



Ministério da
Ciência e Tecnologia



sid.inpe.br/mtc-m18/2011/06.06.15.12.09-TDI

PREVISÃO DE TEMPO QUÍMICO PARA A AMÉRICA DO SUL: IMPACTO DAS EMISSÕES URBANAS NAS ESCALAS LOCAL E REGIONAL

Marcelo Félix Alonso

Tese de Doutorado do Curso de Pós-Graduação em Meteorologia, orientada pelos
Drs. Karla Maria Longo de Freitas, e Nelson Jesuz Ferreira, aprovada em 30 de
junho de 2011.

URL do documento original:

<<http://urlib.net/8JMKD3MGP8W/39R4K92>>

INPE
São José dos Campos
2011

PUBLICADO POR:

Instituto Nacional de Pesquisas Espaciais - INPE

Gabinete do Diretor (GB)

Serviço de Informação e Documentação (SID)

Caixa Postal 515 - CEP 12.245-970

São José dos Campos - SP - Brasil

Tel.:(012) 3208-6923/6921

Fax: (012) 3208-6919

E-mail: pubtc@sid.inpe.br

CONSELHO DE EDITORAÇÃO E PRESERVAÇÃO DA PRODUÇÃO INTELLECTUAL DO INPE (RE/DIR-204):**Presidente:**

Dr. Gerald Jean Francis Banon - Coordenação Observação da Terra (OBT)

Membros:

Dr^a Inez Staciarini Batista - Coordenação Ciências Espaciais e Atmosféricas (CEA)

Dr^a Maria do Carmo de Andrade Nono - Conselho de Pós-Graduação

Dr^a Regina Célia dos Santos Alvalá - Centro de Ciência do Sistema Terrestre (CST)

Marciana Leite Ribeiro - Serviço de Informação e Documentação (SID)

Dr. Ralf Gielow - Centro de Previsão de Tempo e Estudos Climáticos (CPT)

Dr. Wilson Yamaguti - Coordenação Engenharia e Tecnologia Espacial (ETE)

Dr. Horácio Hideki Yanasse - Centro de Tecnologias Especiais (CTE)

BIBLIOTECA DIGITAL:

Dr. Gerald Jean Francis Banon - Coordenação de Observação da Terra (OBT)

Marciana Leite Ribeiro - Serviço de Informação e Documentação (SID)

Deicy Farabello - Centro de Previsão de Tempo e Estudos Climáticos (CPT)

REVISÃO E NORMALIZAÇÃO DOCUMENTÁRIA:

Marciana Leite Ribeiro - Serviço de Informação e Documentação (SID)

Yolanda Ribeiro da Silva Souza - Serviço de Informação e Documentação (SID)

EDITORAÇÃO ELETRÔNICA:

Vivêca Sant'Ana Lemos - Serviço de Informação e Documentação (SID)



Ministério da
Ciência e Tecnologia



sid.inpe.br/mtc-m18/2011/06.06.15.12.09-TDI

PREVISÃO DE TEMPO QUÍMICO PARA A AMÉRICA DO SUL: IMPACTO DAS EMISSÕES URBANAS NAS ESCALAS LOCAL E REGIONAL

Marcelo Félix Alonso

Tese de Doutorado do Curso de Pós-Graduação em Meteorologia, orientada pelos
Drs. Karla Maria Longo de Freitas, e Nelson Jesuz Ferreira, aprovada em 30 de
junho de 2011.

URL do documento original:

<<http://urlib.net/8JMKD3MGP8W/39R4K92>>

INPE
São José dos Campos
2011

Dados Internacionais de Catalogação na Publicação (CIP)

Alonso, Marcelo Félix.

Al72p Previsão de tempo químico para a América do Sul: impacto das emissões urbanas nas escalas local e regional / Marcelo Félix Alonso. – São José dos Campos : INPE, 2011.
xxviii+188 p. ; (sid.inpe.br/mtc-m18/2011/06.06.15.12.09-TDI)

Tese (Doutorado em Meteorologia) – Instituto Nacional de Pesquisas Espaciais, São José dos Campos, 2011.

Orientadores : Drs. Karla Maria Longo de Freitas, e Nelson Jesuz Ferreira.

1. Megacidades. 2. Química da atmosfera. 3. Qualidade do ar.
4. CCATT-BRAMS. I.Título.

CDU 551.510.41

Copyright © 2011 do MCT/INPE. Nenhuma parte desta publicação pode ser reproduzida, armazenada em um sistema de recuperação, ou transmitida sob qualquer forma ou por qualquer meio, eletrônico, mecânico, fotográfico, reprográfico, de microfilmagem ou outros, sem a permissão escrita do INPE, com exceção de qualquer material fornecido especificamente com o propósito de ser entrado e executado num sistema computacional, para o uso exclusivo do leitor da obra.

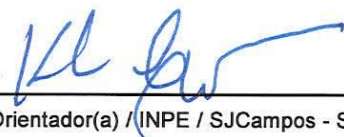
Copyright © 2011 by MCT/INPE. No part of this publication may be reproduced, stored in a retrieval system, or transmitted in any form or by any means, electronic, mechanical, photocopying, recording, microfilming, or otherwise, without written permission from INPE, with the exception of any material supplied specifically for the purpose of being entered and executed on a computer system, for exclusive use of the reader of the work.

Aprovado (a) pela Banca Examinadora
em cumprimento ao requisito exigido para
obtenção do Título de Doutor(a) em
Meteorologia

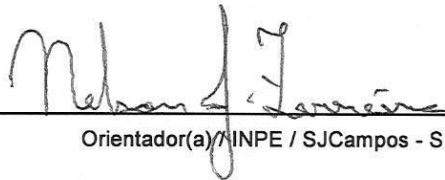
Dr. Osvaldo Luiz Leal de Moraes


Presidente / UFSM / Santa Maria - RS

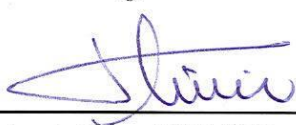
Dra. Karla Maria Longo de Freitas


Orientador(a) / INPE / SJCampos - SP

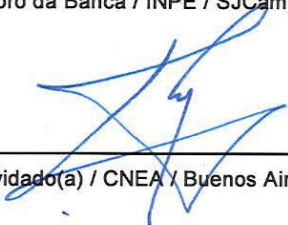
Dr. Nelson Jesuz Ferreira


Orientador(a) / INPE / SJCampos - SP

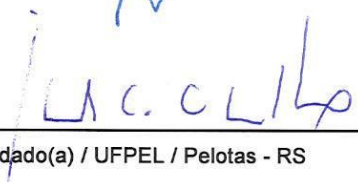
Dr. Plínio Carlos Alvalá


Membro da Banca / INPE / SJCampos - SP

Dra. Laura Elena Dawidowski


Convidado(a) / CNEA / Buenos Aires - AR

Dr. Jonas Costa Carvalho


Convidado(a) / UFPEL / Pelotas - RS

Este trabalho foi aprovado por:

() maioria simples

☒ unanimidade

Aluno (a): Marcelo Félix Alonso

São José dos Campos, 30 de junho de 2011

**A meus pais Eva e Cláudio
e a minha esposa Marlise, pelo amor e dedicação**

AGRADECIMENTOS

Gostaria de agradecer, em primeiro lugar, aos membros da banca, pela disposição em participarem da mesma. Aos meus orientadores Dra. Karla Maria Longo e Dr. Nelson Jesuz Ferreira, pela dedicação e paciência, e ao IAI, pelo suporte financeiro.

Em especial, gostaria de deixar registrado meu grande agradecimento e admiração pelos doutores Karla Maria Longo e Saulo Freitas, que me proporcionaram uma visão muito abrangente sobre os aspectos científicos e as atribuições de um grupo de pesquisa tão importante no contexto internacional como é o GMAI, o que para mim resultou de grande relevância na minha formação neste período. Certamente os considero mais do que tudo grandes amigos.

Também sou muito grato aos amigos e colegas do grupo GMAI, cujos nomes não irei citar, pois caio na indelicadeza de esquecer alguém, dado o grande número de colaboradores. Em particular, gostaria de agradecer ao Rafael Mello pelo valioso suporte e discussão, e acima de tudo pela grande amizade. E não posso me esquecer de agradecer à Madeleine, pelas valiosas discussões sobre a química da atmosfera.

Agradeço a todos os membros do projeto SAEMC, em especial à Laura Dawidowski pela importante contribuição no capítulo final. A convivência com esse grupo foi de um enriquecimento científico e cultural sem precedentes.

Quero agradecer a minha família, em especial a meus pais e esposa, pelo amor e pelo apoio incondicional.

RESUMO

As médias e grandes cidades sul-americanas experimentaram nos últimos anos um constante crescimento demográfico, devido a aspectos socioeconômicos como a periurbanização e o êxodo rural. O aumento das emissões de gases traço tóxicos para a troposfera, devido à expansão urbana, e o consequente aumento da concentração dos gases secundários oriundos de sua oxidação afetam a qualidade de vida nas cidades e no entorno. Os seus efeitos locais e seu impacto em áreas remotas têm sido objetos recentes de estudos observacionais e de modelagem numérica. Particularmente sobre a influência regional, salienta-se que o continente sul-americano carece de trabalhos com esse escopo. Portanto, propõe-se estudar o impacto regional das emissões urbanas na qualidade do ar e na previsão do tempo químico sobre a América do Sul, através da utilização do modelo CCATT-BRAMS (*Coupled Chemistry Aerosol and Tracer Transport model to the Brazilian developments on the Regional Atmospheric Modeling System*), já operacional para a América do Sul e com um extenso desenvolvimento regional. Com esse intuito trabalhou-se no desenvolvimento de um inventário regional de emissões veiculares em áreas urbanas da América do Sul, mediante a análise e agregação dos inventários municipais disponíveis, o estudo da sua operacionalização em resoluções mais finas e a construção de cenários de emissão, a partir dessa base regional, para futuros estudos de relação entre a qualidade do ar regional e as mudanças climáticas. O inventário regional de emissões urbanas para a América do Sul propiciou um ganho significativo na modelagem da química atmosférica em escala regional sobre esse continente, e mostrou-se virtualmente aplicável em todas as resoluções, o que também inclui o seu refinamento com a inserção das emissões veiculares das rodovias e a distribuição mais realista das emissões na Região Metropolitana de São Paulo, proporcionando um ganho significativo na previsão do tempo químico em resoluções mais finas. Com a utilização dessa ferramenta e extensivo trabalho no modelo CCATT-BRAMS, mostrou-se que as grandes cidades sul-americanas influenciam consideravelmente a produção de ozônio no seu entorno, com regimes químicos distintos dependendo da latitude. Por fim, trabalhou-se na geração de inventários regionais futuros de emissão dos precursores do ozônio para o período de 2011 a 2030. Os cenários estimados apontam uma redução da emissão de monóxido de carbono e compostos orgânicos voláteis não metano em torno de 37% em 2030 com relação às emissões urbanas atuais, porém, um aumento de 7% na emissão de NO_x comparando o mesmo período, sugerindo que os atuais programas nacionais de controle da emissão de óxidos de nitrogênio, provindos principalmente de veículos pesados a diesel, não serão suficientes para sua redução daqui a 19 anos.

CHEMICAL WEATHER FORECAST FOR SOUTH AMERICA: IMPACT OF URBAN EMISSIONS ON LOCAL AND REGIONAL SCALES

ABSTRACT

The larger cities in South American have a significant urban population growth due mainly to socioeconomic factors such as urban expansion and loss of agricultural land. The increase of toxic trace gases emissions to the atmosphere, due to urban expansion and their oxidation products affect the quality of life in the cities and the surrounding areas. The local air quality effects of urban emissions and the regional impacts of extensive urban areas have been the subjects of observational and modeling studies. However, there are only a few studies about the South American cities regional influence in the atmospheric chemical composition. Therefore, it was proposed to study the regional impact of urban emissions on air quality and chemical weather forecast over South America using the CCATT-BRAMS (Coupled Chemistry Aerosol and Tracer Transport model to the Brazilian developments on the Regional Atmospheric Modeling System), operational for South America and with a comprehensive regional development. For this purpose, we worked on the development of an urban vehicle emissions inventory for South America, based on the analysis and aggregation of available inventories for the major cities, with emphasis on its application in regional atmospheric chemistry modeling, its applicability at various resolutions and the construction of future emission scenarios aiming of establish a relationship between regional air quality and climate change. The use of local emissions databases integrating specific information about urban centers into a broader database is shown to be relevant for a good representation of emissions in chemical weather forecasting models on local and regional scales. The applicability of this methodology in a broad range resolution, including the refinement with the inclusion of vehicular highways emissions and a more realistic distribution of emissions in the Metropolitan Area of São Paulo, provides a significant gain in chemical weather forecasts in finer resolutions. Using this tool and with extensive work on CCATT-BRAMS model, we showed that the larger South American cities has a significant influence on the ozone production in the surrounding area, and has distinct chemical regimes depending on their latitude location. Finally, we worked on the generation of urban emission inventories scenarios for ozone precursors in the period 2011-2030. The scenarios show a significant reduction of carbon monoxide and non-methane volatile organic emissions (around 37%) in 2030 relative to 2010, however, we estimated a increasing of 7% for the NO_x vehicular emission comparing the same period, suggesting that the current national programs for emission control, will not be enough to reduce the NO_x emission and ozone production in the next 19 years.

