

LFA - Journal Club

Discussão do artigo: *Multi-year statistical and modelling analysis of submicrometer aerosol number size distributions at a rain forest site in Amazonia*

Marco Aurélio de Menezes Franco¹

¹Departamento de Física Aplicada
Universidade de São Paulo
marco.franco@usp.br

2 de maio de 2018

Multi-year statistical and modelling analysis of submicrometer aerosol number size distributions at a rain forest site in Amazonia

Luciana Varanda Rizzo¹, Pontus Roldin², Joel Brito^{3,a}, John Backman^{4,b}, Erik Swietlicki², Radovan Krejci⁵, Peter Tunved⁵, Tukka Petäjä⁴, Markku Kulmala⁴, and Paulo Artaxo³

¹Departamento de Ciências Ambientais, Universidade Federal de São Paulo, Diadema, Brazil

²Physics Institute, Lund University, Lund, Sweden

³Instituto de Física, Universidade de São Paulo, São Paulo, Brazil

⁴Department of Physics, University of Helsinki, Helsinki, Finland

⁵Department of Environmental Science and Analytical Chemistry (ACES), Stockholm University, Stockholm, Sweden

^anow at: Laboratory for Meteorological Physics, Université Clermont Auvergne, Clermont-Ferrand, France

^bnow at: Finnish Meteorological Institute, Atmospheric Composition Research, Helsinki, Finland

Review status

This discussion paper is a preprint. It is a manuscript under review for the journal Atmospheric Chemistry and Physics (ACP).

Received: 19 Jan 2018 – Accepted for review: 30 Jan 2018 – Discussion started: 31 Jan 2018

Sumário

- 1 Motivação
- 2 Desenvolvimento do estudo
 - Medidas da distribuição de tamanho das partículas
 - Cluster analysis
 - Modelagem das variabilidades sazonal e diurna
- 3 Resultados
 - Variabilidade sazonal de partículas submicrométricas
 - Variabilidade diurna de partículas submicrométricas
 - Cluster analysis
 - Formação de novas partículas
- 4 Conclusão

Motivação

- A Amazônia é uma das poucas regiões continentais em que a concentração de partículas na época das chuvas atinge o limite de 300-500 partículas/cm³;
- Mesmo regiões preservadas da floresta podem ser sazonalmente impactadas por emissões antropogênicas resultantes da urbanização, desmatamento, queimadas e transportes de longa distância;
- Intensa atividade convectiva na região é importante fonte de aerossóis para a atmosfera em escala global;
- Necessidade de entender a interação biosfera-atmosfera: tamanho e quantidade de partículas são parâmetros importantes → interação com componentes de radiação direta e difusa (absorção e espalhamento) e núcleo de formação de núvens (CCN);
- Distribuição de tamanho das partículas permite investigar como sua população é afetada por processos dinâmicos, como emissões primárias, transporte, formação de novas partículas, coagulação etc;

Motivação

- Carbono orgânico representa 60-70% da massa total das partículas na moda fina ($D_p < 2,5\mu m$);
- Aerossóis orgânicos secundários (SOA) são componente principal da moda fina, em que seu processo de formação de novas partículas (NPF) é uma importante fonte de CCN;
- estudo focado no espectro submicrométrico das partículas (10 - 600 nm) no período entre 2008-2010 e 2012-2014 - total de 749 dias de observações;

Sítio

- Reserva florestal de Cuieiras (TT34): região cercada por mata virgem com exceção da direção SE, em que Manaus encontra-se a ≈ 60 Km;
- Não houve queimadas no sítio durante o período das observações. O sítio foi influenciado por queimadas de biomassa e poluição de Manaus que chegaram ao local exclusivamente através do vento;
- Medidas de aerossóis tomadas 10m acima da copa das árvores (39m acima da superfície);
- Estação chuvosa: Janeiro - Junho; estação seca: julho - dezembro;
- Estrutura da camada limite (BL): camada limite convectiva (CBL), camada noturna estável (NL) e camada residual (RL);

