temperature, humidity, pressure, and wind measurements collected by the Aventec Research Inc. Aircraft-Integrated Meteorological Measurement System (AIMSS-20) [44]. For consistency with the warm cloud  $r_e$  retrievals presented here, we further excluded all G-1 measurements with temperatures below  $0^\circ \text{C}$ . This process resulted in 3068 measurements of  $n_d(r)$  with 1 Hz frequency, from which  $r_e$  was calculated following Equation (1). With a flight speed of approximately  $100 \text{ m s}^{-1}$ , each measurement corresponds to a segment of about 100 m. We refer the reader to Cecchini et al. [43] for further details on the G-1 instrumentation as well as the flight strategies employed during IOP1.

To collocate aircraft  $r_e$  measurements with the satellite retrievals the following method was applied: (1) each flight during IOP1 was scrutinized and segmented into flight legs comprising a duration between 120 and 130 s; (2) for each flight leg the average  $r_e$ , latitude, longitude, and time coordinates were computed. The selected data points in each leg were also used to compute the  $r_e$  standard deviation; (3) each flight leg average time coordinate was used as a reference to search the contemporary GOES-13 imagery, considering a time

window of  $\pm 15$  min; (4) the  $3 \times 3$  GOES-13 pixels centered on each flight leg latitude and longitude were used to compute the satellite  $r_c$  standard deviation. The GOES-13  $r_c$  retrieved at the central pixel was compared to the aircraft average  $r_c$ .

Since the IOP1 measurements were performed during a short period of time, a special GOES-13 comparison strategy was adopted to ensure enough statistics remained for the matchups. The threshold levels to detect cloudy pixels were set as  $\rho_{0.63} > 0.125$  and  $T_B < 300$  K during IOP1. These levels were found adequate for the environmental and physical conditions observed during the G-1 flights. The cloud edge detection routine was not applied, i.e., no restrictions were imposed to exclusively retrieve over  $8 \times 8$  contiguous cloudy pixel regions. The  $r_c$  relative standard deviation restriction was relaxed to allow up to 50% variation. An additional restriction was implemented, requiring the  $T_B$  relative standard deviation to be below 1%.

### 3. Results

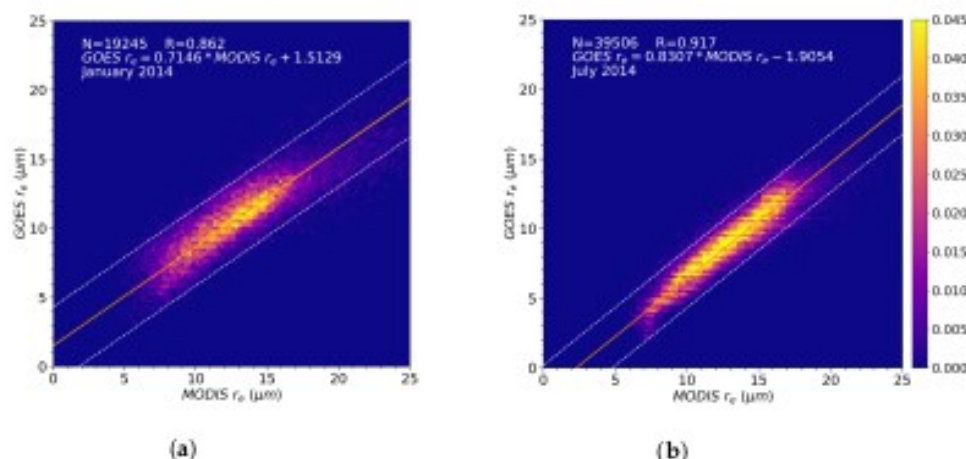
#### 3.1. GOES-13 Imager and MODIS $r_c$ Direct Matchup Results

Representative results of the matchup comparison are shown here, while subsequent sections examine these results in further detail. Comparisons between other geostationary  $r_c$  retrievals and MODIS, from previous works, are presented in the Discussion section. In this work, the data were not scrutinized for the influence of precipitation events [16,26], in part due to the relatively shallow vertical photon transport associated with the  $3.90 \mu\text{m}$  wavelength [31]. Only statistically significant figures with  $p$ -values under 0.05 are presented.

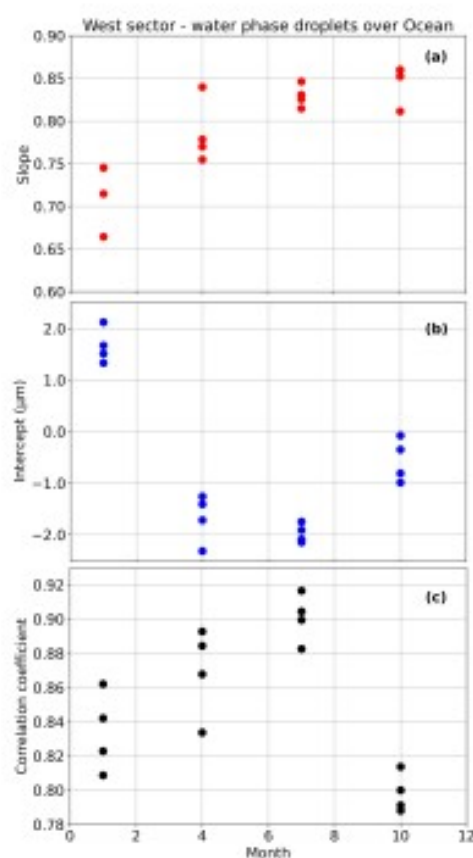
Figure 3 shows an example of regression results and  $r_c$  comparison histograms, for January and July in 2014, over the West sector, for water phase droplets over the ocean. Both regressions show a relatively high correlation coefficient, with tens of thousands of matchups in each month. Despite all simplifications involved in the 1-D radiative transfer modeling, the results do capture the essence of MODIS retrievals, explaining 74% to 84% ( $R^2$ ) of  $r_c$  variability over a large section in the Southeast Pacific. The sample confidence interval indicates the linear model can explain 95% of individual  $r_c$  retrievals within a couple of  $\mu\text{m}$ . As explained earlier, the retrieved  $r_c$  data are not expected to lie at the 1:1 line since our cloudy pixel definition differs from the method used by the operational MODIS product. Most noticeably, the slopes and intercepts change significantly between January and July 2014. While the MODIS  $r_c$  value retrieval domain (i.e., Figure 3 projection on the  $x$ -axis) does not change considerably between these two months, GOES-13 retrievals undergo a visible change, such that the intercept varies from about  $+1.5 \mu\text{m}$  to  $-1.9 \mu\text{m}$ . Even though these regressions show relatively high correlation coefficients, the changing slopes and intercepts show it is not possible to lump all yearly retrievals together to derive a unique comparison. On the contrary, these seasonal differences corroborate the complexities of orbital variations and the relative illumination/viewing geometry [13] in a geostationary platform. Of course, cloud microphysics should change between the two situations in January and July, and therefore can also contribute part of the changes, but the MODIS  $r_c$  retrieval domain was not significantly affected.

In order to assess the degree of variability, and whether it would impact the comparisons in a consistent fashion, we compared monthly regression results over the ocean, throughout the four years used in this study. Figure 4 shows the regression parameters and correlation coefficients from 2014–2017. In general, similar slope, intercept, and correlation coefficients are obtained for the same months in different years. The yearly repeatability of the regression parameters is an indication that the comparisons are reproducible to a certain degree. Considering the large number of varying physical conditions for cloud formation and development over the region, it is most likely that this cyclic pattern may be related to varying solar illumination conditions, with average 3-D effects related to the illumination and viewing directions, due to shadow casting on irregularly shaped cloud tops [25,30]. Considering our matchup selection method precludes pixels from the shallowest, optically thin clouds, and broken cloud fields, it is unlikely that the pattern shown in Figure 4 reflects seasonal changes in surface properties. The hot spot and glory

effects, showing peaking reflectance at the Sun’s backscatter, are other periodic phenomena that can in principle alter cloud reflectivity properties in the region. However, the particular set of geometrical configurations required for illumination and viewing directions makes them rare occurrences [21], that cannot explain the observed yearlong variations shown in Figure 4. These results confirm that each month needs to be treated separately for these inter-instrument comparisons.