LISTA DE FIGURAS

	<u>Pág.</u>
Figura.2.1 - Emissões relativas de poluentes por tipo de fonte, para a Região Metropolitana de São Paulo no ano de 2005 (CETESB, 2006).....	9
Figura.2.2 – Distribuição das emissões por fonte e poluente no perímetro urbano de Bogotá (Zárate et al., 2007)	9
Figura.2.3 – Contribuição das categorias veiculares no inventário de emissão proveniente de veículos de carga leve para Bogotá. Adaptado de Rodrigues (2009)	10
Figura.2.4 - Esquema que ilustra a química do ozônio troposférico pelo acoplamento entre os ciclos químicos de O ₃ , HOX e NOX. RO ₂ refere-se aos radicais peróxidos orgânicos. Adaptado de Jacob et al. (2000).....	11
Figura.2.5 - [a] Isopletas da taxa de formação do ozônio (ppb h ⁻¹) como função das concentrações de NOX (ppb) e COV (ppbC). As setas indicam a evolução das concentrações de NOX e COVs, calculadas para o período das 9:00 às 17:00 local em atmosferas urbanas típicas das grandes cidades norte-americanas (Sillman et al., 1999). [b] Isopletas de ozônio (ppb) como função da taxa de emissão de NOX e COVs (10 ¹² molec. cm ⁻² s ⁻¹), calculados em condições representativas ao horário de máxima formação de ozônio. A linha azul tracejada representa a transição entre os regimes NOX e VOCs limitantes (Sillman et al., 2003).	14
Figura.2.6 – Cidades com mais de 750.000 habitantes conforme relatório das Nações Unidas (UNFPA, 2007). Fonte: http://nordpil.com/go/resources/world-database-of-large-cities/ - Acessado em 26/05/2011.	15
Figura.2.7 – Ozônio – Evolução do número de ultrapassagens do padrão – RMSP (Fonte: CETESB, 2009).....	17
Figura.2.8 – Emissão antrópica total estimada no inventário RETRO.....	22
Figura.2.9 – Oferta interna de energia elétrica por fonte, em 2009 (Fonte: EPE, 2010).....	32
Figura.3.1 – Configuração das grades dos experimentos CONTROLE E SA-INV.....	40
Figura.3.2 – Emissões de CO e NO _x por fontes móveis (kg/m ² s) x densidade veicular (milhares de veículos /km ²) para as cidades analisadas (localizações indicadas no mapa).....	51
Figura.3.3 – Emissões de CO (x 10 ⁻⁶ kg/m ² dia) do inventário original (A) e extrapolado (B) em uma grade de 20 km sobre a América do Sul.....	52

Figura.3.4 – Imagem do sensor AVHRR / NOAA, com 1km resolução espacial, e as emissões extrapoladas de CO (kg/m ² dia) na grade de 5 km.....	53
Figura.3.5 – Precipitação acumulada observada (mm) com resolução horizontal de 1 grau x 1 grau (ftp://ftp.cpc.ncep.noaa.gov/precip/wd52ws/brazil/) [A] e simulada na grade de 80 km [B], para o mês de janeiro de 2005. As siglas representam os estados da República Federativa do Brasil: Santa Catarina (SC); Paraná (PR); São Paulo (SP); Rio de Janeiro (RJ); Espírito Santo (ES); Mato Grosso do Sul (MS); Mato Grosso (MT), Distrito Federal (DF) e Goiás (GO).....	55
Figura.3.6 – Diagrama de dispersão das temperaturas mínimas e máximas (oC) simuladas pelo experimento SA-INV e observadas no aeroporto Campo de Marte (SBMT), no mês de janeiro de 2005.....	55
Figura.3.7 – Altura da CLP simulada na grade de 5 km e estimada através dos dados de radiossondagem na estação SBMT (00 e 12 TMG) durante o mês de janeiro de 2005.....	56
Figura.3.8 – Média horária da razão de mistura de CO observados e simulados nos experimentos CONTROLE e SA-INV para a Região Metropolitana de São Paulo e para a cidade de Belo Horizonte.....	58
Figura.3.9– Média horária da razão de mistura de NO _x observados e simulados nos experimentos CONTROLE e SA-INV para a Região Metropolitana de São Paulo e para a cidade de Belo Horizonte.....	59
Figura.3.10– Média horária da razão de mistura de ozônio observados e simulados nos experimentos CONTROLE e SA-INV para a Região Metropolitana de São Paulo e para a cidade de Belo Horizonte.....	60
Figura.3.11 – Diferença percentual entre as médias mensais das razões de mistura de CO, NO _x e O ₃ nos horários de pico para o mês de outubro, simuladas pelos experimentos CONTROLE e SA-INV na grade de 80km e o campo médio mensal de vento próximo à superfície em m/s.....	61
Figura.4.1 – Trechos analisados para a estimativa das emissões linhas referentes ao volume de tráfego diário.....	66
Figura.4.2 – Emissão de monóxido de carbono na resolução de 3km (kg[CO]/m ² s) utilizada na previsão da qualidade do ar para os estados de São Paulo e Rio de Janeiro.....	68
Figura.4.3 – Imagem do satélite LANDSAT (http://landsat.gsfc.nasa.gov/), com camada sobreposta das principais vias e rodovias.....	68
Figura.4.4 – Simulação de NO _x na grade operacional de 3 km para o dia 25 de fevereiro de 2011 às 12 UTC. As linhas vermelhas representam a localização das rodovias.....	69
Figura.4.5 – Comparação do ozônio simulado para o período de 08 a 10 de agosto de 2008, utilizando a configuração proposta para a operação em alta	

resolução, com o ozônio observado nas estações Mooca, Pinheiros e São Caetano.....	70
Figura.5.1 – Emissão total de CO gerada pelo PREP-CHEM-SRC para o ano de 2007, em kg/m2ano, para os experimentos REFERÊNCIA e SURBAN, respectivamente.....	75
Figura.5.2 – (a) Desvios de precipitação total observada (em mm) com relação à média climatológica para JANEIRO/2007 (Fonte: INMET) e (b) média da razão de mistura (em g/kg) e linhas de corrente do campo de vento em 850 hPa, simulada na primeira quinzena de janeiro, na qual atuaram dois episódios de ZCAS.....	77
Figura.5.3 – Evolução diária dos focos de calor no período de 2007 – 2010 e 1997 – 2006 (quadro menor). Fonte: DSA/CPTEC/INPE.....	78
Figura.5.4 – (a) Desvios de precipitação total observada (em mm) com relação à média climatológica para AGOSTO/2007 (Fonte: INMET) e (b) médias mensais da umidade específica (em g/kg) na superfície e linhas de corrente em 850 hPa, simuladas para agosto de 2007	79
Figura.5.5 – Ozônio integrado na coluna, simulado (esquerda) e estimado pelo satélite OMI/MLS (direita) para janeiro (acima) e novembro (abaixo) de 2007, em ppbv.....	81
Figura.5.6 – Média horária da razão de mistura de O ₃ observados (linha contínua) e simulados pelo experimento REFERÊNCIA (linha tracejada) para a Região Metropolitana de São Paulo. Os desvios padrões do valor observado são em relação à média espacial obtida das estações pertencentes à RMSP.	82
Figura.5.7 – Média horária da razão de mistura de O ₃ observados (linha contínua) e simulados pelo experimento REFERÊNCIA (linha tracejada) para a Região Metropolitana de Belo Horizonte. Os desvios padrões do valor observado são em relação à média temporal.....	83
Figura.5.8 – Média horária da razão de mistura de O ₃ observados (linha contínua) e simulados pelo experimento REFERÊNCIA (linha tracejada) para a Região Metropolitana de Santiago do Chile. Os desvios padrões do valor observado são em relação à média espacial obtida das estações pertencentes à RMSA.	84
Figura.5.9 – Média horária da razão de mistura de NOX observados (linha contínua) e simulados pelo experimento REFERÊNCIA (linha tracejada) para a Região Metropolitana de São Paulo, nos trimestres de 2007.....	85
Figura.5.10 – Razão entre as concentrações de COVs e NOX (ppbC/ppbv) simuladas pelo experimento normal.....	86
Figura.5.11 – Isopletas da concentração de ozônio simulado na Região Metropolitana de SP (RMSP).....	87

Figura.5.12 – Média mensal de ozônio simulada pelo experimento REFERÊNCIA, com todas as emissões, no nível da superfície, em ppbv e vento médio, em m/s.....	89
Figura.5.13 – Média mensal do NOX simulado nos meses de janeiro (a), julho (b) e setembro (c) na superfície. Os vetores referem-se ao vento médio na camada até 1 km.....	92
Figura.5.14 – Média mensal de ozônio simulada pelo experimento REFERÊNCIA, com todas as emissões, em ppbv, e vento médio, em m/s, no nível de 700 hpa.....	93
Figura.5.15 – Perfil vertical do ozônio médio simulado pelo experimento REFERÊNCIA (período de 2007) e observado no projeto MOZAIC (período de 1996-1998) na região metropolitana de São Paulo, em ppbv.....	96
Figura.5.16 – Deposição seca do ozônio acumulada no mês de setembro ($\times 10^{-3}$ Kg/m ²).....	98
Figura.5.17 – Percentagem de contribuição das áreas urbanas na concentração de ozônio sob os primeiros 2 km acima da superfície.....	98
Figura.5.18 – Média horária da razão de mistura de O ₃ simulada pelo experimento REFERÊNCIA (linha preta) e pelo experimento SURBAN (linha vermelha) para a Região Metropolitana de São Paulo.....	101
Figura.6.1 – Diagrama esquemático da metodologia proposta para a geração dos cenários de emissão veicular... ..	106
Figura.6.2 – Diagrama esquemático de um sistema simples de abastecimento de energia. Onde, PP representa a planta de uma determinada forma de energia primária, T&D representa o transporte e distribuição de determinado recurso ou forma primária e IND representa o respectivo uso industrial.. ..	108
Figura.6.3 – Diagrama esquemático da matriz energética brasileira aplicada no modelo MESSAGE.....	110
Figura.6.4 – Curvas para o cálculo de veículos circulantes por tipo de veículo.....	112
Figura.6.5 – Oferta interna de energia, em MW por ano, do balanço energético nacional (topo) e simulado pelo modelo MESSAGE... ..	115
Figura.6.6 – Consumo final de combustível pelo setor de transporte rodoviário projetado com o modelo MESSAGE, utilizando dados de demanda e matriz de energia do Balanço Energético Nacional, em MW por ano.....	116
Figura.6.7 – Evolução da frota de veículos em milhões de unidades por tipo de combustível.....	116
Figura.6.8 – Emissão de monóxido de carbono estimada para o setor de transporte no Brasil, em Gg/ano. A linha representa o fator de emissão médio estimado para automóveis a gasolina.....	118

Figura.6.9 – Emissão de óxidos de nitrogênio estimada para o setor de transporte no Brasil, em Gg/ano. A linha representa o fator de emissão médio estimado para automóveis a gasolina.....	119
Figura.6.10 – Emissão de compostos orgânicos voláteis não-metano estimada para o setor de transporte no Brasil, em Gg/ano. A linha representa o fator de emissão médio estimado para automóveis a gasolina.....	119
Figura.6.11 – Diagramas de dispersão da emissão de CO/NO _x desagregada da estimativa nacional com a emissão do inventário regional, em Gg/ano, para algumas cidades brasileiras.....	121
Figura.6.12 – Mapas regionais de emissão urbana de COVNM para os anos de 2007 e 2030, respectivamente, em kg/m ² ano, para o Brasil.....	122
Figura.6.13 – Mapas regionais de emissão urbana de NO _x para os anos de 2007 e 2030, respectivamente, em kg/m ² ano, para o Brasil.....	122