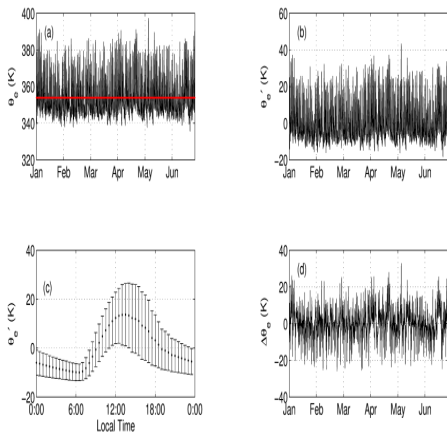


Figura 1: Ilustração do procedimento para obtenção da série temporal $\Delta\theta_e$.

Proxy para ocorrência de *down-drafts*:

a) θ_e é a temperatura potencial da superfície; b) Subtrai-se a média de temperatura de cada estação do ano de θ_e para determinar θ'_e ; c) média de temperaturas do ciclo diurno; d) $\Delta\theta_e$ é obtido a partir da subtração de θ'_e da média diurna de temperatura. Se $\Delta\theta_e < 0 \rightarrow$ indicativo da ocorrência de *down-drafts*.

Medidas da distribuição de tamanho das partículas

- Fevereiro de 2008 - julho de 2010: Lund SMPS, 5 minutos de resolução e tamanhos de partícula entre 10 e 600 nm; outubro de 2008 e julho de 2010: TSI SMPS, 5 minutos de resolução e tamanhos de partícula entre 10 e 500 nm;
- Equivalência de medidas: concentração de partículas (slope = 0.89, $R^2 = 0.97$) e diâmetro geométrico médio (slope = 0.85, $R^2 = 0.86$);
- Nov. - Dezembro de 2012 e 2014: DMPS operado com um CPC, resolução de 10 minutos e tamanhos de partícula entre 6 e 800 nm.
- Temperatura ambiente e pressão foram utilizadas para ajustes da concentração de partículas, tomando como grandezas constantes $T = 293,15\text{K}$ e $P = 1013,25\text{hPa}$;
- 2,4% do total de espectros obtidos estavam contaminados pela pluma de poluição do gerador de energia, os quais foram removidos das análises;

Distribuição de tamanho das partículas

Distribuição de tamanho das partículas fitada com distribuição log-normal:

$$f(D_p, D_{pg_i}, N_i, \sigma_i) = \sum_{i=1}^n \frac{N_i}{\sqrt{2\pi} \log(\sigma_i)} \exp\left(-\frac{[\log(D_p) - \log(d_i)]^2}{2 \log^2(\sigma_i)}\right), \quad (1)$$

onde D_p é o diâmetro da partícula, n é o número de modas, N_i é a concentração de partículas na i -ésima moda, d_i é o diâmetro geométrico médio e σ_i é o desvio-padrão geométrico da i -ésima moda.

Cluster analysis

Método útil para obtenção de agrupamentos de dados com características em comum. Método *k-means* foi aplicado para agrupar conjuntos de partículas com características similares e para obtenção de relações com variáveis como tempo de ocorrência, sazonalidade, direção local do vento e coeficiente de absorção das partículas. O estudo escolheu trabalhar com 7 conjuntos: decisão baseada na competição entre alto índice de Dunn e maior representatividade das formas das partículas.

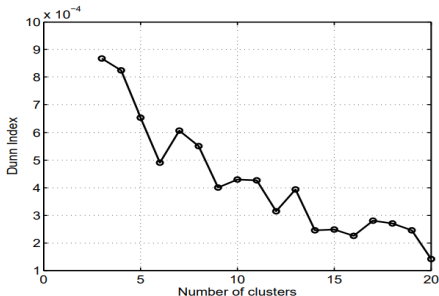


Figura 2: Índice de Dunn em função do número de clusters. Índice definido como a razão entre a menor distância inter-cluster e máxima distância inter-cluster.