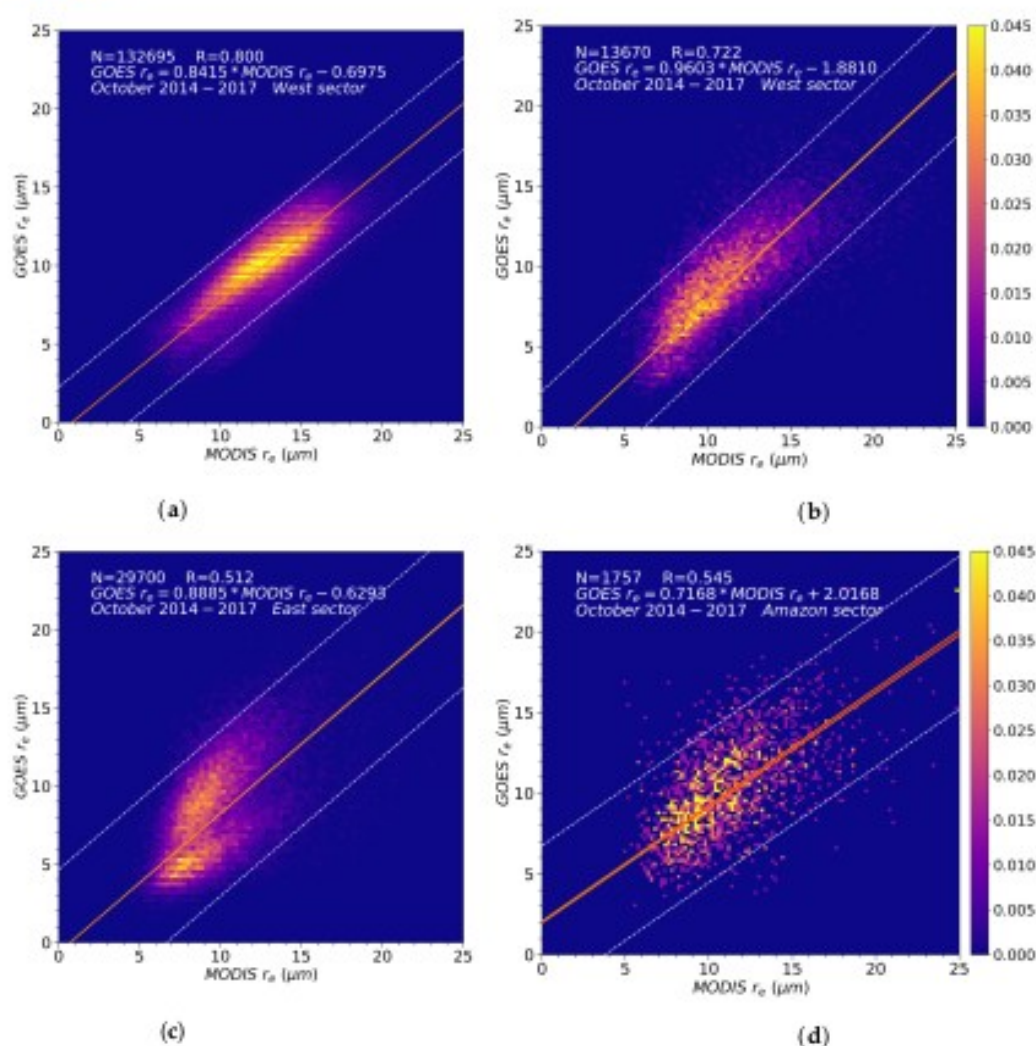


**Figure 3.** West sector matchup histograms for the months of (a) January and (b) July in 2014, and regression results for water phase droplets over the ocean. Dashed lines show the 95% sample confidence interval for each regression. Colorbar units are relative density  $\Delta N / N_{total} / \mu\text{m}^2$ .



**Figure 4.** West sector monthly regression results, for water phase droplets over the ocean, for the months of January, April, July, and October from 2014–2017. (a) Regression slope, (b) intercept, and (c) correlation coefficient. Individual markers correspond to a given month in different years.

We next discuss the particular case for the month of October. Regressions for the monthly 2014–2017 matched-up data are shown in Figure 5. Histograms are shown over the West sector, for oceanic and continental surface types, and the East and Amazon sectors over the land. In the West sector (Figure 5a,b), the number of matchups,  $N$ , is much larger over the ocean compared to the land since this sector extends predominantly over the Pacific. The regression results are significantly different over the land and ocean: over the Pacific (Figure 5a) a smaller (absolute) intercept value was obtained, compared to continental matchups (Figure 5b). However, the slope of the regression is closer to unity over land than over the ocean. The sample confidence intervals show the regressions can predict 95% of individual  $r_e$  data points within about  $\pm 3 \mu\text{m}$  over the ocean, and within about  $\pm 4 \mu\text{m}$  over the continental surface. Incidentally, we note the currently operational GOES-16 droplet size retrieval algorithm is required to match MODIS retrievals along the 1:1 line within  $\pm 4 \mu\text{m}$  ([https://www.ospo.noaa.gov/Products/Suites/files/atbd/DCOMP\\_ATBD\\_2016\\_Apr.pdf](https://www.ospo.noaa.gov/Products/Suites/files/atbd/DCOMP_ATBD_2016_Apr.pdf), accessed 10 November 2021 12:00 UTC).



**Figure 5.** West sector (a) ocean and (b) land, (c) East sector, and (d) Amazon sector GOES-13 and MODIS Terra and Aqua matchup histograms for the month of October, from 2014 to 2017, and regression results according to surface type. Dashed lines and colorbar units as in Figure 3.

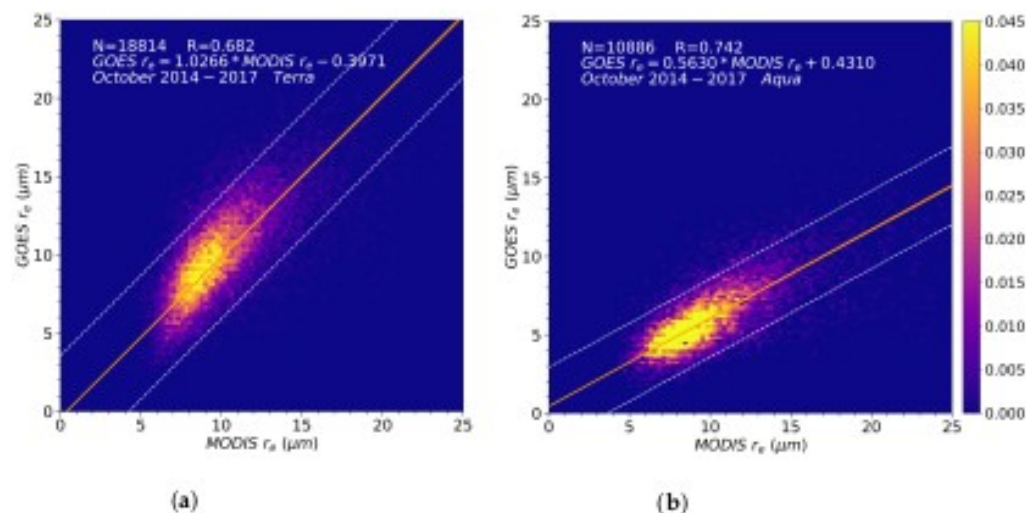
Figure 5c shows East sector matchup and regression results over the land for October 2014–2017. In this sector, there were few matchups for the oceanic surface, which were not statistically significant. Close examination of the bimodal data structure shown in the graph indicated the need to analyze Terra and Aqua matchups separately, as discussed below. Amazon sector results are shown in Figure 5d. In this case the number of water



phase matchups is much smaller than identified ice phase pixels. This is mostly due to the prevalence of strong convective activity in this region when compared to the average conditions in the East and West sectors, which favors the frequent occurrence of deep convective clusters with glaciated cloud tops [36].

### 3.2. GOES-13 $r_c$ Monthly Matchups for MODIS Terra and Aqua

Analyzing East sector  $r_c$  matchups over land for October, separately for MODIS aboard Terra and Aqua, allowed a considerable improvement in the regressions as shown in Figure 6a,b (contrast with Figure 5c). Although the methodology was never intended for a 1:1 comparison with MODIS, Figure 6a shows that a slope slightly above unity and intercept of about  $-0.4 \mu\text{m}$  is a feasible result, even over the land. The correlation coefficient was close to 0.7, with 18,814 observations. However, similar to what occurs over the ocean (Figure 4), land comparisons also show regression parameters that oscillate along the different months of the year. Hence, we interpret the regression in Figure 6a predominantly as the result of a particular set of favorable illumination/viewing conditions, but also due to the average type of clouds observed in October in that region, with less convective activity than in January.



**Figure 6.** East sector water phase matchup histograms for MODIS (a) Terra and (b) Aqua, over the land, for October from 2014 to 2017, and regression results. Dashed lines and colorbar units as in Figure 3.

The October regression against MODIS Aqua in Figure 6b indicated a noticeably smaller slope than Terra. Despite the different overpass times for Terra and Aqua, the MODIS retrievals refer essentially to similar environmental conditions, hence the ranges of MODIS retrieved  $r_c$  for Terra and Aqua are nearly equivalent (projection onto the x-axis in both graphs). Therefore, the conclusion is that the GOES-13  $r_c$  retrievals in Figure 6b must be subject to particular biases that lead to  $r_c$  being underestimated. From the combined analysis with Figure 6a, we propose that this should be related to 3-D illumination/shadowing effects from the geostationary viewpoint, and the particular cloud development stage. Nominally, Aqua overpasses occur at around 1:30 p.m. local time, while for Terra mid-morning overpasses occur at 10:30 a.m. On average, over large areas in continental South America, more convective activity is present close to local noon than by mid-morning, which may contribute to the occurrence of more developed clouds, and therefore be more subject to 3-D shading/illumination effects [25,30].