LISTA DE TABELAS

	<u>Pág.</u>
Tabela 2.1 – Principais grandes cidades sul-americanas	15
Tabela 2.2 – População das megacidades mundiais em milhões de habitantes (UNFPA, 2001)	20
Tabela 2.3 – Mecanismos químicos troposféricos em modelos numéricos de qualidade do ar.....	29
Tabela 2.4 – Caracterização dos cenários nacionais (fonte: EPE, 2007).....	34
Tabela 3.1 – Exemplo de emissões estimadas no pré-processador do modelo CCATT-BRAMS	46
Tabela 3.2 – Fatores de agregação utilizados na especiação das emissões de COVs no mecanismo RACM.....	48
Tabela 3.3 – Especiação dos COVs, RACM	49
Tabela 3.4 – Relação entre as emissões de CO/NOx com alguns índices socioeconômicos (coeficientes de determinação).....	51
Tabela 6.1 – Estimativa de evolução da frota de veículos circulantes no Brasil até 2030, por tipo de combustível.	113
Tabela 6.2 – Relações de consumo (E&E,2010).....	114
Tabela 6.3 – Consumo por tipo de veículo e combustível utilizado na desagregação da emissão nacional, em TJ/ano	117

LISTA DE SIGLAS E ABREVIATURAS

3BEM	<i>Brazilian Biomass Burning Emission Model</i>
ACCENT	<i>Atmospheric Composition Change the European Network</i>
ACE-ASIA	Asian Pacific Regional Aerosol Characterization Experiment
AEROCOM	Aerosol Comparisons between Observations and Models
AMJ	Trimestre de abril a junho
ANTT	Agência Nacional de Transportes Terrestres
ANFAVEA	Associação Nacional dos Fabricantes de Veículos Automotores
AS	América do Sul
AVHRR	<i>Advanced Very High Resolution Radiometer</i>
BEN	Balanco Energético Nacional
CFORS	<i>Chemical weather FORecast System</i>
CCATT-BRAMS	<i>Coupled Chemistry Aerosol and Tracer Transport model to the Brazilian developments on the Regional Atmospheric Modeling System</i>
CBM-IV	Carbon Bond IV
CCR	Companhia de concessões rodoviárias
CERNE	Centro de Excelência em Recursos Naturais e Energia
CET	Companhia de Engenharia de Tráfego
CETESB	Companhia de Tecnologia de Saneamento Ambiental
CFORS	<i>Chemical weather FORecast System</i>
CG	Carbono Grafite
CLP	Camada Limite Planetária
CPTEC	Centro de Previsão do Tempo e Estudos Climáticos
CO	Monóxido de Carbono
CO ₂	Dióxido de Carbono
CONAMA	Conselho Nacional do Meio Ambiente
COPERT	<i>Computer programme to calculate emissions from road transport</i>
COVs	Compostos orgânicos voláteis

COVNM	Compostos orgânicos voláteis não metano
DMS	Dimetilsulfeto
DSA	Divisão de Satélites e Sistemas Ambientais
E&E	Economia & Energia
EDGAR	<i>Emission Database for Global Atmospheric Research</i>
EMEP	<i>Co-operative programme for monitoring and evaluation of the long range transmission of air pollutants in Europe</i>
EPA	<i>US Environmental Protection Agency</i>
EPE	Empresa Pesquisa Energética
FAST-TUV	<i>Fast Tropospheric Ultraviolet and Visible Radiation Model</i>
FEEMA	Fundação Estadual de Engenharia do Meio Ambiente
FRSGC	<i>Frontier Research System for Global Change</i>
FUPAI	Fundação de Pesquisa e Assessoramento à Indústria
GEIA	<i>Emissions Inventory Activities</i>
GEOS DAS	<i>Goddard Earth Observing System Data Assimilation System</i>
GLCF	<i>Global Land Cover Facility</i>
GLP	Gás Liquefeito de Petróleo
GMAI	Grupo de Modelagem da Atmosfera e Interfaces
GOCART	<i>Geórgia Tech/Goddard Global Ozone Chemistry Aerosol Radiation and Transport model</i>
GOES	<i>Geostationary Operational Environmental Satellite</i>
H ₂ S	Sulfeto de Hidrogênio
HC	Hidrocarbonetos
HCl	Ácido Clorídrico
HCNM	Hidrocarbonetos não metano
HN	Hemisfério Norte
HNO ₂	Ácido Nitroso
HNO ₃	Ácido Nítrico
HO ₂	Hidroperóxido
HO ₂ NO ₂	Ácido Peroxinítrico
HS	Hemisfério Sul

IAI	<i>Inter-American Institute for Global Change Research</i>
IAEA	<i>International Atomic Energy Agency</i>
IBGE	Instituto Brasileiro de Geografia e Estatística
IEA	<i>International Energy Agency</i>
IDH	Índice de Desenvolvimento Humano
INMET	Instituto Nacional de Meteorologia
INPE	Instituto Nacional de Pesquisas Espaciais
IPCC	<i>Intergovernmental Panel on Climate Change</i>
JAS	Trimestre de julho a setembro
JFM	Trimestre de janeiro a março
LANDSAT	<i>Land Remote Sensing Satellite</i>
MACAM2	Rede de Monitoramento Automática da Qualidade do Ar Metropolitana II
MACCM	<i>Atmosphere version of the Community Climate Model</i>
MATCH-MPIC	<i>Model of Atmospheric Transport and Chemistry-Max Planck Institute for Chemistry version</i>
MCM	<i>Master Chemical Mechanism</i>
MCT	Ministério da Ciência e Tecnologia
MEGAN	<i>Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature</i>
MESSAGE	<i>Model for Energy Supply Strategy Alternatives and their General Environmental Impacts</i>
MILAGRO	<i>Megacity Initiative: Local and Global Research Observations</i>
MLS	<i>Microwave Limb Sounder</i>
MOCAGE	<i>Multi-scale Chemistry and Transport Model</i>
MOZAIC	<i>Measurements of Ozone, water vapour , carbon monoxide and nitrogen oxides by in-service Airbus aircraft</i>
MOZART	<i>Model of Ozone and Related Chemical Tracers</i>
MP10	Particulado com raio aerodinâmico de 10 µm
MP25	Particulado com raio aerodinâmico de 2,5 µm
N ₂ O ₅	Pentóxido de Dinitrogênio
NIES	<i>National Institute for Environmental Studies</i>

NO	Monóxido de Nitrogênio
NO ₂	Dióxido de Nitrogênio
NO ₃	Nitrato
NOAA	<i>National Oceanic and Atmospheric Administration</i>
NO _x	Óxidos de Nitrogênio
O ₃	Ozônio
OH	Radical Hidroxila
OMI	<i>Ozone Monitoring Instrument</i>
OND	Trimestre de outubro a dezembro
ONU	Organização das Nações Unidas
PAN	Nitrato de Peroxiacetila
PIB	Produto Interno Bruto
PREP-CHEM	Pré-processador de emissões químicas
PROCONVE	Programa de Controle da Poluição do Ar por Veículos Automotores
RACM	<i>Regional Atmospheric Chemistry Mechanism</i>
RADM2	<i>Regional Acid Deposition Model, version 2</i>
R'CHO	Compostos Carbonila
RELACS	<i>Regional Lumped Atmospheric Chemical Scheme</i>
RETRO	<i>REanalysis of TROpospheric chemical composition over the past 40 years</i>
RMBH	Região Metropolitana de Belo Horizonte
RMBA	Região Metropolitana de Buenos Aires
RMSA	Região Metropolitana de Santiago
RMSP	Região Metropolitana de São Paulo
SAEMC	<i>South American Emissions, Megacities and Climate</i>
SAPRC	<i>Statewide Air Pollution Research Center</i>
SO ₂	Dióxido de Enxofre
SO ₃	Sulfito
SO _x	Óxidos de Enxofre
SPACK	<i>Simplified Preprocessor for Atmospheric Chemical Kinetics</i>
STEM	<i>Sulfur Transport Eulerian Model</i>

UNFPA	<i>United Nations Population Fund</i>
WF-ABBA	<i>Wildfire Automated Biomass Burning Algorithm</i>
WRF	<i>Weather Research and Forecasting Model</i>
ZCAS	Zona de Convergência do Atlântico Sul
ZCIT	Zona de Convergência Intertropical

SUMÁRIO

Pág.

Capítulo I - INTRODUÇÃO	1
Capítulo II – FUNDAMENTO TEÓRICO	7
2.1. Poluição urbana	7
2.2. Poluição nos principais centros urbanos sul-americanos	14
2.3. Impacto regional e global dos centros urbanos	18
2.4. Inventários de emissão	21
2.5. Modelos de previsão de tempo químico	23
2.6. Formulação dos modelos de previsão de tempo químico	26
2.7. Representação de processos químicos nas escalas local e regional	30
2.8. Cenários de emissões associadas a projeção da atividade veicular no Brasil	31
2.8.1 Matriz Energética Brasileira	31
2.8.2 Plano Energético Nacional para 2030	33
Capítulo III - INVENTÁRIO REGIONAL DE EMISSÃO VEICULAR NA AMÉRICA DO SUL	35
3.1. Introdução	35
3.2. Metodologia	36
3.2.1 Inventários locais de emissões veiculares	36
3.2.2 Extrapolação das informações locais	38
3.2.3 Distribuição espacial das emissões urbanas	38
3.2.4 Avaliação do inventário	39
3.2.5 Modelo CCATT-BRAMS	41
3.2.6 Pré-processador de emissões	44
3.2.6.1 Especificação e agrupamento dos compostos orgânicos voláteis	47
3.3. Resultados	50
3.3.1 Inventário de emissões urbanas para a América do Sul	50
3.3.2. Avaliação do inventário regional	53
3.3.2.1 Situação meteorológica e análise do desempenho do modelo na simulação das condições gerais da atmosfera	54
3.3.2.2 Comparação das razões de mistura de CO, NO _x e O ₃ simuladas e observadas em áreas urbanas	56
3.4. Conclusões parciais	62
Capítulo IV - PREVISÃO DA QUALIDADE DO AR PARA OS ESTADOS DE SÃO PAULO E RIO DE JANEIRO	65
4.1. Introdução	65

4.2. Metodologia.....	65
4.3. Resultados	67
4.4. Conclusões parciais	70

Capítulo V - ESTUDO DO IMPACTO REGIONAL DOS CENTROS URBANOS NA COMPOSIÇÃO QUÍMICA DA AS 73

5.1. Introdução	73
5.2. Metodologia.....	73
5.3. Resultados	75
5.3.1. Aspectos climáticos	75
5.3.2. Comparação com as observações	80
5.3.3. Distribuição regional do ozônio troposférico e precursores sobre a AS ..	87
5.3.4. Contribuição das áreas urbanas na distribuição regional de ozônio	97
5.4. Conclusões parciais	102

Capítulo VI - GERAÇÃO DE CENÁRIOS DE EMISSÕES ASSOCIADAS A PROJEÇÃO DA ATIVIDADE VEICULAR NO BRASIL..... 105

6.1. Introdução	105
6.2. Metodologia.....	106
6.2.1. O modelo MESSAGE	107
6.2.2. Projeção do consumo final de combustível para o setor rodoviário	109
6.2.3. Estimativa das emissões da frota nacional circulante	110
6.2.4. Cálculo das emissões nacionais e geração dos inventários regionais regionais projetados pelos cenários	113
6.3. Resultados	114
6.4. Conclusões parciais	123

Capítulo VII - CONCLUSOES GERAIS E PERSPECTIVAS 125

REFERENCIAS BIBLIOGRAFICAS 131

ANEXO A - TRABALHOS PUBLICADOS 151

1 INTRODUÇÃO

Adicionalmente à previsão do tempo e clima, o uso da modelagem numérica para a previsão do tempo químico e para o diagnóstico da qualidade do ar nas grandes cidades vem ganhando espaço na produção científica atual no mundo todo, principalmente com relação ao ozônio troposférico e seus efeitos nocivos nos seres vivos. Salienta-se também a tendência de estudar não só a influência local da poluição de origem antrópica urbana, mas também seu impacto regional e global. Portanto, esse trabalho irá propiciar um melhor entendimento dos processos de formação e destruição do ozônio troposférico sobre a América do Sul, relacionados à ocupação e expansão urbana, e irá fornecer subsídios para futuros estudos de mudanças climáticas e suas relações com a qualidade do ar.