Modelagem das variabilidades sazonal e diurna

- Modelo empregado para entender a dinâmica das partículas com relação a processos de coagulação, condensação, deposição úmida, emissão de partículas primárias pela superfície, transportes de partículas por correntes de ar na camada limite convectiva e transporte de novas partículas da troposfera livre para a CBL.
- Desenvolvimento de modelo 1D por colunas: a baixa atmosfera é dividida em 50 camadas verticais com 50m de espessura que se estende desde a superfície até 2500m.
- Dados de entrada: dados meteorológicos entre 2008 e 2009 com médias de ciclos diurnos da altura da BL, fluxos de calor sensível, temperatura, velocidade do vento etc.

Modelagem das variabilidades sazonal e diurna

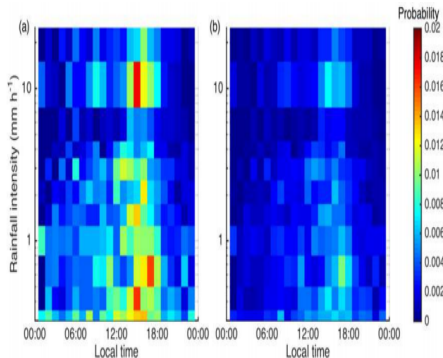


Figura 3: Probabilidade de chuva em diferentes horários do dia para as estações chuvosa (à esquerda) e seca (à direita) na torre K34.

Probabilidade de chuva agrupada em 13 bins representando a intensidade de chuva entre $0,1$ e 30mmh^{-1} . Efeitos de *below cloud scavenging* modelados em cada j -ésimo bin como:

$$N_{j,t} = N_{j,t-\Delta t} \sum_{i=1}^{13} e^{-\beta_{i,j} f_i \Delta t} \quad (2)$$

N é a concentração de partículas em diferentes tempos, β é um coeficiente que representa a taxa de deposição de partículas, f é a probabilidade de chuva.

Modelagem das variabilidades sazonal e diurna

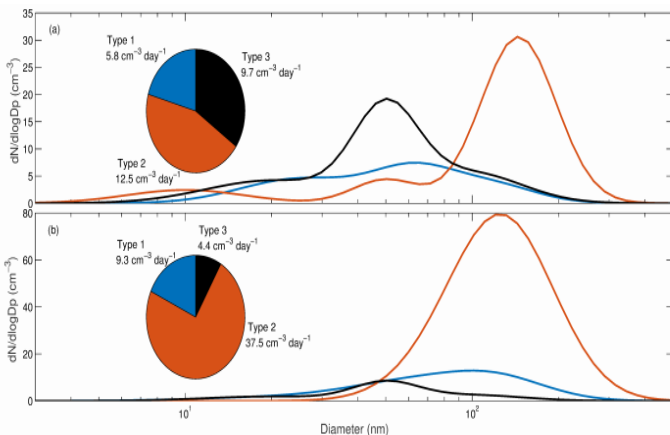


Figure S6. Modeled daily effective particle number size distribution emission contribution of the different particle source types to the lowermost 1000 m of the atmosphere. Type 1 refers to a local source of particles emitted at the surface; Type 2 to a source of particles that entrain into the BL during the morning; and Type 3 to a source of particles from convective downdrafts. The pie charts show the absolute total particle number concentration contributions of each particle source type. Panel (a) represents the wet season and panel (b) the dry season.

Transporte descendente de partículas da troposfera livre para a camada limite:

$$\frac{dN_j}{dt} = \lambda f(N_{dwnd,j} - N_j) \quad (3)$$

Modelo simula a evolução da distribuição diurna de tamanho das partículas durante 10 dias consecutivos, com condições meteorológicas e fontes de partículas idênticas até atingir um estado estacionário que é assumido estar livre das condições iniciais de simulação ou de variabilidade entre dias consecutivos.

Parâmetros modelados foram determinados para reproduzir médias diurnas da distribuição de tamanho das partículas.

Variabilidade sazonal de partículas submicrométricas

Resultado das concentrações de partículas nos períodos chuvoso e seco estão de acordo com resultados obtidos em outros estudos, especialmente com relação a dados do sítio ZF2.