To assess how the matchups fare against Terra and Aqua overpasses in general, monthly regressions are shown in Table 2 considering each MODIS platform separately. Firstly, analyzing the West sector results over the Pacific, one notices the regressions show consistent similar figures for the correlation coefficients and slopes, for Terra and Aqua,

with tens to hundreds of thousands of observations. Intercepts, however, are distinct for the two platforms, with Terra showing larger absolute values than Aqua for all regressions in this sector.

On the land surface in the East or the Amazon sectors, GOES-13 vs. Terra slopes approach unity while Aqua regressions show, in general, slopes under 0.6, except for July, with a slightly higher slope of about 0.7 in the East sector. This extends the October analysis discussed above for the other months, such that in the East, Terra and Aqua show robustly different regression results.

**Table 2.** Segregated Terra and Aqua MODIS monthly regressions, such that  $GOES-13 r_c = Slope \times MODIS r_c + Intercept$ . N: number of matchups; R: correlation coefficient.

Sector	Surface	Month (2014–2017)	GOES-13 × Terra MODIS				GOES-13 × Aqua MODIS			
			N	R	Slope	Intercept (μm)	N	R	Slope	Intercept (μm)
West	Ocean	January	52,944	0.839	0.717	1.85	18,461	0.894	0.744	0.42
		April	32,147	0.876	0.796	−1.59	11,951	0.889	0.729	−1.51
		July	108,009	0.912	0.871	−2.24	55,634	0.891	0.751	−1.42
		October	93,266	0.778	0.863	−0.84	39,429	0.880	0.776	−0.18
East	Land	January	54,181	0.796	0.965	1.38	20,514	0.802	0.576	1.00
		April	39,680	0.742	0.919	0.69	18,207	0.781	0.549	0.02
		July	32,823	0.791	1.172	−2.82	19,544	0.835	0.706	−1.12
		October	18,814	0.682	1.027	−0.40	10,886	0.742	0.563	0.43
Amazon	Land	January	6040	0.775	0.838	1.97	1841	0.723	0.562	1.81
		April	2144	0.609	0.708	2.47	486	0.598	0.536	1.55
		July	4522	0.759	0.847	−0.14	1764	0.794	0.559	0.70
		October	1410	0.625	0.777	1.97	347	0.626	0.599	1.13

Considering Table 2 as a whole, except for two cases in the East sector, all other slopes are below unity. The implication is that, in general, a better agreement with MODIS retrievals is observed for smaller  $r_c$ , becoming progressively more distant as  $r_c$  increases. The reason for this slope underestimation is still under investigation. Marshak et al. [25] show that subpixel variability induces a reduction in  $r_c$  associated with the gridding process. In our case in particular, the same  $0.2^\circ$  gridding is applied to GOES-13 and MODIS. However, the original data have distinct spatial scales, nominally of 1 km for MODIS [11], and 4 km for GOES-13 retrievals, so this can be a possible explanation for slopes smaller than unity. Enhanced illumination at backscattered viewing angles can also act to reduce  $r_c$  [30], as discussed in Section 3.3, but it is unlikely this effect alone would act predominantly over clouds with larger  $r_c$  to generate smaller slopes. Another possible factor for this would be a positive residual bias in the process of deriving  $\rho_{3,90}$ , such as not accounting for droplet size-dependent effective cloud emissivity [45]. We will continue seeking improvements to the GOES-13 retrieval methodology.

The intercepts in Table 2 seem to show a pattern of a relative maximum in January and a minimum in July, except for the Amazon sector that shows a maximum in April. The pattern is not due to any issues concerning the computation of the Sun–Earth distance in Equation (4), which was double-checked to be accurate. The cyclic pattern, though, suggests a global unaccounted effect acting upon the GOES-13 dataset, due to the prevalent scattering conditions and cloud structures in each regression subset. We examine this issue in more detail in the Discussion section. From the results shown in Table 2, it is clear that, statistically, GOES-13 retrievals are subject to different observational artifact levels over oceanic or continental surfaces, that can be due to different illumination/observation geometries, coupled with physically distinct average cloud types, e.g., stratified cloud decks or vertically developed convective clouds.

### 3.3. Assessing GOES-13 $r_c$ Sensitivity to Illumination and Observation Geometries

Below, we examine the sensitivity of GOES-13  $r_c$  retrievals to geometrical parameters related to the angles of illumination and observation. We compute the relative azimuth angle  $\varphi$ , as a means to quantify the relative amount of illuminated vs. shaded hemispheres directly accessible to the imager sensor on GOES-13. This methodology was adopted previously to analyze MODIS retrievals' dependence on  $\theta_v$  [23].  $\varphi$  is more sensitive in capturing the variations in illumination observed on the surface of clouds than the scattering angle. While the GOES-13 position relative to a point on the surface is fixed over time, the solar illumination undergoes angular variations during the day and seasonal variations throughout the year. Therefore, since the studied areas include pixels from every view direction to the subsatellite point, it is not immediately obvious how to identify the subset of spatial and temporal domains with scattering regimens best suited for  $r_c$  retrievals.

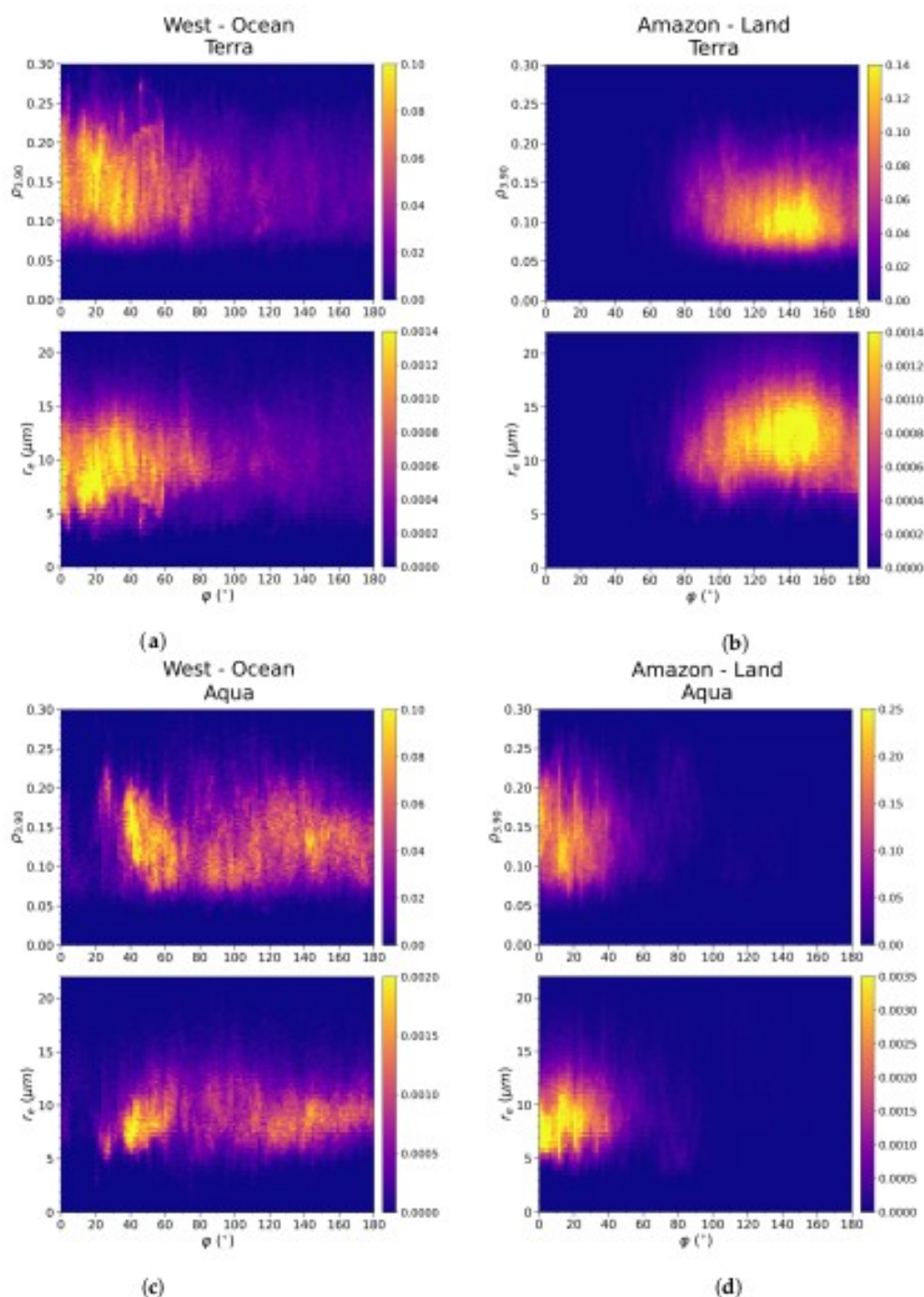
Surface pixels for which  $\varphi > 90^\circ$  correspond to the forward scattering hemisphere and  $\varphi < 90^\circ$  pixels are located in the backscattering hemisphere. In the forward direction, scattering by 3-D cloud structures may cast shadows towards the pixel under analysis, reducing the measured reflectance, therefore inducing an artificial increase in the retrieved  $r_c$  [25,30]. In the backscatter hemisphere the opposite effect can happen, with an increased reflectance signal in the field of view, originating from photons scattered by nearby irregularly shaped 3-D clouds [25,30].