No Brasil, de acordo com o inventário brasileiro de emissões antrópicas de gases do efeito estufa, os processos industriais respondem por 1,62% da emissão líquida do dióxido de carbono (CO_2), principal gás-estufa. A mudança no uso e cobertura da terra responde pela maior parte (76%) da emissão de CO_2 (MCT, 2009). Em relação à emissão global, os países em desenvolvimento contribuem significativamente com o total da emissão antrópica de gases do efeito estufa e outros poluentes, principalmente pela mudança de uso e cobertura da terra (MCT, 2004; IPCC, 2007).

As emissões associadas à ocupação e atividades urbanas e processos industriais são, de fato, componentes minoritárias da emissão antrópica líquida de gases e aerossóis no contexto sul-americano. Entretanto, o crescimento urbano é, indubitavelmente, uma preocupação do ponto de vista da saúde pública nas nações menos desenvolvidas, devido às altas taxas de urbanização e seu impacto direto na qualidade do ar e no clima nas escalas local, regional e global. O aumento do potencial demográfico, em conjunto com fatores sociais e políticos, impõe aos países subdesenvolvidos um ritmo acelerado de urbanização, enquanto em países desenvolvidos, tipicamente, há uma tendência à estagnação e até a uma diminuição da população urbana, graças ao fenômeno de suburbanização (migração para áreas ao redor das

grandes cidades) (TUCCI et al., 2003). De acordo com o Fundo de População das Nações Unidas (UNFPA, 2007) a região da América Latina e Caribe sofreu um rápido crescimento demográfico em comparação com outras regiões menos desenvolvidas. Na América do Sul, aproximadamente 82% da população residem em áreas urbanas, com um crescimento anual em torno de 1,7%.

Seguindo a definição de Molina e Molina (2004), megacidades são cidades com mais de 10 milhões de habitantes, as quais impulsionam o crescimento de suas respectivas economias nacionais e comportam mais de um décimo da população urbana mundial. Todavia, salienta-se que algumas características de crescimento populacional, como a periurbanização (expansão da mancha urbana em direção às periferias e a descaracterização do ambiente rural tradicional), vêm sendo observada também em cidades de médio e grande porte (VALE, 2005; ALVES et al., 2010), e que os problemas de infra-estrutura e de qualidade do ar não são mais exclusividade de metrópoles populosas.

Estima-se que, em 2030 60% da população mundial viverão em áreas urbanas, o que representa um crescimento de 10% relativo ao ano de 2007(UNFPA, 2007). Para se prever o efeito desse crescimento na qualidade do ar, é necessário compreender o tempo e o clima atuais, principalmente quanto à sua relação com a química atmosférica, entendida no seu significado mais geral, ou seja, incluindo também espécies do efeito estufa e aerossóis e seus impactos no balanço radiativo. Para isso, aplicam-se esforços na modelagem desses processos, nas técnicas de monitoramento das espécies químicas presentes na atmosfera e nas metodologias de elaboração de inventários de emissões.

As emissões de gases traço tóxicos para a troposfera e os produtos de sua oxidação representam um risco direto a saúde. A produção de níveis elevados de ozônio (O_3) próximo a superfície é de particular preocupação. Altas concentrações de ozônio são relacionadas com redução da função pulmonar em estudos estatísticos e clínicos (SALDIVA et al., 1994, 1995; ABELSHON et al., 2002; LIN et al., 2003) . Nos países em desenvolvimento este problema é, em geral, agravado pela idade da frota veicular, intenso uso de combustíveis fósseis em detrimento de fontes mais eficientes de energia tanto no setor de transporte quanto na indústria.

Os efeitos nocivos da poluição antrópica na população têm motivado a comunidade científica internacional a prover metodologias para a estimativa, controle e mitigação da poluição no âmbito urbano, regional e global. Particularmente na América latina, o estudo da poluição atmosférica de megacidades até então estava focado principalmente nos seus impactos na escala local. Como exemplo pode-se citar o projeto *Megacity Initiative: Local and Global Research Observations* (MILAGRO - <http://www.eol.ucar.edu/projects/milagro/>), iniciado em março de 2006, que consistiu em campanhas intensivas de observações na cidade do México, com o intuito de estudar a poluição do ar associada a esta megacidade.

No entanto, um estudo mais abrangente requer uma integração das estratégias locais numa escala temporal e espacial mais inclusiva, principalmente no que diz respeito aos poluentes secundários gerados por reações químicas na troposfera. Poluentes com tempo de vida mais longo, provenientes de fontes urbanas, podem afetar a química atmosférica numa escala continental e mesmo global, sendo fortemente influenciados por fatores meteorológicos e características geográficas (WILD e AKIMOTO, 2001; LAWRENCE et al., 2007). De acordo com Lawrence et al, (2005 p.01), o tempo químico pode ser definido como:

As distribuições local, regional e global de importantes gases traço e aerossóis e sua variabilidade nas escalas temporais de minutos a dias, particularmente na luz de seus vários impactos, como na saúde humana, ecossistemas, o tempo meteorológico e o clima (LAWRENCE et al., 2005, p. 01).

Nos últimos anos o foco da pesquisa sobre este tema passou a buscar o entendimento de como as emissões urbanas influenciam a qualidade do ar nas escalas regional e global (GUTTIKUNDA et al., 2005, Lawrence et al., 2007, Butler e Lawrence, 2009). Mesmo no âmbito global essa tendência é relativamente recente e explorada, principalmente, para as cidades do hemisfério norte, com o uso de modelagem regional, ou para as principais megacidades do mundo, com o uso da modelagem global com resolução espacial baixa (LAWRENCE et al., 2007, BUTLER e LAWRENCE, 2009).

Para suprir a necessidade de estudar a influência das emissões urbanas no continente sul-americano, com o foco mais regional, neste estudo utilizou-se o sistema de modelagem CCATT-BRAMS (*Coupled Chemistry Aerosol and Tracer Transport model to the Brazilian developments on the Regional Atmospheric Modeling System*) [LONGO et al. 2009a, FREITAS et al., 2009a, LONGO et al., 2011], desenvolvido e mantido pelo Instituto Nacional de Pesquisas Espaciais (INPE), operacional no Centro de Previsão do Tempo e Estudos Climáticos (CPTEC – INPE) desde 2003 (<http://meioambiente.cptec.inpe.br>) e com um massivo desenvolvimento em escala regional.

Trata-se de um modelo que reflete o estado da arte em previsão de tempo químico, com várias correções e ajustes para o estudo sobre a América do Sul, o que faz o seu uso ideal neste trabalho.

Os objetivos propostos dessa tese estão inseridos no escopo do projeto *South American Megacities and Climate* (SAEMC - <http://saemc.cmm.uchile.cl/>), financiado pelo *Inter-American Institute for Global Change Research* (IAI), com o intuito de prover inventários de emissões atuais e gerar cenários regionais de mudanças climáticas para o continente sul americano, com ênfase no impacto das megacidades, e estabelecer bases sólidas para a previsão do tempo químico regional.

Em linhas gerais, propõe-se estudar o impacto das grandes cidades sul-americanas na formação e destruição do ozônio troposférico na escala regional, através da modelagem numérica. Desta forma, pretende-se contribuir para o desenvolvimento do sistema CCATT-BRAMS, já operacional na América do Sul, para o diagnóstico e prognóstico do ozônio e precursores nas escalas local e regional simultaneamente com relação às emissões urbanas, e estender esse trabalho na construção de cenários futuros de expansão socioeconômica para ser utilizado em futuros estudos de qualidade do ar e clima.

Especificamente propõem-se:

- Contribuir no desenvolvimento e avaliar o modelo de tempo químico CCATT-BRAMS na simulação dos gases traço de origem antrópica urbana no que diz

respeito aos processos químicos importantes na caracterização da qualidade do ar tanto na escala local quanto regional;

- Desenvolver um inventário de emissões urbanas para a América do Sul, que agregue informações de inventários municipais numa base de dados regional;
- Estudar a influência regional das cidades sul-americanas na composição química da América do Sul;
- Estender o inventário regional de emissões urbanas para o período até 2030 através da estimativa de cenários de emissões relacionadas ao consumo final de combustíveis e expansão da frota veicular circulante.

Em função da interdisciplinaridade inerente a este trabalho, optou-se pela sua apresentação de forma que as etapas do estudo, apresentadas nesse documento por capítulo, permitissem ao leitor uma visão integral de cada uma delas individualmente. Sendo assim, os resultados são discutidos na seguinte formatação: uma breve introdução, metodologia, resultados parciais e conclusões. No capítulo final da tese, apresentamos uma síntese dos resultados, juntamente com as considerações finais, as quais incluem uma análise perspectiva da continuidade do trabalho.

Primeiramente, necessita-se compreender como a poluição urbana age localmente e quais fatores que contribuem para sua influência regional, bem como, sobre o uso da modelagem numérica no diagnóstico e prognóstico da qualidade do ar. Esses tópicos são abordados no capítulo II com foco principal no estado atual do conhecimento sobre a influência regional e global das grandes cidades e no desafio de representar numericamente os processos químicos e de dispersão dos poluentes na atmosfera nas diferentes escalas espaciais.

Este estudo pode ser esquematizado em quatro etapas principais. Como etapa inicial, foi necessária a atualização das bases de dados globais de emissões com informações de inventários locais das principais metrópoles sul-americanas, e a extrapolação dessa informação para as demais cidades, a fim de gerar um inventário de emissões de origem antrópica urbana regionalizado. Os processos de desenvolvimento e avaliação dessa nova base de dados são abordados no capítulo III.

Como continuidade, trabalhou-se na adequação deste inventário para a previsão do tempo químico para o estado de São Paulo em alta resolução espacial (3 km), representando o mais fielmente possível a distribuição das emissões veiculares, fontes principais dos gases precursores do ozônio em atmosferas tipicamente urbanas, na área metropolitana de São Paulo e nas principais rodovias intermunicipais. Essa etapa está consubstanciada no capítulo IV.

Com as emissões avaliadas, partimos para o estudo da influência dos médios e grandes centros urbanos na química regional sobre a América do Sul através de experimentos com o sistema de modelagem CCATT-BRAMS. A metodologia e os resultados são apresentados no capítulo V.

Por fim, no capítulo VI apresentamos o trabalho realizado sobre a geração de cenários com a demanda de combustíveis no Brasil até o ano 2030 e as emissões associadas, desagregando o estudo para o nível municipal a fim de estender o inventário de emissões discutido no capítulo IV para o período até 2030.

O anexo A contem os artigos que foram publicados, resultados do trabalho desenvolvido ao longo do período do doutoramento. Alguns resultados discutidos na tese encontram-se também em alguns dos artigos. Na maioria das vezes que isso ocorreu optou-se por repetir ao longo do desenvolvimento da tese resultados e ilustrações que também constavam nos artigos. Esta estratégia foi adotada com o objetivo de preservar a estrutura de corpo autossuficiente do texto.

2 FUNDAMENTOS TEÓRICOS

A poluição de origem antrópica urbana é atualmente um grave problema de saúde pública, principalmente nas grandes cidades, as quais, tipicamente, apresentam deficiências de infraestrutura. Nesse capítulo, discute-se esse tipo de poluição, contextualizando como ela age localmente e quais fatores que contribuem para sua influência regional. Estende-se a discussão para os problemas de poluição do ar enfrentados nas principais cidades sul-americanas e desafios de representar numericamente as emissões, os processos químicos e de dispersão dos poluentes na atmosfera nas diferentes escalas espaciais.