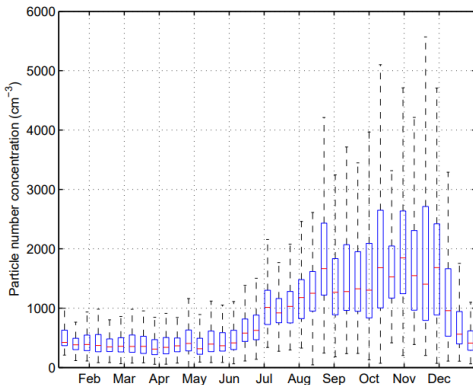


Figura 4: Ciclo anual da concentração de partículas entre 2008 e 2014, mostrando a variabilidade sazonal. A estatística foi obtida para uma janela de 10 dias.

Variabilidade sazonal de partículas submicrométricas

Distribuição de partículas nas estações seca e chuvosa na Amazônia. No período chuvoso nota-se a presença de duas modas, sendo elas a de Aitken (30 - 100 nm) e de acumulação (100 - 600 nm), enquanto que na estação seca há apenas a presença de partículas da moda de acumulação. Mínimo de Hoppel e pouca contribuição da moda de nucleação ($D_p < 30\text{nm}$) indicam que fontes de aerossóis acima da BL são relevantes.

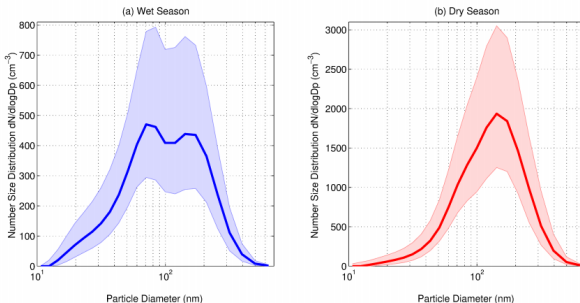


Figura 5: Distribuição de tamanho das partículas nas estações chuvosa e seca na Amazônia.

Variabilidade diurna de partículas submicrométricas

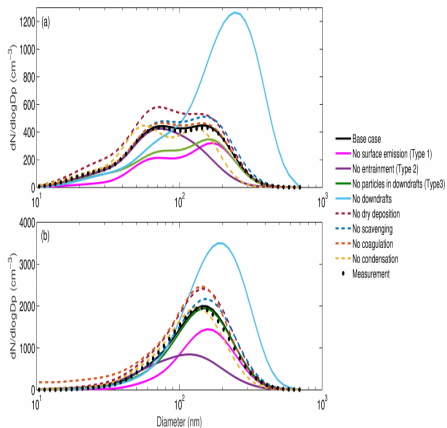
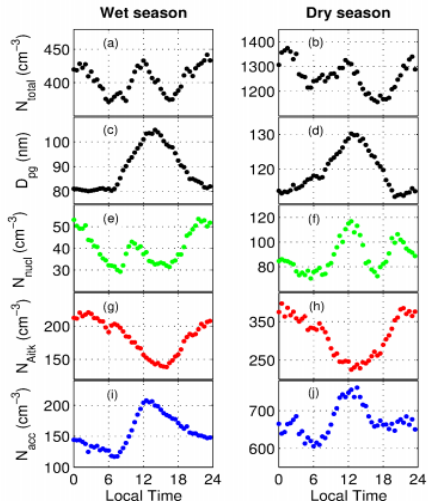


Figura 6: Distribuição do tamanho de partículas modelada para os períodos de chuva e seca considerando diversos casos.