In Figure 7 we analyze the measured  $\rho_{3,90}$  and retrieved GOES-13  $r_c$ , as a function of  $\varphi$  for April 2014–2017, during Terra (Figure 7a,b) and Aqua (Figure 7c,d) overpasses. For the oceanic surface in the West sector (Figure 7a) there are retrievals over the whole  $\varphi$  range, from  $0^\circ$  to  $180^\circ$ , with a predominance of backscattering  $\varphi < 90^\circ$  conditions. This shows that in April, most of the area in the West sector is usually observed by GOES-13 in the backscatter hemisphere at the time Terra flies over the region.  $\rho_{3,90}$  and  $r_c$  do not show noticeable trends with  $\varphi$ , but looking closely one notices these two quantities are somewhat anti-correlated: in sections of Figure 7a where  $\rho_{3,90}$  decreases with  $\varphi$  (e.g., for  $10^\circ < \varphi < 30^\circ$ ), there is an increase in  $r_c$ . In contrast, Figure 7b shows GOES-13  $r_c$  retrievals over the land, in the Amazon sector, during Terra overpasses. In this case, there are much fewer opportunities for sampling the backscatter hemisphere and the retrievals are largely performed under forward scattering  $\varphi > 90^\circ$ . On average, the measured  $\rho_{3,90}$  in Figure 7b is smaller than in Figure 7a, resulting in larger retrieved  $r_c$  for clouds over the Amazon, compared to oceanic clouds. This may make sense statistically since it is possible that, by mid-morning during Terra overpasses, deepening cloud clusters might have larger  $r_c$ , compared to stratiform cloud decks over the Pacific. However, it is not possible to rule out the occurrence of partial shadowing to explain the Figure 7b results, with thousands of measurements spread over four years.

Figure 7c shows West sector GOES-13  $r_c$  retrievals over the Pacific during Aqua overpasses for April 2014–2017. There are observations under forward and backward scattering, with a predominance toward backscattering. A section of  $20^\circ < \varphi < 60^\circ$  corresponds to decreasing  $\rho_{3,90}$  and increasing  $r_c$ , possibly associated with the increased illumination effect that biases the retrievals to smaller  $r_c$ . Figure 7d shows that over the land GOES-13  $r_c$  retrievals during Aqua overpasses have very few observations in the forward scattering hemisphere.  $\rho_{3,90}$  shows a peak in the backscatter  $\varphi \approx 0^\circ$  associated with reduced  $r_c$  that is consistent with the description of the increased illumination effect. Notice that amidst the cases in Figure 7, Figure 7b,c show relatively more retrievals in the forward scattering hemisphere. Figure 7c shows some indication of the shadowing effect for  $\varphi > 160^\circ$ , i.e., a reduction in  $\rho_{3,90}$  accompanied by an increase in the retrieved  $r_c$ .

We note some of the results described in Figure 7 are contingent on the particular conditions that have been observed in our specific dataset. Namely, 3-D scattering or shadowing effects by neighboring clouds or clusters require that particular configuration to be present [25]. However, the relative position between the satellite and the region of interest (i.e., to the east or west of the subsatellite point), the access to a given  $\varphi$  range that determines the scattering regimen, and also the typical range of measured  $\rho_{3,90}$  values are all

key characteristics for the development of a geostationary retrieval algorithm. These need to be taken into account over large spatial domains, either for research concerning GOES-13, or in currently operational applications such as GOES-16 hydrometeor size retrievals.

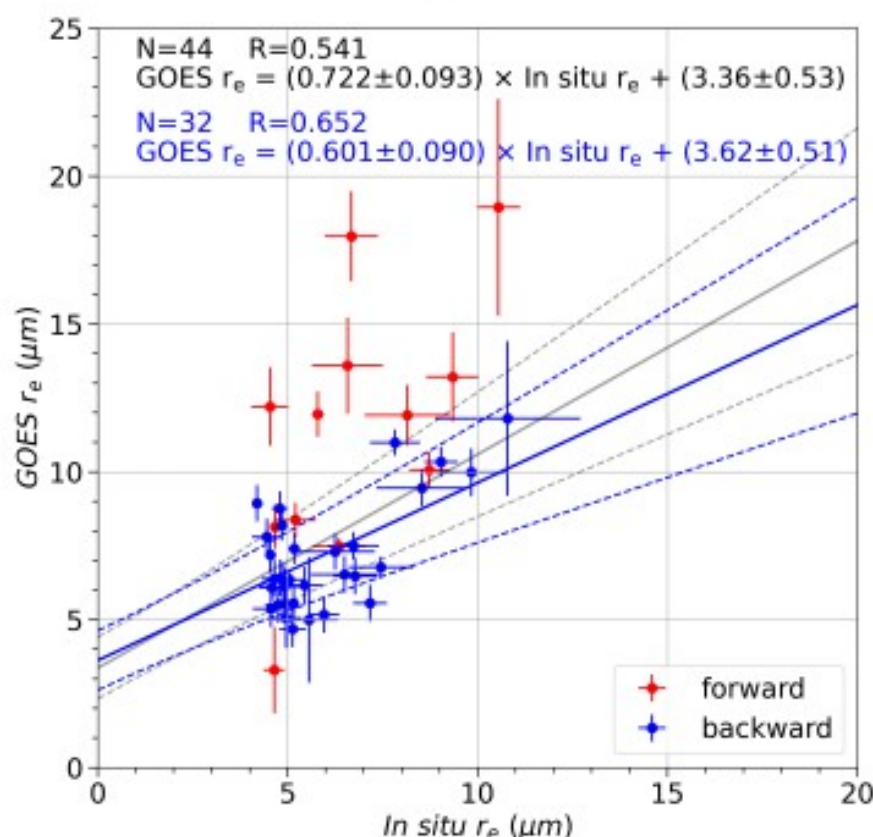


**Figure 7.** GOES-13  $\rho_{3.90}$  measurements and  $r_e$  retrievals for April 2014–2017, as a function of  $\phi$ , for the oceanic surface in the West sector for (a) Terra and (c) Aqua overpass times, and for the land surface over the Amazon sector for (b) Terra and (d) Aqua overpass times. Colorbar units are relative density  $\Delta N/N_{total}/deg$  for  $\rho_{3.90}$  plots, and  $\Delta N/N_{total}/(\mu m deg)$  for  $r_e$  plots.

### 3.4. GOES-13 $r_e$ In Situ Aircraft Matchups During GoAmazon

Although our focus here is on the multi-year seasonality of GOES vs. MODIS comparisons, it is useful to examine how the GOES-13 algorithm fares against in situ measurements during GoAmazon IOP1 [40]. Figure 8 shows the resulting matchup, using the methodology

described in Section 2.4. The data were classified according to  $\varphi$  to highlight distinctions in the forward or backward scattering regimens.



**Figure 8.** Collocated comparison between GOES-13  $r_e$  retrievals and GoAmazon in situ aircraft measurements. Forward ( $\varphi > 90^\circ$ ) and backward ( $\varphi < 90^\circ$ ) scattering retrievals are shown in red and blue, respectively. Full lines show the linear regression models using all (gray) or only backscattering data (blue). Dashed lines indicate the 95% confidence interval for each regression model. Error bars for in situ  $r_e$  are one standard deviation of measurements within 120–130 s time windows. Error bars for GOES  $r_e$  are one standard deviation of retrievals in  $3 \times 3$  pixel boxes.

In general, there is a tendency for GOES retrievals to overestimate in situ measurements, similar to those observed in other studies [14–16]. It is clear that forward scattering conditions correspond to the highest positive biases in the set. The linear regression with the whole dataset results in a positive correlation of about 0.54. The correlation increases to about 0.65 when considering only GOES  $r_e$  retrievals in the backscattering hemisphere. The main reason for the forward scattering  $r_e$  overestimation should be related to 3-D shadow casting effects [25]. Note that backscattering retrievals are also overestimated relative to in situ measurements, i.e., they mostly lie above the 1:1 line. In these cases, shadows are less prevalent but other effects contribute to reducing the measured  $\rho_{3,90}$ , such as contamination of the detected signal by the surface albedo, the pixel coarsening effect [25], and intrinsic LUT nonlinearities [29]. The altitude inside the cloud at which the aircraft measurements were performed is also important since, on average,  $r_e$  is larger closer to cloud tops [15]. Although these results are derived from a limited sample, they provide ground truth equivalence to the algorithm used in this study and clearly show the influence of  $\varphi$  configurations in the final outcome. The illumination and viewing directions are fundamental pieces of information to determine to what level we can expect GOES retrieved  $r_e$  to reproduce direct measurements.