2.1 Poluição Urbana

A poluição urbana é um problema antigo. Ainda no século XII, o filósofo Moses Maimonides (1135 – 1204) já notou que o ar urbano era “turvo e espesso”. Nos anos 1300, a Grã Bretanha adotava o carvão como combustível em suas indústrias, e o rei Edward I proibiu os mercadores de comercializar carvão durante as sessões do parlamento. O problema da poluição urbana se estende ao longo da história, com episódios de extrema gravidade, tais como: Londres, a partir da década de 1660; Vale Meuse, Bélgica, em 1929; Donora, Pensilvânia, em 1948; Seveso, Itália, em 1976; dentre outros (BRASSEUR, 1999). Atualmente, estima-se que 40% das mortes no mundo estão relacionadas com a degradação ambiental (PIMENTEL et al., 2007).

As fontes antrópicas associadas às atividades tecnológicas podem ser divididas em duas categorias: estacionárias e móveis. As fontes estacionárias provêm:

- do uso de combustíveis fósseis (material particulado[MP], dióxido e trióxido de enxofre[SO₂ e SO₃], monóxido de carbono[CO], hidrocarbonetos[HC] e óxidos de nitrogênio[NO_x]),
- dos processos industriais (material particulado, dióxido e trióxido de enxofre, ácido clorídrico[HCl], hidrocarbonetos, mercaptans, háfnio, sulfeto de hidrogênio[H₂S] e óxidos de nitrogênio) e

- da queima de resíduos sólidos (material particulado, dióxido e trióxido de enxofre, ácido clorídrico e óxidos de nitrogênio).

Por outro lado, as fontes móveis se subdividem em veículos automotores (material particulado, monóxido de carbono, óxidos de nitrogênio, hidrocarbonetos e aldeídos) e aviões e barcos (óxidos de enxofre e óxidos de nitrogênio).

A contribuição relativa de cada fonte para a emissão de um determinado poluente primário, dentro de um ambiente urbano, envolve um complexo levantamento de diversos fatores. Para fontes móveis, por exemplo, é importante conhecer o tipo e idade da frota veicular, o comportamento do tráfego e a configuração das vias. Os fatores de emissão também dependem fortemente do padrão de condução do veículo, o qual pode variar em função da localidade (BERKOWICZ et al., 2006). Para as indústrias, as emissões podem ser inventariadas em três níveis de detalhamento: Nível de Planta, referente a uma atividade industrial que poderá conter várias atividades emissoras; Nível Pontual, medidas diretas de chaminés, dutos, ventos ou outras fontes de emissões e Nível de Processo, operação unitária de uma categoria específica de fontes (EPA, 1999). As Figuras 2.1 - 2.3 mostram os principais poluentes emitidos em duas grandes metrópoles sul-americanas: São Paulo e Bogotá, respectivamente. Para alguns poluentes primários, como o monóxido de carbono (CO), mais de 90% da emissão remete-se a atividade viária, em ambos os centros urbanos. Já para os óxidos de enxofre, por exemplo, a maior porcentagem de emissão vem do processo industrial.

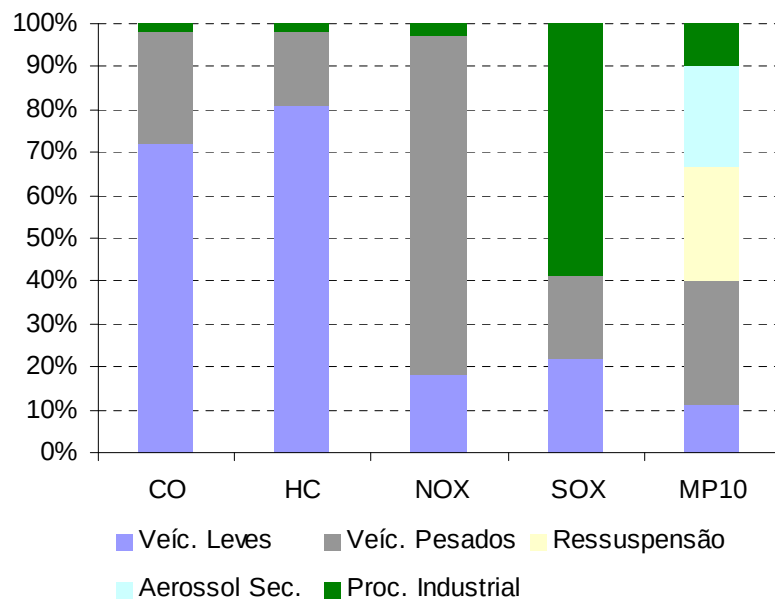


Figura 2.1 – Emissões relativas de poluentes por tipo de fonte, para a Região Metropolitana de São Paulo no ano de 2005.

Fonte: CETESB (2006).

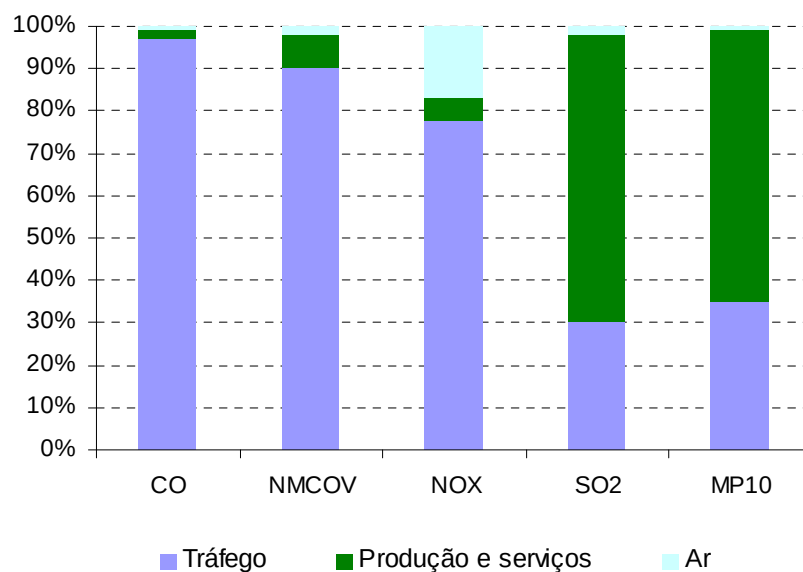


Figura 2.2 – Distribuição das emissões por fonte e poluente no perímetro urbano de Bogotá.

Fonte: Zárate et al.(2007).

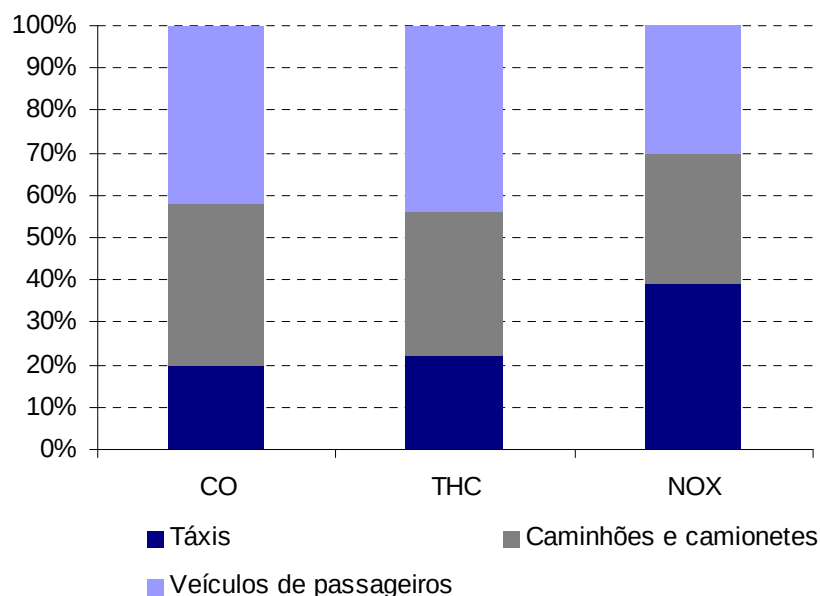


Figura 2.3 – Contribuição das categorias veiculares no inventário de emissão proveniente de veículos de carga leve para Bogotá.

Fonte: Rodrigues e Benhetz (2009).

De acordo com Jacobson (1999), há dois tipos básicos de poluição antrópica urbana: quando a intensidade da luz solar e as emissões por combustão de material fóssil são altas, o resultado é o chamado *smog*¹ fotoquímico. Quando as emissões de enxofre pelo processo industrial são altas, o ambiente recebe menor intensidade de luz solar, e a umidade relativa é alta, tem-se o “*smog* tipo Londres”².

Atualmente, o *smog* fotoquímico é mais comum que o *smog* baseado no enxofre, particularmente em ambientes urbanos com grande população e densidade de veículos. Em contraste ao *smog* tipo Londres que é de natureza química redutora devido ao dióxido de enxofre, o *smog* fotoquímico possui natureza oxidante, principalmente pela presença de ozônio, afetando diretamente a saúde da população (KNOWLTON et al., 2004; SALDIVA et al., 1994, 1995; ABELSHON et al., 2002; LIN et al., 2003) Além disso, sua

¹ O termo *smog* é um acrônimo que deriva do termo *smoke* (fumaça em inglês) e *fog* (nevoeiro em inglês).

² O termo *smog tipo Londres* é uma referência ao episódio ocorrido em Londres no ano de 1952, considerado um dos piores impactos ambientais vitimando cerca de 12.000 londrinos (DAVIS et al., 2002).

fitotoxidade pode comprometer a produtividade agrícola e afetar áreas florestais.

A produção de ozônio e de outros oxidantes na troposfera ocorre através de uma cadeia de reações que têm como principal condutor a espécie radical hidroxila ($\text{OH}^\cdot$). Jacob et al. (2000) descreve esse ciclo como uma cadeia de oxidação do CO e hidrocarbonetos, na presença dos óxidos de Nitrogênio (NO_x), pelos radicais ($\text{HO}_x = \text{OH}^\cdot + \text{hidrogênio} + \text{radicais peróxidos}$). A Figura 2.4 ilustra o acoplamento entre os ciclos químicos de O_3 , HO_x e NO_x na troposfera.

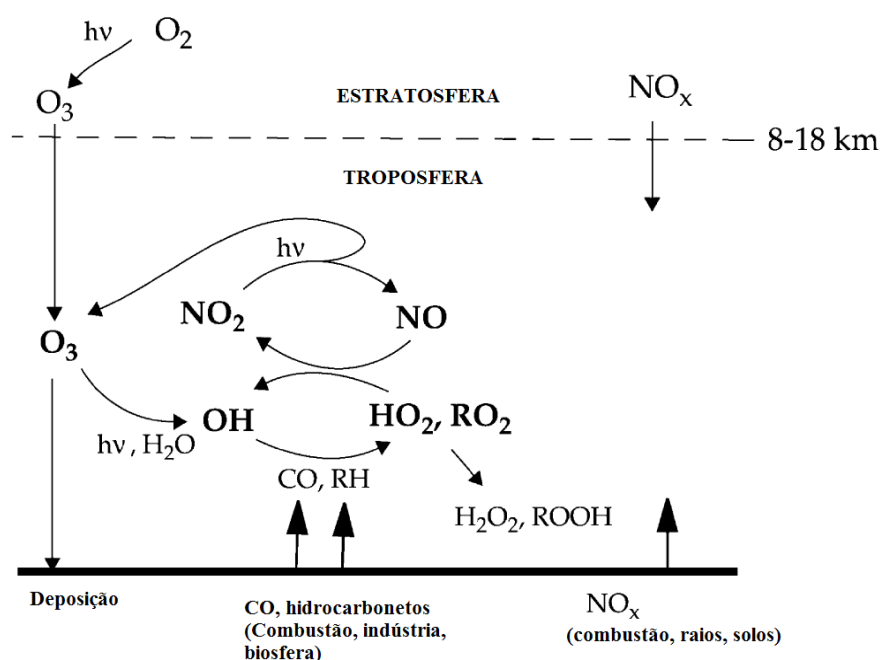
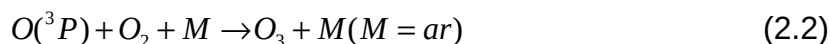


Figura 2.4 – Esquema que ilustra a química do ozônio troposférico pelo acoplamento entre os ciclos químicos de O_3 , HO_x e NO_x . RO_2 refere-se aos radicais peróxidos orgânicos.

Fonte: Adaptado de Jacob et al. (2000).

Num ambiente com baixa concentração de compostos orgânicos voláteis com relação aos compostos nitrogenados, há um equilíbrio entre as espécies NO, NO_2 e O_3 resultando em pouca formação de O_3 (reações 2.1 a 2.3).