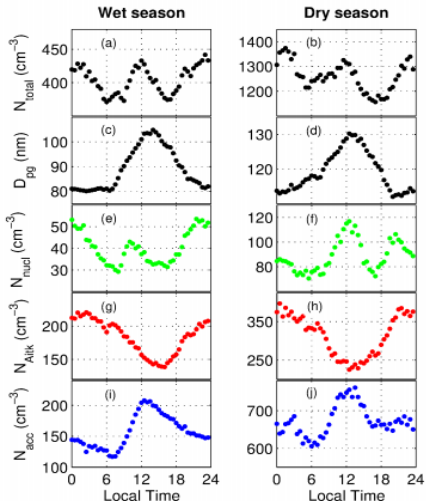
Parameter	Season	Estimated value
BL air change rate during convective downdrafts (λ)	Wet and Dry	3 h^{-1}
Condensation growth rate	Wet	daytime: 2 nm h^{-1} nighttime: 0.2 nm h^{-1}
	Dry	daytime: 0.5 nm h^{-1} nighttime: 0.2 nm h^{-1}
Secondary aerosol formation (condensation)	Wet	$0.333 \mu\text{m}^3 \text{cm}^{-3} \text{day}^{-1}$
	Dry	$0.432 \mu\text{m}^3 \text{cm}^{-3} \text{day}^{-1}$
Surface emissions of primary particles (Type 1, Fig S6)	Wet	$5.8 \text{ cm}^{-3} \text{day}^{-1}$ or $0.0023 \mu\text{m}^3 \text{cm}^{-3} \text{day}^{-1}$
	Dry	$9.3 \text{ cm}^{-3} \text{day}^{-1}$ or $0.0093 \mu\text{m}^3 \text{cm}^{-3} \text{day}^{-1}$
Entrainment of particles into the BL (Type 2, Fig S6)	Wet	$12.5 \text{ cm}^{-3} \text{day}^{-1}$ or $0.024 \mu\text{m}^3 \text{cm}^{-3} \text{day}^{-1}$
	Dry	$37.5 \text{ cm}^{-3} \text{day}^{-1}$ or $0.081 \mu\text{m}^3 \text{cm}^{-3} \text{day}^{-1}$

Variabilidade diurna de partículas submicrométricas



- N_{total} e $D_{p,g}$ não mostraram mudanças sazonais significativas (apesar de $N_{total,chuva} > N_{total,seca}$);
- Entre 2:00 e 6:00h : queda em N_{total} devido a deposição seca na camada noturna, $D_{p,g}$ mantém-se constante e isso pode ser devido a baixa taxa de crescimento de partículas que sofreram condensação;
- 8:00 h: N_{total} e $D_{p,g}$ crescem → forte contribuição da moda de acumulação e pequena contribuição da moda de nucleação;
- Diminuição do número de partículas na moda Aitken está associada ao crescimento da quantidade de partículas na moda de acumulação;

Variabilidade diurna de partículas submicrométricas

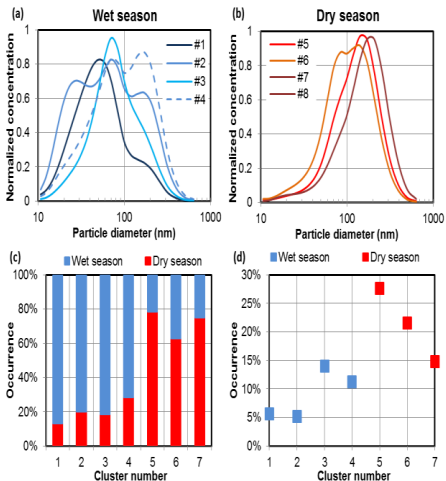


- Outros processos: transporte de longa distância e processamento *in cloud* de partículas. Grande quantidade de partículas do tipo 2 na estação seca em comparação com a estação chuvosa;
- 14:00 - 18:00h : N_{total} e $D_{p,g}$ decrescem → deposição úmida (*below cloud scavenging*) e partículas do tipo 3 transportadas da FT para a CBL (baixa concentr. moda acumulação e alta conc. da Aitken);
- 17h: pequeno aumento em N_{total} → diminuição da BL e contribuição de emissões biológicas da superf., provavelmente fungos.