#### 4. Discussion

Previous works have examined the feasibility of  $r_c$  retrievals from a geostationary platform, with different objectives from the ones in this study. In general, these works have used operational products to generate  $r_c$ , which were compared to in situ aircraft measurements or MODIS retrievals, for limited spatial and/or temporal domains. This work addresses the seasonal variability in regression results, over large spatial scales, while using a simple retrieval strategy. With diverging objectives and methodologies, not all the results are directly comparable. However, it is still interesting to contextualize some key findings in previous works.

Over the North Atlantic, Painemal et al. [15] showed GOES-13  $r_c$  retrievals have a positive bias of about  $4.8 \mu\text{m}$  on average compared to in situ aircraft measurements, with a root mean squared error (RMSE) of  $5.8 \mu\text{m}$  and  $R = 0.68$ . Comparisons with in situ measurements like this are operationally very complex and are fundamental to establishing ground truth equivalence. Against MODIS Terra and Aqua these retrievals showed positive biases of  $1.9$  and  $2.0 \mu\text{m}$ ,  $R = 0.84$  and  $R = 0.90$ , respectively. The study area was situated between  $40\text{--}60^\circ \text{N}$ ,  $35\text{--}50^\circ \text{W}$ , with an average  $\theta_v = 65^\circ$ .

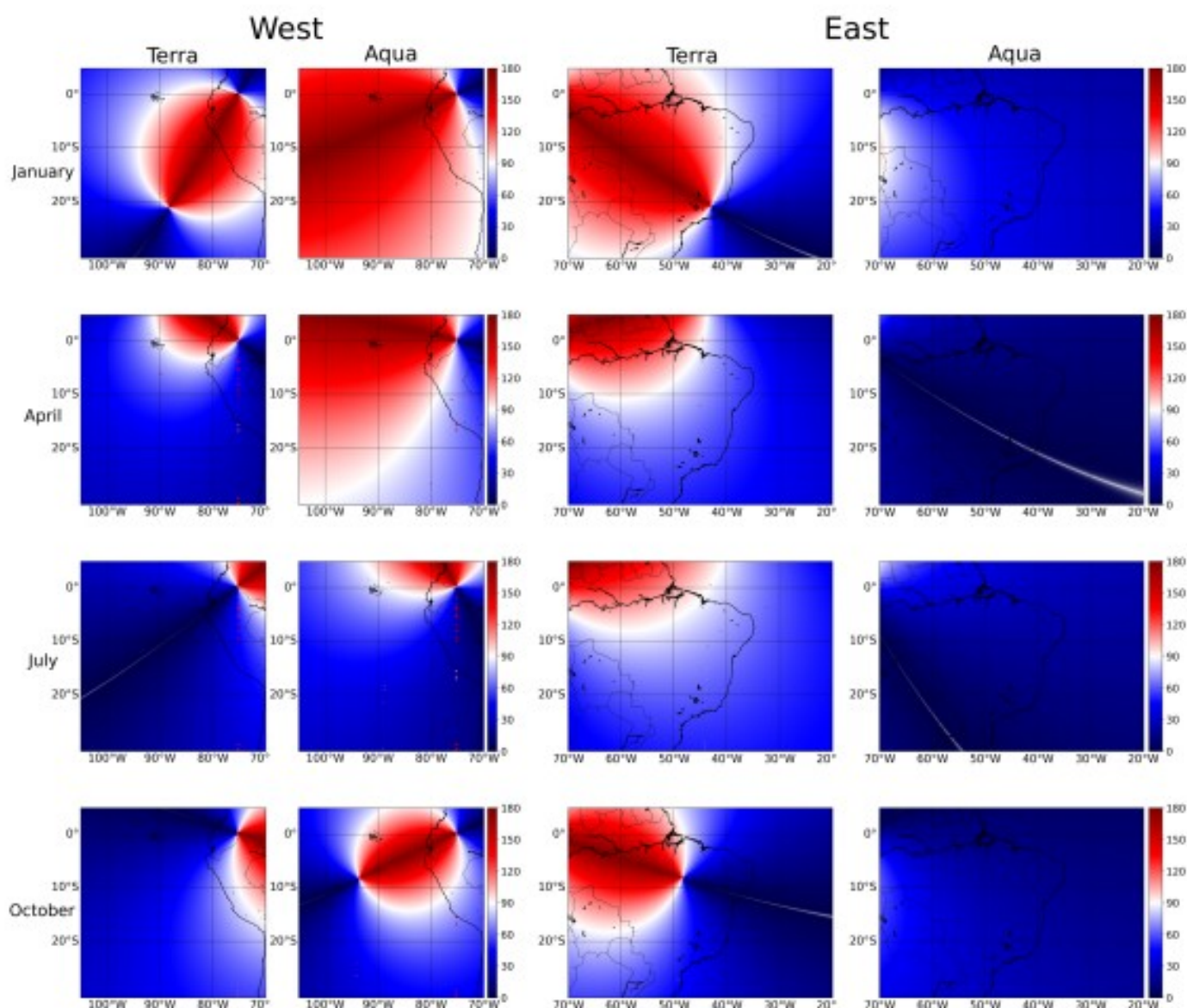
In another study over the Southeast Pacific ( $10\text{--}30^\circ \text{S}$ ,  $65\text{--}90^\circ \text{W}$ ), Painemal et al. [14] showed smaller biases for GOES-10 retrievals, compared to the result over the North Atlantic. Against in situ measurements, the retrieval bias was  $2.4 \mu\text{m}$ , with  $R = 0.91$  and  $\text{RMSE} = 1.15 \mu\text{m}$ . Against Terra and Aqua, retrieval biases (RMSE) were  $1.15 \mu\text{m}$  ( $1.2 \mu\text{m}$ ), and  $0.43 \mu\text{m}$  ( $0.82 \mu\text{m}$ ), respectively.

Kang et al. [16] showed  $r_c$  retrievals for the geostationary Himawari-8 satellite for the south of Australia ( $48\text{--}60^\circ \text{S}$ ,  $138\text{--}162^\circ \text{E}$ ), with a mean positive bias relative to in situ measurements of  $1.88 \mu\text{m}$  and  $R = 0.86$ . The authors also reported strong negative biases in cases of heavy precipitation near the cloud tops.

Chen et al. [46] analyzed imagery from the geostationary Feng Yun 4A (FY-4A) satellite, over eastern China ( $25\text{--}35^\circ \text{N}$ ,  $110\text{--}120^\circ \text{E}$ ), on 30 June 2018, and compared  $r_c$  retrievals with MODIS. Both liquid droplet and ice phase retrievals were performed. The authors found an overall similar  $r_c$  spatial distribution pattern, with relatively good agreement for small particles but discrepancies for large sizes. The differences were attributed to the disparity in spatial resolution and  $\theta_v$  between the two sensors.

Some other studies highlighted difficulties in comparing retrievals with aircraft and surface-derived measurements. Dong et al. [12] analyzed GOES-8 retrievals over the Southern Great Plains site and found essentially no correlation ( $R = 0.18$ ) with in situ aircraft measurements. At the same location, McHardy et al. [13] derived GOES-8, -10, and -11 retrievals, with data from 1998 to 2006, and also found no correlation ( $R = 0.17$ ) with surface measurements. In this latter study, the authors identified a strong dependence of the retrieved  $r_c$  on the solar illumination geometry. They further recognized that it is not possible to probe and study this issue from measurements performed in just one location.

In Figure 8 we show a comparison between GOES-13  $r_c$  retrievals and in situ measurements, for particular GoAmazon conditions. Even with limited statistics, retrievals are markedly dependent on the  $\varphi$  geometry. These will ultimately determine the regression results, which quantify how retrievals are connected to direct measurements. Considering the wide expanse of the three sectors covered in this study, and the orbital illumination changes throughout the year, many different  $\varphi$  configurations are accessible. Figure 9 exemplifies typical  $\varphi$  spatial distribution configurations observed for GOES-13 retrievals during Terra and Aqua overpasses over the East and West sectors, for each of the studied months. Specifically, in Figure 9 we show mid-month days, from the 14th to the 16th, to find convenient GOES-13 imagery examples matching Terra and Aqua overpass times. Some of the examples in the West sector show two foci. One of them corresponds to the GOES-13 subsatellite point on the equatorial line at  $75.2^\circ \text{W}$ , and the other corresponds to the instantaneous subsolar point. In the East sector, only the subsolar point is sometimes apparent.