Na presença de compostos orgânicos voláteis (COVs), as reações de oxidação são tipicamente iniciadas pelo $OH\cdot$ formado principalmente pela reação de fotólise do ozônio na presença do vapor d'água, mas também pode ser formado pela fotólise do ácido nitroso (HNO_2) e peróxidos (GILLANI et al., 1996).



A oxidação dos hidrocarbonetos (RH), por exemplo, que envolve os radicais peróxidos orgânicos (RO_2), gera compostos carbonila ($R'CHO$) cuja reação com o OH produz ozônio adicional (reações 2.6 a 2.8). Portanto, o radical hidroxila, pela a sua importância na remoção de um grande número de gases traços, pode ser usado como indicador da eficiência e variabilidade temporal da oxidação da atmosfera (LAWRENCE et al, 2001).



O reservatório de ozônio na troposfera é comumente definido como a família do oxigênio ímpar ($O_x \equiv O_3 + O + NO_2 + HO_2NO_2 + (2x)NO_3 + (3x)N_2O_5$) (JACOB et al., 2000). O ozônio tipicamente equivale a 90% do O_x , cuja produção se deve principalmente às reações entre os peróxidos e os óxidos de nitrogênio, como a reação 2.7. A perda de O_x se dá principalmente pela reação 2.5 e por:





Em suma, a formação do ozônio depende essencialmente da disponibilidade de radiação e das concentrações de COVs e NO_x. A Figura 2.5 mostra o padrão típico para grandes cidades norte americanas da taxa de produção do ozônio (ppb h⁻¹, onde ppb é partes por bilhão) e da concentração do ozônio (em ppb) em função da taxa de emissão e da razão de mistura de seus principais precursores, respectivamente. Essas isopletas foram calculadas utilizando os resultados de simulações dos modelos fotoquímicos tridimensionais para eventos isolados de poluição sobre os Estados Unidos (SILLMAN et al., 1990; SILLMAN et al., 2002) e mostram que a formação do ozônio é altamente não-linear. Essa não linearidade se deve a natureza da química dos NO_x e COVs que, além de governar a formação de ozônio, PAN e peróxidos, também é responsável pela concentração de OH[•] e, conseqüentemente, influencia a capacidade oxidante da atmosfera (GILLANI et al, 1996).

Em ambientes com alta concentração de NO_x, a taxa de formação do ozônio diminui não-linearmente com o aumento da concentração de NO_x e decresce mais rapidamente se forem reduzidas as emissões de COVs. Esse ambiente é comumente denominado COVs-limitante (razão baixa). Em ambientes com baixa concentração de NO_x, e alta concentração de COVs, a redução de NO_x é mais efetiva no controle do ozônio, até certo limiar. Esse ambiente é chamado NO_x-limitante (razão alta) (SILLMAN et al., 2003).

A previsão do impacto da redução de NO_x e COVs na formação de ozônio, em ambientes urbanos, possui largas incertezas, que podem ser relativamente reduzidas através de campanhas intensivas de medição, adicionalmente aos resultados de modelagem (SILLMAN et al., 1999). Além dos modelos de química e transporte Eulerianos, que possuem diferentes hipóteses e limitações, os inventários de emissão são também responsáveis pela larga incerteza na relação O₃-NO_x-COVs. A sensibilidade do ozônio depende criticamente das taxas de emissão de seus precursores e principalmente da especiação dos COVs, que varia conforme a metodologia adotada. Portanto, a literatura diverge na definição dos limites entre os regimes.

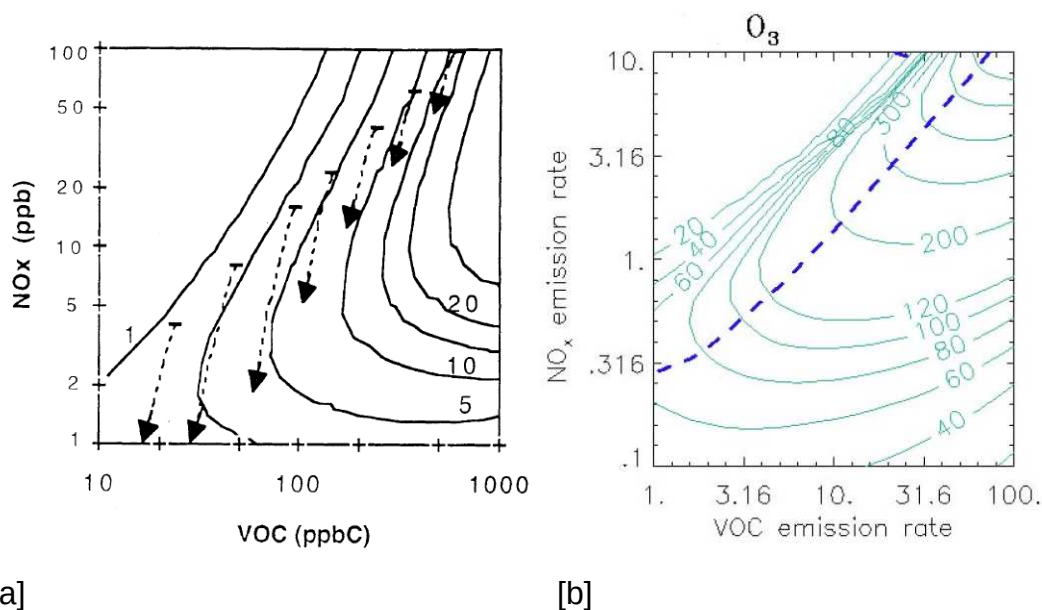


Figura 2.5 – [a] Isopletas da taxa de formação do ozônio (ppb h⁻¹) como função das concentrações de NO_x (ppb) e COVs (ppbC). As setas indicam a evolução das concentrações de NO_x e COVs, calculadas para o período das 9:00 às 17:00 local em atmosferas urbanas típicas das grandes cidades norte-americanas (SILLMAN et al., 1999). [b] Isopletas de ozônio (ppb) como função da taxa de emissão de NO_x e COVs (10¹² molec. cm⁻² s⁻¹), calculados em condições representativas ao horário de máxima formação de ozônio. A linha azul tracejada representa a transição entre os regimes NO_x e COVs limitantes (SILLMAN et al., 2003).

2.2 Poluição das principais megacidades sul-americanas

O rápido crescimento demográfico nas cidades sul-americanas, combinado com a falta de planejamento urbano e infraestrutura, acarretam graves problemas ambientais. A Figura 2.6 mostra as cidades do mundo com mais de 750.000 habitantes e a Tabela 2.1, apresenta uma lista com os principais centros urbanos sul-americanos e seus respectivos dados demográficos, Produto Interno Bruto (PIB) per Capita e Índice de Desenvolvimento Humano (IDH). Conforme pode ser visto, a lista de grandes cidades sul-americanas é encabeçada por seis grandes metrópoles com população superior a cinco milhões de habitantes. Dentre esses centros urbanos, destacam-se quatro por apresentarem características meteorológicas, demográficas e socioeconômicas

bem peculiares: Região Metropolitana de São Paulo, Rio de Janeiro, Santiago e Buenos Aires.

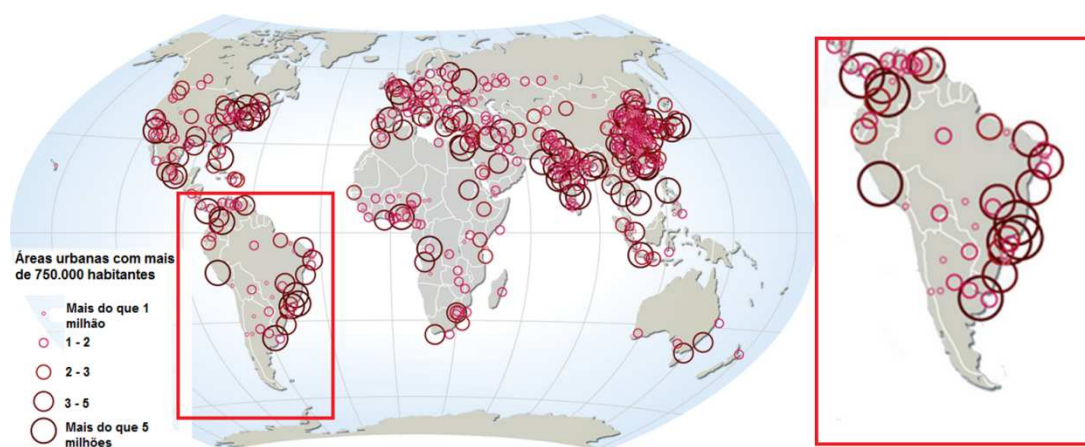


Figura 2.6 – Cidades com mais de 750.000 habitantes conforme relatório das Nações Unidas (UNFPA, 2007).

Fonte: <http://nordpil.com/go/resources/world-database-of-large-cities/> - Acessado em 26/05/2011.

Tabela 2.1 – Principais grandes cidades sul-americanas.

Cidade	População (milhões de habitantes) ¹	População metropolitana (milhões de habitantes) ¹	PIB per capita (Dolar EUA) ²	País	IDH ³
São Paulo	10,99	19,62	US\$12628	Brasil	0,841
Buenos Aires	3,05	15,80	US\$10494	Argentina	0,867
Rio de Janeiro	6,16	11,81	US\$8792	Brasil	0,842
Bogotá	6,84	9,60	US\$5637	Colômbia	0,880
Lima	7,61	8,48	US\$3613	Peru	0,744
Santiago	5,42	6,67	US\$8758	Chile	0,894
Belo Horizonte	2,43	5,03	US\$7009	Brasil	0,839
Caracas	4,56	4,95	US\$5167	Venezuela	0,877
Salvador	2,95	3,95	US\$6408	Brasil	0,805
Porto Alegre	1,43	3,96	US\$8710	Brasil	0,865
Recife	1,55	3,77	US\$ 5768	Brasil	0,797

Tabela 2.1 - Conclusão

Cidade	População (milhões de habitantes) ¹	População metropolitana (milhões de habitantes) ¹	PIB per capita (Dolar EUA) ²	País	IDH ³
Maracaibo	1,48	3,76	-	 Venezuela	0,874
Brasília	2,56	3,51	US\$22323	 Brasil	0,844
Fortaleza	2,47	3,43	US\$5907	 Brasil	0,786
Medellín	2,22	3,31	US\$6069	 Colômbia	0,801
Curitiba	1,83	3,26	US\$9558	 Brasil	0,856
Guayaquil	2,37	3,23	US\$4018	 Equador	0,724
Campinas	1,01	2,63	US\$4687	 Brasil	0,852
Cáli	2,12	2,60	US\$4578	 Colômbia	0,799
Valencia	1,79	2,30	-	 Venezuela	-
Belém	1,44	2,25	US\$5747	 Brasil	0,806
Goiânia	1,27	2,10	-	 Brasil	0,832
Manaus	1,71	2,01	-	 Brasil	0,774
Montevideo	1,33	1,87	US\$10458	 Uruguai	0,880
Barquisimeto	1,15	1,85	-	 Venezuela	-
Quito	1,40	1,84	US\$4181	 Equador	-
Santa cruz de La Sierra	1,59	1,77	US\$2030	 Bolívia	-
Barranquilla	1,15	1,69		 Colômbia	-
Córdoba	1,27	1,51	US\$8238	 Argentina	-

¹ Fontes: Instituto Brasileiro de Geografia e estatística (IBGE) [2010]; Instituto Nacional de Estatística e Informação (INEI) do Peru [2007]; Instituto Nacional de estatísticas (INE) da Venezuela [2009]; Instituto Nacional de estatísticas (INE) do Chile [2009]; Instituto Nacional de Estatística e Censos (INDEC) da Argentina [2010]

² Fontes: Banco Mundial [2009]; Municípios brasileiros: IBGE [2007].

³ Fontes: Programa das Nações Unidas para o desenvolvimento (PNUD)[2000/2005]

- Dado indisponível.