Considerações a respeito dos resultados do modelo

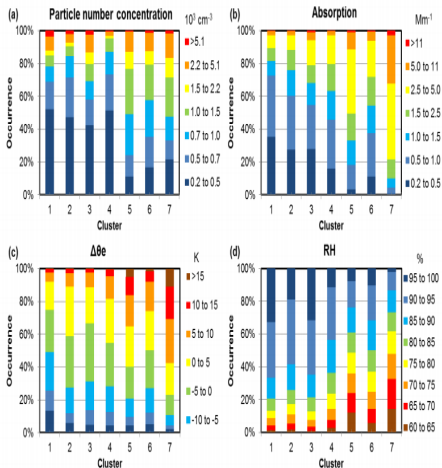
- Transportes convectivos por *downdrafts* servem como importante fonte de partículas da moda de Aitken à camada superficial, principalmente durante a estação chuvosa;
- Precipitações associadas aos *downdrafts* diminuem muito a concentração de partículas da moda de acumulação;
- Condensação (formação de aerossol secundário) é a maior fonte de aerossol submicrométrico com concentração de 0.33 e 0.43 $\mu\text{m cm}^{-3}$ por dia nas estações chuvosa e seca, respectivamente. Isso representa 10-15% da concentração total de aerossóis da moda fina Amazônica.

Cluster analysis



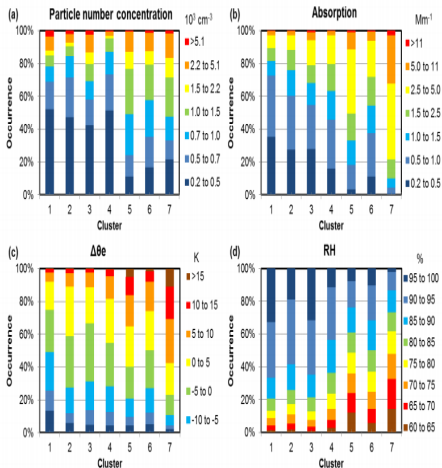
- 7 clusters utilizados;
- Centróides de cada cluster (a-b) e frequência de ocorrência (c-d) de cada cluster;
- Observa-se 4 clusters com maior ocorrência na estação chuvosa e 3 na estação seca;

Cluster analysis



- Clusters predominantes na estação chuvosa estão associados com condições limpas ($N < 500 \text{ cm}^{-3}$) e com coeficientes de absorção menores que 1 Mm^{-1} ; estação seca: ($N > 500 \text{ cm}^{-3}$) e coef. de absorção $> 1 \text{ Mm}^{-1}$.
- estação chuvosa: clusters #1, #2, #3 Aitken predomina; estação seca: #5 e #7 moda de acumulação predomina; Cluster #2 mostrou influência da moda de nucleação, o que reflete a natureza transiente da moda de nucleação;
- Clusters #4 e #6 \rightarrow min. Hoppel, sugerindo processamento *in cloud* na formação de aerossol secundário;

Cluster analysis



- A maior parte dos clusters com contribuições intensas da moda de Aitken obtiveram $\Delta\theta_e < 0$, sugerindo *down-drafts* convectivos;
- Corroborar hipótese de que a fonte de partículas da moda de Aitken está fora da BL;
- Cluster #1 mostrou relação entre precipitação e *down-drafts*. Ocorrência tipicamente após períodos de chuva, simultaneamente com $\Delta\theta_e < 0$ e períodos com aumento da concentração de partículas. Isso sugere que as partículas deste cluster foram originadas fora da CBL.

- Cluster #7: abundância de partículas da moda de acumulação (centro em 200nm), ocorrência em condições de seca e cluster associado com partículas altamente absorvedoras;
- Cluster #7 associado com partículas de intensa atividade de queimad de biomassa;
- Análise de cluster não conseguiu associar distribuição de tamanho de partículas com a pluma de Manaus, o que significa que a pluma de Manaus tem pequena influência no sítio em que as medidas foram efetuadas.

Formação de novas partículas (NPF)

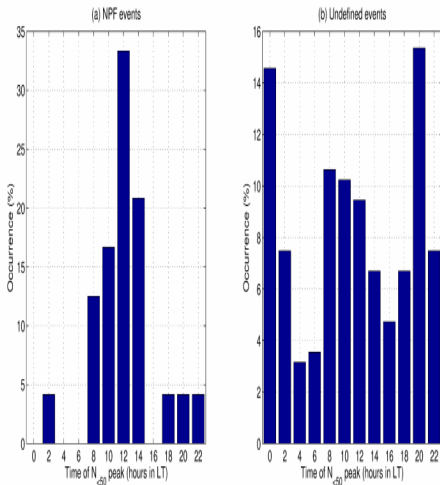
Os 749 dias de observações foram classificados em:

- Dias com crescimento e formação de novas partículas (3% dos dias);
- eventos indefinidos (28%);
- dias sem eventos (52%);
- dias sem classificação (16%);

NFP são seguidos dos seguintes eventos:

- moda distinta de novas partículas com diâmetro $< 25\text{nm}$;
- a moda prevalece por muitas horas;
- a nova moda deve mostrar sinais de crescimento.