**Figure 9.** Typical GOES-13  $\varphi$  configurations, in degrees, for the East and West sectors during Terra and Aqua overpass times, for the 14th to 16th day of January, April, July, and October 2014–2017. Forward scattering is shown in red hues, backscattering in blue.

From the  $\varphi$  distributions in Figure 9, it is clear that relative illumination conditions vary greatly over the spatial domain, and at the same time, not all  $\varphi$  ranges may be available for  $r_c$  validation efforts. For instance, to avoid the enhanced illumination effect in the backscatter hemisphere, one may wish to retrieve  $r_c$  under, say,  $100^\circ < \varphi < 170^\circ$  conditions. From Figure 9 we see that Aqua overpasses will rarely have this particular subset of  $\varphi$  conditions to the east of GOES-13, but will have many such opportunities to the west of the sensor. Likewise, for some months, there are more/fewer occasions for retrievals in the forward/backward scattering hemispheres. In July, for instance, when the sun is in the Northern Hemisphere, there are relatively fewer opportunities for forward scattering observations during both Terra and Aqua overpasses.

In the tropics, the regions on the surface closest to the subsatellite point will see large variations in  $\varphi$  with changes in the apparent solar position. These changes correspond to illumination constraints that are unique to geostationary platforms, and which need to be properly accounted for in  $r_c$  retrievals. However, the quality of these retrievals is also subject to the occurrence resolved and unresolved spatial inhomogeneities [25,26].

Interestingly, Werner et al. [27] have shown it is possible to mitigate subpixel variability and partially compensate for their effects on  $r_c$  retrievals. This can be done by applying a framework [29] based on VIS and IR radiance measurements, from two channels with higher spatial resolution than the  $r_c$  product. The authors also show that even using a single higher-resolution band with their methodology can improve  $r_c$  retrievals [27]. This is important for GOES-13 and other legacy geostationary platforms that only counted with one higher-resolution VIS channel. However, note that the framework implicitly assumes unbiased radiance measurements are used, i.e., not influenced by scattering or shadowing from foreign 3-D cloud structures.

Resolved variability of neighboring cloud structures is a challenging concept to address in single real clouds. It is highly contingent on the type of surrounding clouds, their particular spatial configuration and morphology. In trying to tackle this problem statistically, it is possible to quantify a spatial inhomogeneity index  $\chi$ , similar to what has been done before [15,17,23,26]. In one possible definition,  $\chi$  corresponds to the ratio between the standard deviation to the average of a variable, such as  $\rho_{0.63}$  or  $T_B$ .  $\chi$  can thus be a proxy quantifying surface roughness for spatial variations at smaller scales, at the same scale, or at coarser resolutions than  $r_c$ . The more dissimilar the cloud field in the vicinity of a specific pixel, the higher the values  $\chi$  can assume, hence, in general, the higher the potential for the occurrence of 3-D shadowing or enhanced illumination effects.

A possible strategy for future works could begin by seeking to parameterize a function  $f_g(\varphi, \chi)$ , describing the overall combined effect of the geometrical configuration  $\varphi$ , with the potential for 3-D effects  $\chi$  over a given scene. This would be a statistical parameterization in the sense that it does not address individual clouds, but the average signal from a subdomain.  $\varphi$  can be computed for each latitude, longitude, and time coordinate, as exemplified in Figure 9.  $\chi$  needs to be computed for the specific scene under consideration. The measured  $\rho_{3.90}$  can be regressed against a combination of  $\varphi$  and  $\chi$  to derive the effective parameterization function  $f_g(\varphi, \chi)$ . For instance, with careful study over a stratiform scene, neighboring pixels will have similar  $\varphi = \varphi'$  values, but may have different  $\chi$  ranges. At the very homogeneous cloud limit ( $\chi \sim 0$ ), the measured  $\rho_{3.90}$  will respond to  $f_g(\varphi', 0)$  and  $r_c$ . If the surface inhomogeneity increases to  $\chi = \chi'$  over nearby clouds, we can learn how  $f_g(\varphi', \chi')$  affects  $\rho_{3.90}$ . For instance, Horváth et al. [23] have shown how increasing inhomogeneity changes the retrieved  $r_c$  for MODIS. Next, for cloud field sections with similar  $\chi$  one can study how the retrieved  $r_c$  changes with  $\varphi$ . For instance, taking low  $\theta_v$  MODIS retrievals over the Southeast Pacific as an  $r_c$  benchmark, it can be possible to find stratiform cloud sections with similar MODIS  $r_c$  and  $\chi$ , but far apart enough to have distinct  $\varphi$  from the GOES perspective. In such a case, differences in GOES  $r_c$  retrievals could then be attributed to  $\varphi$  variations. The underlying assumption in this type of analysis is that one can find pairs of cloud field sections, with similar microphysical properties, for which only one variable in the  $(\varphi, \chi)$  space changes significantly. In principle,  $f_g(\varphi, \chi)$  could be positive or negative, i.e., it can represent an effective enhanced or diminished reflectance added to  $\rho_{3.90}$ , to represent the average resolved 3-D variability [25] in a given configuration. The magnitude of  $f_g(\varphi, \chi)$  should be small compared to unity, but since  $\rho_{3.90}$  is nonlinearly related to  $r_c$ , the final result on droplet size retrievals can be meaningful. This entire procedure can only make sense if the parameterization is reproducible over time. The periodic regression results shown in Figure 4 indicate that this is possible, i.e., GOES-13  $r_c$  retrievals follow a predictable pattern over months and years, and so it must also be for the  $\rho_{3.90}$  signal from which  $r_c$  is derived. If proven, this hypothetical procedure could help mitigate enhanced illumination/shadowing effects, to prepare the cloud field scene  $\rho_{3.90}$  for applying the aforementioned framework [27,29]. This latter step can further curb cloud subpixel bias due to gridding in  $r_c$  retrievals [25] and due to the covariance between  $\rho_{0.63}$  and  $\rho_{3.90}$  in Nakajima–King diagrams [29]. Other forms of subpixel variability biases, such as horizontal photon transport [17] or precipitation biases [16,26], remain unaddressed.



## 5. Conclusions

Studying cloud microphysics from geostationary platforms has been hampered by artifacts at subpixel and pixel levels [14,25,28] and geometrical difficulties [13]. We have examined how GOES-13  $r_c$  retrievals, for warm-phase clouds, fare against the reference MODIS cloud product, over large areas in continental South America and the Southeast Pacific Ocean. The retrievals were based on a 1-D LUT developed to simulate radiance measurements at the 3.90  $\mu\text{m}$  channel in GOES-13. Despite this simplified approach, we found our results were highly correlated with operational MODIS retrievals, with  $R$  between about 0.60 for Aqua and 0.91 for Terra. It is remarkable that over the vast spatial domains analyzed here, combining data from 2014 to 2017, this kind of coherence was observed between MODIS and GOES datasets, with sometimes more than 100,000 matching cloud retrievals (cf. July results for Terra in Table 2).

Over the ocean, there is, in general, a better agreement between GOES and Terra or Aqua, than over the land. The different regression slopes shown in Table 2 indicate that the location of clouds relative to the satellite sensor (i.e., to the east or west of the subsatellite point) and the time of the day the imagery is acquired are critical for the retrievals. The reason for this is twofold. First, cloud formation and development are distinct in both regions, hence the vertical cloud structure will be physically different. These different cloud types have varying degrees of spatial inhomogeneities due to their evolving 3-D structures. Second, the geometrical configuration of illumination and viewing angles are distinct for the two regions, both throughout the day and seasonally. These two factors combined are fundamental in defining the  $\rho_{3.90}$  signal from which  $r_c$  is directly derived.

We found that GOES vs. MODIS regressions showed a clear seasonal pattern. Regression slopes, intercepts, and  $R$  values varied between the ranges shown in Table 2, and exemplified in Figure 4, indicating these retrieval results are reproducible over time. Even though the analyses were performed with varying atmospheric conditions, cloud types, and cloud frequency distributions, the regressions did converge statistically, which allowed combining data from the same months in different years to derive these results.

Evidence for  $r_c$  overestimation against in situ measurements is shown in Figure 8, associated with forward scattering conditions. On the other hand, an average  $r_c$  underestimation effect, correlated with enhanced  $\rho_{3.90}$  in the backscatter hemisphere [25], was exemplified in Figure 7. However, this phenomenon did not always peak at  $\varphi = 0^\circ$ , as shown in Figure 7c. This further highlights how intricate the relationship between illumination/viewing angles and the occurrence of 3-D cloud structures can be, and how they combine to define the retrieved  $r_c$ .

There are limitations to the illumination/viewing  $\varphi$  configurations that can be accessed by GOES-13, as exemplified in Figure 7. Depending on the time of day and season, there will be more or fewer opportunities to sample each scattering hemisphere, for regions to the east or west of the sensor. To define a future retrieval strategy,  $\varphi$  can be calculated for any given latitude, longitude, time, and day of the year, to predefine a particular scattering regimen of interest. For the sake of geostationary  $r_c$  validation efforts, which usually rely on MODIS products, Figure 9 shows typical  $\varphi$  scattering conditions available throughout the year, at Terra and Aqua overpass times.