A Região Metropolitana de São Paulo (RMSP) constitui a sexta maior aglomeração urbana do mundo, e a maior do continente sul-americano. Resumidamente, a RMSP possui um alto potencial de formação de ozônio, principalmente associada à emissão veicular dos precursores. A Figura 2.7 mostra o número de dias com ultrapassagem do ozônio ao padrão de qualidade do ar de $160 \mu\text{g}/\text{m}^3$ estabelecido pela resolução do Conselho Nacional do Meio Ambiente CONAMA nº 03/90, registra dos pelas estações de monitoramento da Companhia Ambiental do Estado de São Paulo (CETESB). Como as variações nas emissões são pequenas de ano para ano, a ocorrência de maior ou menor número de episódios em determinados anos reflete principalmente as variações nas condições meteorológicas (CETESB, 2009).

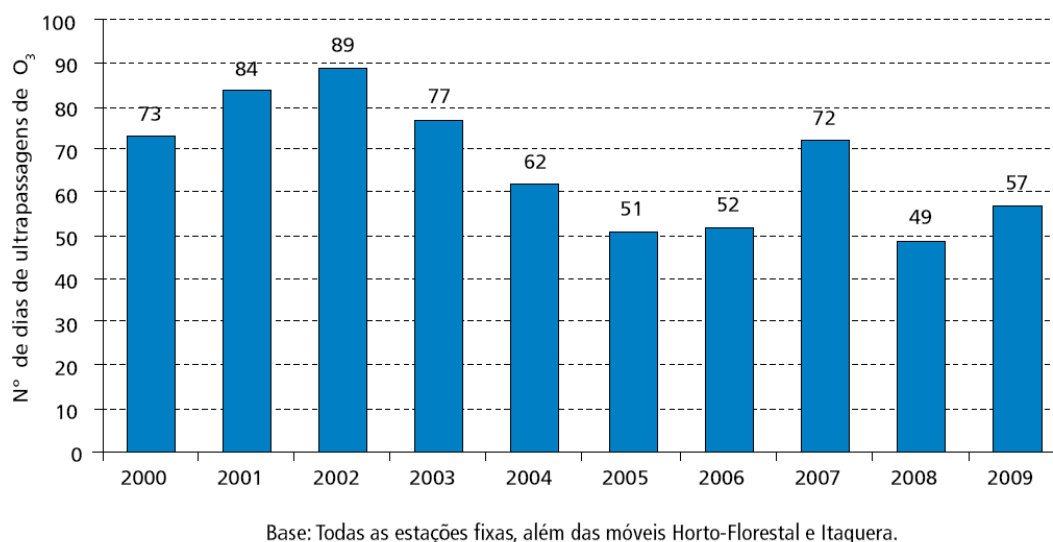


Figura 2.7 – Ozônio – Evolução do número de ultrapassagens do padrão – RMSP.

Fonte: CETESB, 2009.

As altas concentrações de ozônio na RMSP são registradas no período de 13 a 16 horas local (CETESB, 2000; GUARDANI e NASCIMENTO, 2004), com episódios de ultrapassagem predominantes nos dias com ventos fracos (Guardani e Nascimento, 2004) de direção norte, variando entre NE e NW (CETESB, 2000). Observou-se que a ocorrência de ultrapassagens do padrão de ozônio, no período de 1997 a 2001, ocorreu em geral nos dias com radiação solar acima de 600 W m^{-2} (MURAMOTO et al., 2003).

Por outro lado, a dispersão dos poluentes primários e secundários em Santiago do Chile é influenciada pela complexa topografia local. A cidade está localizada em um vale, confinada à leste pelos Andes com montanhas a oeste. Alguns resultados com simulações em alta resolução evidenciam que, durante o dia, os contaminantes são transportados a nordeste da cidade e ventilados a barlavento dos Andes e que a divergência e convergência desempenham um papel importante na dispersão vertical durante a noite (SCHMITZ, 2005). Elevadas concentrações de CO e Material Particulado com diâmetro inferior a 10 μm (MP10) são observadas no inverno, enquanto altas concentrações de ozônio são típicas do verão, com ultrapassagens ao padrão chileno de qualidade do ar ($160 \mu\text{g}/\text{m}^3$) em torno de 40% dos dias do ano (DICTUC, 2007).

Devido a favoráveis condições meteorológicas e topográficas, a poluição do ar em Buenos Aires não é tão severa quando comparada a outras cidades da América do Sul, como São Paulo e Santiago, e é muito influenciada pela variabilidade local do vento, com ênfase na brisa proveniente do Rio da Prata (VENEGAS e MAZZEO, 2011; MAZZEO e VENEGAS, 2004). Embora a rede principal de tráfego seja responsável por mais altas concentrações de NO_x , a contribuição da malha viária secundária é bem significativa. As fontes móveis também são as principais responsáveis pelas concentrações de MP10 em Buenos Aires, com significativa presença de metais e metalóides (BOGO et al., 2001).

2.3 Impacto regional e global das megacidades

De acordo com o Fundo de População das Nações Unidas (UNFPA, 2001), o número de megacidades no planeta praticamente quadruplicou. Ao comparar os anos de 2000 e 1975 observa-se um crescente aumento na distribuição demográfica de cidades localizadas em países subdesenvolvidos e emergentes. A população urbana projetada para 2015 na RMSP, por exemplo, ultrapassa os 20 milhões de habitantes (Tabela 2.2 – UNFPA, 2001). Esse número provavelmente foi subestimado, pois a população registrada pelo Instituto Brasileiro de Geografia e Estatística (IBGE) para a RMSP em 2010 é

de aproximadamente 19 milhões de habitantes. Muito têm sido feito na tentativa de se estudar o impacto dessas megacidades na qualidade do ar em escalas regional e global (AKIMOTO, 2003; GUTTIKUNDA et al., 2005; LAWRENCE et al., 2007), principalmente no que diz respeito ao transporte atmosférico intercontinental e internacional, porém, com o foco mais voltado aos países desenvolvidos.

A importância da poluição de ozônio em escala regional na América do Norte, Ásia e Europa, na qualidade do ar urbana e no crescimento de cultivos agrícolas começou a ser discutida por Chameides et al. (1994). Wild e Akimoto (2001) ampliaram o foco da pesquisa para a escala intercontinental, estudando o transporte e transformação química do ozônio entre esses continentes, através de experimentos que incluem testes de sensibilidade com o modelo de transporte químico do *Frontier Research System for Global Change / University of California* (FRSGC/UCI 3-D CTM). Os resultados deste trabalho indicam que o transporte vertical de ozônio e dos precursores emitidos no leste da Ásia ocorre principalmente na média e alta troposfera. Todavia, o transporte vertical dos produtos primários e secundários emitidos/formados na Europa é muito fraco e ficam confinados na baixa e média troposfera, enquanto que o ozônio e precursores emitidos na América do norte afetam a Europa via transporte vertical, zonal e meridional.

Enquanto o tempo de vida de precursores oxidantes como o NO_x e os COVs não ultrapassa dois dias na baixa troposfera, o ozônio possui um tempo de vida de dias a meses, e o transporte intercontinental tipicamente varia entre cinco e dez dias (WILD e AKIMOTO, 2001).

Guttikunda et al. (2005) estudaram a influência das emissões de megacidades no continente asiático, na primavera de 2001, usando o modelo de transporte químico regional STEM-2K1 (*Sulfur Transport Eulerian Model*). As principais megacidades asiáticas, que cobrem 2% do continente, contribuíram em média de 10 a 20% para a poluição primária e secundária sobre extensas áreas do território asiático.

Tabela 2.2 – População das megacidades mundiais em milhões de habitantes (UNFPA, 2001)

1975		2000		Projetada para 2015	
Tóquio	19,8	Tóquio	26,4	Tóquio	26,4
Nova York	15,9	Cidade do México	18,1	Mumbai	26,1
Xangai	11,4	Mumbai	18,1	Lagos	23,2
Cidade do México	11,2	São Paulo	17,8	Dhaka	21,1
São Paulo	10,0	Shanghai	17,0	São Paulo	20,4
		Nova York	16,6	Karachi	19,2
		Lagos	13,4	Cidade do México	19,2
		Los Angeles	13,1	Nova York	17,4
		Kolkuta	12,9	Jakarta	17,3
		Buenos Aires	12,6	Calcutá	17,3
		Dhaka	12,3	Delhi	16,8
		Karachi	11,8	Metro Manila	14,8
		Delhi	11,7	Xangai	14,6
		Jakarta	11,0	Los Angeles	14,1
		Osaka	11,0	Buenos Aires	14,1
		Metro Manila	10,9	Cairo	13,8
		Beijem	10,8	Istambul	12,5
		Rio de Janeiro	10,6	Beijem	12,3
		Cairo	10,6	Rio de Janeiro	11,9
				Osaka	11,0
				Tianjin	10,7
				Hyderabad	10,5
				Bangkok	10,1

Os efeitos das megacidades na capacidade oxidante da atmosfera e na qualidade do ar em escala global foram investigados recentemente por Buttler e Lawrence (2009), com o uso do modelo de transporte químico MATCH-MPIC (*Model of Atmospheric Transport and Chemistry-Max Planck Institute for Chemistry version*). Para o ano de 2000 e mais três cenários baseados no terceiro relatório do Painel Intergovernamental de Mudanças Climáticas (IPCC), foram realizados dois experimentos: o primeiro com todas as emissões, e o segundo sem incluir as emissões das megacidades. Observou-se que o efeito das emissões urbanas varia com a latitude: cidades localizadas nos extratropicos do hemisfério norte estão geralmente num regime químico de depreciação do ozônio; cidades tropicais geralmente produzem ozônio localmente; e cidades localizadas nos extratropicos do hemisfério sul mostram

um ciclo sazonal, mudando de moderada produção de ozônio no verão para moderada depreciação no inverno. Com relação à porcentagem de mudanças na composição anual global, os autores encontraram baixa influência das megacidades no O_3 e $OH^\cdot$ (~ 2%), porém com um significativo impacto nos compostos nitrogenados (NO_x , HNO_3 e PAN) da ordem de 8%.

2.4 Inventários de emissões

Conforme discutido anteriormente no item 2.1, a caracterização da poluição de origem urbana requer um conhecimento detalhado de suas fontes. O nível de especificidade é, de fato, a característica principal que define um inventário, e também a causa principal das incertezas.

Existem duas abordagens principais comumente utilizadas no desenvolvimento de inventários: a “de cima pra baixo” (do inglês *Top-Down*) e a “de baixo pra cima” (do inglês *Bottom-Up*) (EPA; 1999). A primeira considera a estimativa de emissões baseadas em informações nacionais ou regionais, cuja função ou relação com o propósito de cálculo seja conhecida. Como exemplos aplicados no Brasil, citam-se o primeiro Inventário Brasileiro de Emissões Antrópicas de Gases de Efeito Estufa (MCT, 2003) e o cálculo do balanço de carbono sobre o Balanço Energético Nacional (MCT e E&E, 2003). Tipicamente, essa abordagem é usada para estimativa de emissões em fontes área, quando os dados locais não estão disponíveis, o que se caracteriza em desvantagem em termos de exatidão. Por outro lado, tem a vantagem de requerer o mínimo de recursos na compilação das informações (PIRES, 2005). Nesta categoria, destacam-se dois inventários globais que comumente são usados em modelos químicos de larga escala: o RETRO (*REanalysis of TROpospheric chemical composition over the past 40 years* – <http://www.ceip.at/>) e EDGAR (*Emission Database for Global Atmospheric Research* - Olivier and Berdowski, 2001). O RETRO está disponível para o período 1960 – 2000, com resolução temporal mensal e resolução espacial de 0,5 graus. O projeto EDGAR provém emissões globais anuais para o ano base 2000 (com resolução espacial de $1^\circ \times 1^\circ$) e 2005 ($0,1^\circ \times 0,1^\circ$). Ambos os inventários usam dados nacionais de organizações como a IEA (*International Energy Agency*), porém possuem

importantes diferenças metodológicas, como por exemplo, a estimativa dos fatores de emissões e a classificação/distribuição das fontes.

A resolução espacial desses inventários globais de emissões é, normalmente, baixa, portanto, não consegue captar características específicas das emissões por região, temporalmente e espacialmente, principalmente no que diz respeito a representação dos centros urbanos. Gurjar et al. (2004) mostraram que as emissões individuais estimadas para as principais mega-cidades mundiais nos inventários globais RETRO, EDGAR e IPCC-AR4 (*Intergovernmental Panel on Climate Change - Fourth Assessment Report*) (DENTENER et al., 2005) apresentam variações significativas no que diz respeito a distribuição geográfica e magnitude por conta das diferenças nas suas metodologia. Em alguns casos particulares, como, por exemplo, a cidade de Tóquio, a discrepância chega a ser de um fator 2 (BUTLER et al., 2008).