Formação de novas partículas



- Maior parte dos eventos de NPF ocorrem durante o dia e, em maior quantidade, na estação chuvosa (19 de 24 eventos);
- Taxa de crescimento médio das partículas na Amazônia: $5.5h^{-1}$; em comparação, na Finlândia os valores são entre 8 e $12h^{-1}$;
- eventos indefinidos são mais comuns na estação chuvosa (161 de 212 eventos); bursts da moda de nucleação e de acumulação ocorrem aproximadamente igualmente durante dia e noite;
- NPF e eventos de crescimento de partículas podem estar conectados com a ocorrência de *downdrafts* convectivos, uma vez que precipitação e $\Delta\theta_e < 0$ aproximadamente 2h antes dos eventos;

Formação de novas partículas

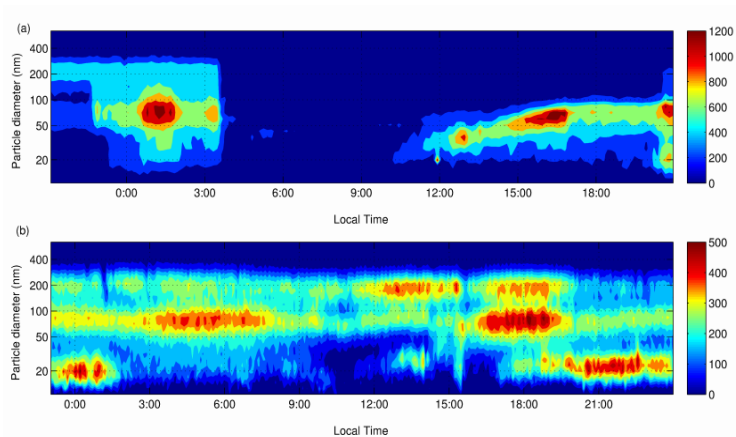


Figure 7. (a) Example of a new particle formation (NPF) and growth event starting on 21 Feb 21 10:00 LT. (b) Example of undefined events, on 04 Jun 2009. Particle bursts were observed at 0:00, 14:00 and 21:00 LT, without subsequent growth. In both plots, the color coding shows particle number concentration normalized by diameter channel, $dN/d\log D_p$, in cm^{-3} .

Conclusão

- Moda de acumulação é dominante na estação seca devido às queimadas de biomassa regionais; Modas de acumulação e de Aitken, bem como mínimo de Hoppel, estão presentes na estação chuvosa, indicando processos que controlam a dinâmica das partículas na BL;
- Análise de cluster foi útil para distinguir os principais mecanismos que controlam a produção e existência de partículas na BL durante o ciclo diário nas estações chuvosa e seca;
- Foi constatado que NPF e subsequente crescimento das partículas são eventos raros na Amazônia, com 24 eventos observados em 749 dias. Isso é muito pouco em comparação com outros ambientes de floresta ao redor do globo;
- Bursts de partículas das modas de Aitken e nucleação sem crescimento subsequente foram fenômenos observados com relativa frequência (aprox. 28% dos dias). Eventos sem padrões diurnos claros, nem relacionados com *downdrafts*, o que significa que uma combinação de diferentes processos controlam esses bursts;

Os modelos, em conjunto com os eventos observados, indicaram que a manutenção da concentração de partículas se deve a:

- fonte de partículas da moda de Aitken dentro da BL no entardecer e durante a noite;
- partículas da moda de acumulação provenientes de transportes verticais e de longas distâncias durante a manhã;
- transportes verticais de aerossóis da moda de Aitken para dentro da BL por *downdrafts* convectivos durante a tarde;