We speculate that partial mitigation of pixel-level 3-D illumination/shading effects can be pursued by combining the geometrical information provided by  $\varphi$  and the inhomogeneity proxy index  $\chi$ . This would be a statistical approach to parameterize an average 3-D related effect over subdomains with specific cloud configurations. For instance, Figure 7a,b have different average  $\rho_{3.90}$  in April, both measured at Terra overpass times. From Figure 9 we see that April Terra scattering over the ocean is mostly in the backscatter hemisphere, while the Amazon is typically in the forward scattering regimen. Under the hypothetical procedure we discussed in this work, part of the average  $\rho_{3.90}$  signal in a small subdomain over the ocean (Figure 7a) could, for instance, be quantified as excess illumination in the backscattering due to contributions of nearby clouds. In this case,  $\rho_{3.90}$  could be corrected to yield larger  $r_c$  retrievals. Similarly, in a subdomain in the Amazon sector, the average

$\rho_{3.90}$  (Figure 7b) could be linked to partial shadowing effects since scattering is mostly in the forward hemisphere. In that case, the corrected  $\rho_{3.90}$  could yield smaller  $r_c$  retrievals. One potential outcome of using this approach could be smaller yearly variations for the intercepts in Table 2. Terra intercepts vary from about  $-2.8$  to  $2.4 \mu\text{m}$  across different sectors, and such oscillations would be altered if the average  $\rho_{3.90}$  signal changes, after implementing the corrections predicted by this procedure.

The complexities of retrieving  $r_c$  from geostationary platforms are well known [12,13]. We have discussed new insights from a simple retrieval scheme, and its application over a broad spatial domain, with surprisingly periodic results over four years. The conclusions drawn here are also possibly applicable to other platforms seeking to derive cloud microphysical properties over large geostationary footprints, such as GOES-16, Himawari-8, or FY-4A products.

**Author Contributions:** A.L.C. initiated the study, analyzed and interpreted the data, and wrote the paper. M.M.M. analyzed and interpreted the data, and modeled the simulation LUT used in the study. T.F.N. and A.C.P. analyzed and interpreted the data, and contributed to the writing. M.A.C. curated, analyzed, interpreted the aircraft data, and contributed to the writing. All authors have read and agreed to the published version of the manuscript.

**Funding:** This research received no external funding.

**Data Availability Statement:** Publicly available datasets were analyzed in this study. These data can be found at NASA: <https://atmosphere-imager.gsfc.nasa.gov/products/cloud>, accessed on 10 November 2021 12:00 UTC, and NOAA: <https://www.avl.class.noaa.gov/saa/products/welcome>, accessed on 10 November 2021 12:00 UTC.

**Acknowledgments:** We thank NOAA GOES and NASA MODIS teams for the datasets used in this study. A.L.C. thanks the Brazilian National Council for Scientific and Technological Development (CNPq) for research grant 421870/2018-4. A.L.C. and M.A.C. thank the Sao Paulo Research Foundation (FAPESP) for research grants SeReNA 2010/15959-3 and 2020/13273-9.

**Conflicts of Interest:** The authors declare no conflict of interest.

## References

1. Nakajima, T.; King, M.D. Determination of the Optical Thickness and Effective Particle Radius of Clouds from Reflected Solar Radiation Measurements. Part I: Theory. *J. Atmos. Sci.* **1990**, *47*, 1878–1893. [CrossRef]
2. Twomey, S. The Influence of Pollution on the Shortwave Albedo of Clouds. *J. Atmos. Sci.* **1977**, *34*, 1149–1152. [CrossRef]
3. Albrecht, B.A. Aerosols, Cloud Microphysics, and Fractional Cloudiness. *Science* **1989**, *245*, 1227–1230. [CrossRef] [PubMed]
4. Rosenfeld, D. TRMM observed first direct evidence of smoke from forest fires inhibiting rainfall. *Geophys. Res. Lett.* **1999**, *26*, 3105–3108. [CrossRef]
5. Wang, H.; Dai, T.; Zhao, M.; Goto, D.; Bao, Q.; Takemura, T.; Nakajima, T.; Shi, G. Aerosol Effective Radiative Forcing in the Online Aerosol Coupled CAS-FGOALS-f3-L Climate Model. *Atmosphere* **2020**, *11*, 1115. [CrossRef]
6. Forster, P.; Storelvmo, T.; Armour, K.; Collins, W.; Dufresne, J.L.; Frame, D.; Lunt, D.; Mauritsen, T.; Palmer, M.; Watanabe, M.; et al. Chapter 7: The Earth's energy budget, climate feedbacks, and climate sensitivity. In *Climate Change 2021: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*; Open Access Victoria University of Wellington: Wellington, New Zealand, 2021. [CrossRef]
7. Feingold, G.; Eberhard, W.L.; Veron, D.E.; Pievidi, M. First measurements of the Twomey indirect effect using ground-based remote sensors: Surface remote sensing of the indirect effect. *Geophys. Res. Lett.* **2003**, *30*. [CrossRef]
8. Zheng, X.; Xi, B.; Dong, X.; Logan, T.; Wang, Y.; Wu, P. Investigation of aerosol–cloud interactions under different absorptive aerosol regimes using Atmospheric Radiation Measurement (ARM) southern Great Plains (SGP) ground-based measurements. *Atmos. Chem. Phys.* **2020**, *20*, 3483–3501. [CrossRef]
9. Sena, E.T.; McComiskey, A.; Feingold, G. A long-term study of aerosol–cloud interactions and their radiative effect at the Southern Great Plains using ground-based measurements. *Atmos. Chem. Phys.* **2016**, *16*, 11301–11318. [CrossRef]
10. Hansen, J.E.; Travis, L.D. Light scattering in planetary atmospheres. *Space Sci. Rev.* **1974**, *16*, 527–610. [CrossRef]
11. Platnick, S.; Meyer, K.G.; King, M.D.; Wind, G.; Amarasinghe, N.; Marchant, B.; Arnold, G.T.; Zhang, Z.; Hubanks, P.A.; Holz, R.E.; et al. The MODIS Cloud Optical and Microphysical Products: Collection 6 Updates and Examples From Terra and Aqua. *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.* **2017**, *55*, 502–525. [CrossRef]
12. Dong, X.; Mace, G.G.; Minnis, P.; Smith, W.L.; Poellot, M.; Marchand, R.T.; Rapp, A.D. Comparison of Stratus Cloud Properties Deduced from Surface, GOES, and Aircraft Data during the March 2000 ARM Cloud IOP. *J. Atmos. Sci.* **2002**, *59*, 3265–3284. [CrossRef]

13. McHardy, T.M.; Dong, X.; Xi, B.; Thieman, M.M.; Minnis, P.; Palikonda, R. Comparison of Daytime Low-Level Cloud Properties Derived From GOES and ARM SGP Measurements. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2018**, *123*, 8221–8237. [[CrossRef](#)]
14. Painemal, D.; Minnis, P.; Ayers, J.K.; O'Neill, L. GOES-10 microphysical retrievals in marine warm clouds: Multi-instrument validation and daytime cycle over the southeast Pacific: Marine clouds microphysics from GOES-10. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2012**, *117*, 19212. [[CrossRef](#)]
15. Painemal, D.; Spangenberg, D.; Smith, W.L., Jr.; Minnis, P.; Cairns, B.; Moore, R.H.; Crosbie, E.; Robinson, C.; Thornhill, K.L.; Winstead, E.L.; et al. Evaluation of satellite retrievals of liquid clouds from the GOES-13 imager and MODIS over the midlatitude North Atlantic during the NAAMES campaign. *Atmos. Meas. Tech.* **2021**, *14*, 6633–6646. [[CrossRef](#)]
16. Kang, L.; Marchand, R.; Smith, W. Evaluation of MODIS and Himawari-8 Low Clouds Retrievals Over the Southern Ocean With In Situ Measurements From the SOCRATES Campaign. *Earth Space Sci.* **2021**, *8*, e01397. [[CrossRef](#)]
17. King, N.J.; Bower, K.N.; Crosier, J.; Crawford, I. Evaluating MODIS cloud retrievals with in situ observations from VOCALS-REx. *Atmos. Chem. Phys.* **2013**, *13*, 191–209. [[CrossRef](#)]
18. Painemal, D.; Zuidema, P. Assessment of MODIS cloud effective radius and optical thickness retrievals over the Southeast Pacific with VOCALS-REx in situ measurements: MODIS VALIDATION DURING VOCALS-REx. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2011**, *116*. [[CrossRef](#)]
19. Noble, S.R.; Hudson, J.G. MODIS comparisons with northeastern Pacific in situ stratocumulus microphysics. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2015**, *120*, 8332–8344. [[CrossRef](#)]
20. Zhang, Z.; Dong, X.; Xi, B.; Song, H.; Ma, P.; Ghan, S.J.; Platnick, S.; Minnis, P. Intercomparisons of marine boundary layer cloud properties from the ARM CAP-MBL campaign and two MODIS cloud products. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2017**, *122*, 2351–2365. [[CrossRef](#)]
21. Benas, N.; Meirink, J.F.; Stengel, M.; Stammes, P. Sensitivity of liquid cloud optical thickness and effective radius retrievals to cloud bow and glory conditions using two SEVIRI imagers. *Atmos. Meas. Tech.* **2019**, *12*, 2863–2879. [[CrossRef](#)]
22. Grosvenor, D.P.; Wood, R. The effect of solar zenith angle on MODIS cloud optical and microphysical retrievals within marine liquid water clouds. *Atmos. Chem. Phys.* **2014**, *14*, 7291–7321. [[CrossRef](#)]
23. Horváth, Á.; Seethala, C.; Deneke, H. View angle dependence of MODIS liquid water path retrievals in warm oceanic clouds. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2014**, *119*, 8304–8328. [[CrossRef](#)]
24. Liang, L.; Di Girolamo, L.; Sun, W. Bias in MODIS cloud drop effective radius for oceanic water clouds as deduced from optical thickness variability across scattering angles. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2015**, *120*, 7661–7681. [[CrossRef](#)]
25. Marshak, A.; Platnick, S.; Várnai, T.; Wen, G.; Cahalan, R.F. Impact of three-dimensional radiative effects on satellite retrievals of cloud droplet sizes. *J. Geophys. Res.* **2006**, *111*, D09207. [[CrossRef](#)]
26. Zhang, Z.; Ackerman, A.S.; Feingold, G.; Platnick, S.; Pincus, R.; Xue, H. Effects of cloud horizontal inhomogeneity and drizzle on remote sensing of cloud droplet effective radius: Case studies based on large-eddy simulations: Heterogeneity and drizzle effect on effective radius retrieval. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2012**, *117*, 19208. [[CrossRef](#)]
27. Werner, F.; Zhang, Z.; Wind, G.; Miller, D.J.; Platnick, S. Quantifying the Impacts of Subpixel Reflectance Variability on Cloud Optical Thickness and Effective Radius Retrievals Based On High-Resolution ASTER Observations. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2018**, *123*, 4239–4258. [[CrossRef](#)]
28. Kato, S.; Hinkelman, L.M.; Cheng, A. Estimate of satellite-derived cloud optical thickness and effective radius errors and their effect on computed domain-averaged irradiances. *J. Geophys. Res.* **2006**, *111*, D17201. [[CrossRef](#)]
29. Zhang, Z.; Werner, F.; Cho, H.M.; Wind, G.; Platnick, S.; Ackerman, A.S.; Di Girolamo, L.; Marshak, A.; Meyer, K. A framework based on 2-D Taylor expansion for quantifying the impacts of subpixel reflectance variance and covariance on cloud optical thickness and effective radius retrievals based on the bispectral method: Subpixel impact on retrievals. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2016**, *121*, 7007–7025. [[CrossRef](#)]
30. Vant-Hull, B.; Marshak, A.; Remer, L.A.; Li, Z. The Effects of Scattering Angle and Cumulus Cloud Geometry on Satellite Retrievals of Cloud Droplet Effective Radius. *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.* **2007**, *45*, 1039–1045. [[CrossRef](#)]
31. Platnick, S. Vertical photon transport in cloud remote sensing problems. *J. Geophys. Res. Atmos.* **2000**, *105*, 22919–22935. [[CrossRef](#)]
32. Weinreb, M.; Jamieson, M.; Fulton, N.; Chen, Y.; Johnson, J.X.; Bremer, J.; Smith, C.; Baucom, J. Operational calibration of Geostationary Operational Environmental Satellite-8 and -9 imagers and sounders. *Appl. Opt.* **1997**, *36*, 6895. [[CrossRef](#)] [[PubMed](#)]
33. Kaufman, Y.J.; Nakajima, T. Effect of Amazon Smoke on Cloud Microphysics and Albedo-Analysis from Satellite Imagery. *J. Appl. Meteorol.* **1993**, *32*, 729–744. [[CrossRef](#)]
34. Platnick, S.; Fontenla, J.M. Model Calculations of Solar Spectral Irradiance in the 3.7- $\mu$ m Band for Earth Remote Sensing Applications. *J. Appl. Meteorol. Climatol.* **2008**, *47*, 124–134. [[CrossRef](#)]
35. Emde, C.; Buras-Schnell, R.; Kylling, A.; Mayer, B.; Gasteiger, J.; Hamann, U.; Kylling, J.; Richter, B.; Pause, C.; Dowling, T.; et al. The libRadtran software package for radiative transfer calculations (version 2.0.1). *Geosci. Model Dev.* **2016**, *9*, 1647–1672. [[CrossRef](#)]
36. Correia, A.L.; Sena, E.T.; Silva Dias, M.A.F.; Koren, I. Preconditioning, aerosols, and radiation control the temperature of glaciation in Amazonian clouds. *Commun. Earth Environ.* **2021**, *2*, 168. [[CrossRef](#)]
37. Mendonça, M.M. Estudo de Propriedades de Nuvens no Contexto de Sensoriamento Remoto com satélites Usando códigos de Transferência Radiativa. Mestrado em Física, Universidade de São Paulo, São Paulo, Brazil, 2017. [[CrossRef](#)]

38. Baum, B.A.; Yang, P.; Heymsfield, A.J.; Platnick, S.; King, M.D.; Hu, Y.X.; Bedka, S.T. Bulk Scattering Properties for the Remote Sensing of Ice Clouds. Part II: Narrowband Models. *J. Appl. Meteorol.* **2005**, *44*, 1896–1911. [[CrossRef](#)]
39. Maddux, B.C.; Ackerman, S.A.; Platnick, S. Viewing Geometry Dependencies in MODIS Cloud Products. *J. Atmos. Ocean. Technol.* **2010**, *27*, 1519–1528. [[CrossRef](#)]
40. Martin, S.T.; Artaxo, P.; Machado, L.A.T.; Manzi, A.O.; Souza, R.A.F.; Schumacher, C.; Wang, J.; Andreae, M.O.; Barbosa, H.M.J.; Fan, J.; et al. Introduction: Observations and Modeling of the Green Ocean Amazon (GoAmazon2014/5). *Atmos. Chem. Phys.* **2016**, *16*, 4785–4797. [[CrossRef](#)]
41. Machado, L.A.T.; Caheiros, A.J.P.; Biscaro, T.; Giangrande, S.; Silva Dias, M.A.F.; Cecchini, M.A.; Albrecht, R.; Andreae, M.O.; Araujo, W.F.; Artaxo, P.; et al. Overview: Precipitation characteristics and sensitivities to environmental conditions during GoAmazon2014/5 and ACRIDICON-CHUVA. *Atmos. Chem. Phys.* **2018**, *18*, 6461–6482. [[CrossRef](#)]
42. Schmid, B.; Tomlinson, J.M.; Hubbe, J.M.; Comstock, J.M.; Mei, F.; Chand, D.; Pekour, M.S.; Kluzek, C.D.; Andrews, E.; Biraud, S.C.; et al. The DOE ARM Aerial Facility. *Bull. Am. Meteorol. Soc.* **2014**, *95*, 723–742. [[CrossRef](#)]
43. Cecchini, M.A.; Machado, L.A.T.; Comstock, J.M.; Mei, F.; Wang, J.; Fan, J.; Tomlinson, J.M.; Schmid, B.; Albrecht, R.; Martin, S.T.; et al. Impacts of the Manaus pollution plume on the microphysical properties of Amazonian warm-phase clouds in the wet season. *Atmos. Chem. Phys.* **2016**, *16*, 7029–7041. [[CrossRef](#)]
44. Beswick, K.M.; Gallagher, M.W.; Webb, A.R.; Norton, E.G.; Perry, F. Application of the Aventech AIMMS20AQ airborne probe for turbulence measurements during the Convective Storm Initiation Project. *Atmos. Chem. Phys.* **2008**, *8*, 5449–5463. [[CrossRef](#)]
45. Platnick, S.; Valero, F.P.J. A Validation of a Satellite Cloud Retrieval during ASTEX. *J. Atmos. Sci.* **1995**, *52*, 2985–3001. [[CrossRef](#)]
46. Chen, Y.; Chen, G.; Cui, C.; Zhang, A.; Wan, R.; Zhou, S.; Wang, D.; Fu, Y. Retrieval of the vertical evolution of the cloud effective radius from the Chinese FY-4 (Feng Yun 4) next-generation geostationary satellites. *Atmos. Chem. Phys.* **2020**, *20*, 1131–1145. [[CrossRef](#)]