Portanto, embora representem o estado da arte na estimativa das emissões em escala global, esses inventários comumente divergem na representação de grandes centros urbanos, o que pode comprometer significativamente suas aplicações em modelos de transporte químico. Em geral, esse problema é agravado em regiões que apresentam poucas informações em nível local e nacional, como a América Latina, embora esta represente uma fração considerável das emissões globais estimadas (Figura 2.8).

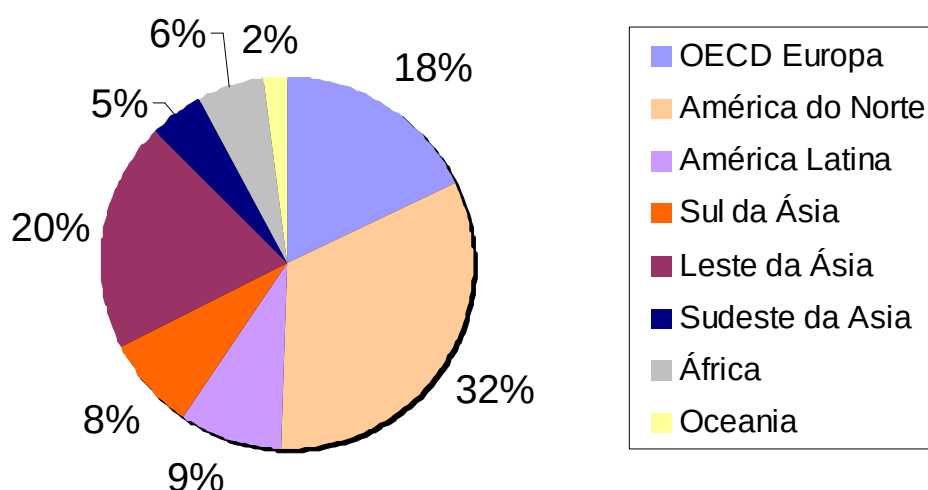


Figura 2.8 – Emissão antrópica total estimada no inventário RETRO.

A metodologia *Bottom-Up* é tipicamente usada para estimativa de emissões de fontes pontuais, porém, também pode ser usada para fontes área, desde que se tenha acesso às informações específicas. Esta abordagem requer maiores recursos para a coleta de informações locais e, naturalmente, resulta em estimativas mais representativas e acuradas das fontes. Por exemplo, no caso das fontes móveis, considera-se informações sobre a frota veicular, tráfego e configuração das vias. Além disso, os fatores de emissão dependem fortemente do padrão de condução do veículo, o qual pode variar dependendo da localidade (BERKOWICZ et al., 2006). A metodologia utilizada na estimativa das emissões de fontes móveis nas grandes cidades em geral envolve a estimativa do fluxo veicular através da contagem de veículos ou a utilização de modelos de transporte (REYNOLDS e BRODERICK, 2000).

A representação espacial das emissões impacta consideravelmente na simulação da dispersão e química dos poluentes na atmosfera, principalmente no que diz respeito ao seu ciclo diurno (TIE et al, 2010). O avanço da capacidade computacional e das técnicas de processamento em alto desempenho possibilitou o refinamento das resoluções espaciais e temporais nos modelos, tornando indispensável o desenvolvimento de metodologias de agregação das informações de inventários locais na modelagem nas escalas regional e mesmo global (e.g. BUTLER, 2008; LAWRENCE, 2007; TIE et al., 2010).

2.5 Modelos de previsão de tempo químico

A modelagem de processos químicos na atmosfera é uma ferramenta importante no diagnóstico e prognóstico da composição química atmosférica no âmbito global e regional. Atualmente, os esforços concentram-se na representação dos processos de emissão, transporte, remoção e transformação (reatividade química) dos diversos constituintes da atmosfera (gases e aerossóis), além de parametrizar seus impactos, como por exemplo, na transferência radiativa e na física de nuvens.

Modelos numéricos que contemplam a solução da química e transporte de gases e aerossóis interligados com a solução do estado atmosférico, representam o *estado da arte* em modelagem acoplada da atmosfera. Tais modelos são comumente denominados “modelos interligados” (ou do inglês, *on-line*) A utilização de um sistema único de coordenadas espaciais e a utilização de parametrizações físicas do modelo atmosférico faz com que o transporte das partículas de aerossol e gases traço seja consistente com o modelo atmosférico em si e minimiza erros numéricos associados às interpolações (FREITAS et al., 2009b).

Podem ser citados vários exemplos de modelos numéricos usados para estudos de tempo químico em escala regional.

O CFORS (*Chemical weather FORecast System*) (UNO et al., 2003a) é um modelo operacional de previsão de tempo químico, interligado com o modelo Regional de Mesoescala RAMS (PIELKE et al, 1992; COTTON et al, 2003). Uno et al. (2003a,b) mostraram que o modelo conseguiu reproduzir adequadamente relevantes aspectos das observações obtidas durante o experimento ACE-Asia (*Asian Pacific Regional Aerosol Characterization Experiment* - <http://saga.pmel.noaa.gov/Field/aceasia/>) . Atualmente o sistema CFORS roda operacionalmente no NIES (*National Institute for Environmental Studies* - <http://www-cfors.nies.go.jp/~cfors/index.html>), na previsão de CO, poeira e aerossóis entre outros, usando uma grade computacional que cobre toda a Ásia.

O modelo WRF-CHEM (*Chemical Weather Research and Forecasting Model* - GRELL et al, 2005) é uma versão do WRF (MICHALAKES et al., 2001) que permite a simulação da emissão, transporte, transformações químicas e deposição de gases traços e aerossóis. Trata-se de um modelo no estado da arte amplamente utilizado. Como exemplos de sua aplicação cita-se estudos associados à Cidade do México (TIE et al., 2007, 2009; YING et al., 2009) e China (TIE et al., 2009) , dentre outros.

O modelo CCATT-BRAMS (*Coupled Chemistry Aerosol and Tracer Transport model to the Brazilian developments on the Regional Atmospheric Modeling System*) [LONGO et al. 2009a, FREITAS et al., 2009a, LONGO et al., 2011] é um modelo de transporte químico atmosférico 3D *on-line*, capaz de simular as

emissões, transporte, processos de remoção de gases traços e aerossóis e a reatividade química na atmosfera. O modelo atmosférico BRAMS é baseado no RAMS, com várias melhorias associadas com a representação de cúmulos de convecção, inicialização de umidade do solo, esquema de superfície ajustada para o continente sul-americano, entre outros. Além do transporte na escala da grade, estão incluídos os efeitos da turbulência na escala sub-grade, o transporte convectivo guiado pela convecção rasa e profunda, a ascensão da pluma associada com focos de vegetação, entre outros. O capítulo III traz uma discussão mais detalhada desse modelo.

Com relação aos modelos numéricos usados para estudos de tempo químico em escala global cita-se: o MOZART (*Model of Ozone and Related Chemical Tracers*) (HOROWITZ et al., 2003), operacionalmente na sua segunda versão que assimila os campos meteorológicos gerados pelo *Middle Atmosphere version of the Community Climate Model* (MACCM3) a cada 3 horas, e possui resolução horizontal de $2,8^\circ \times 2,8^\circ$ com 34 níveis verticais; o *modelo Geórgia Tech/Goddard Global Ozone Chemistry Aerosol Radiation and Transport model* (GOCART), que assimila os campos meteorológicos gerados pelo *Goddard Earth Observing System Data Assimilation System* (GEOS DAS) e atualmente roda com resolução horizontal de $2^\circ \times 2,5^\circ$ ou $1^\circ \times 1^\circ$ com 20 – 55 níveis sigma na vertical (dependente da versão do GEOS DAS). Seus principais produtos são: espessura óptica do aerossol e concentração para componentes individuais de aerossóis como sulfato, carbono negro e orgânico, poeira e sal marinho.

Os modelos numéricos que resolvem a química e transporte de gases e aerossóis independente da solução do estado atmosférico são conhecidos como desacoplados (*off-line*). Os modelos desacoplados são computacionalmente menos onerosos em relação aos modelos interligados e podem ser usados, por exemplo, para análises de sensibilidade de mecanismos químicos, em situações nas quais o impacto da meteorologia é mínimo (DALVI, 2007). Porém, os modelos desacoplados apresentam erros numéricos associados à interpolação em (x,y,z,t), o que pode levar, dentre outros problemas, à violação da conservação de massa (FREITAS et al., 2009b).

Para uma descrição mais realista da atmosfera, em modelos de tempo químico é de suma importância utilizar uma abordagem que contemple a retroalimentação dos processos químicos e atmosféricos. Nessa característica reside a principal diferença entre os modelos interligados e desacoplados. Por exemplo, Chapman et al, (2008) utilizaram o modelo do tipo interligado WRF-CHEM para avaliar a influência local e regional de fontes pontuais de aerossóis, levando em conta os efeitos direto e indireto dos aerossóis, em particular, a retroalimentação do modelo atmosférico com os efeitos indiretos dos aerossóis nas nuvens e na radiação incidente. A inclusão das emissões dos aerossóis e dos esquemas numéricos que prognosticam sua influência direta e indireta impactou consideravelmente na simulação da formação e das propriedades das nuvens e aumentou em 31% a precipitação total com relação ao experimento controle, que não inclui esses aspectos.

2.6 Formulação dos modelos de previsão do tempo químico

O sistema de equações fundamentais, que descrevem os processos atmosféricos, pela física clássica, não possui solução analítica, e é resolvido numericamente através de metodologias de discretização numérica, a partir da qual se obtém a solução em pontos de grade. Resumidamente, pode ser dito que esta corresponde a uma média estatística de cada variável prognóstica na célula do espaço-tempo discretizado. Comumente, utiliza-se a decomposição de Reynolds para a solução numérica das equações atmosféricas, na qual cada variável (ν) é separada em termos de sua média ($\bar{\nu}$) e de sua flutuação em torno desta (ν').

$$(\nu) = (\bar{\nu}) + (\nu') \quad (2.11)$$

Em função do espaçamento da grade e do intervalo de tempo adotado, dividem-se os fenômenos atmosféricos em duas famílias principais, dependendo se sua solução é explícita ou não: resolvidos e não-resolvidos.

Para se obter o prognóstico final em modelos *on-line*, resolve-se a tendência total através da solução individual de cada termo de tendência local. Portanto, a razão de mistura de uma determinada espécie é influenciada tanto por processos não-resolvidos, como a turbulência e a convecção, quanto por processos resolvidos na escala da grade, como a advecção. A equação 2.2 mostra a solução final da razão de mistura para uma determinada espécie como a soma das soluções parciais. A solução final pode ser aproximada compondo-se paralelamente ou seqüencialmente as soluções parciais (Freitas et al., 2009b)

$$\left(\frac{\partial \bar{v}}{\partial t}\right) = \left(\frac{\partial \bar{v}}{\partial t}\right)_{adv} + \left(\frac{\partial \bar{v}}{\partial t}\right)_{turb\ CLP} + \left(\frac{\partial \bar{v}}{\partial t}\right)_{conv} + \left(\frac{\partial \bar{v}}{\partial t}\right)_{chem} + \left(\frac{\partial \bar{v}}{\partial t}\right)_{emiss} + \left(\frac{\partial \bar{v}}{\partial t}\right)_{dep\ seca} + \left(\frac{\partial \bar{v}}{\partial t}\right)_{dep\ úmida} \quad (2.12)$$

onde os índices *adv*, *turb CLP*, *conv*, *chem*, *emiss*, *dep seca* e *dep úmida* referem-se aos processos de advecção na escala da grade, turbulência dentro da camada limite planetária (CLP), transporte convectivo por nuvens rasas e profundas, química, emissão, deposição seca e deposição úmida.

O transporte resolvido numericamente por esquemas de advecção deve conservar a massa, ser monotônico, isto é, não gerar oscilações de Gibbs, manter a solução positivo definida e não demandar excessiva informação lateral para compor os gradientes necessários para a solução numérica (Freitas et al., 2009b). Já o transporte na escala sub-grade associado aos processos de difusão da CLP, é parametrizado aplicando-se a teoria K, na qual os fluxos turbulentos são proporcionais ao gradiente da quantidade média transportada através de um coeficiente de difusividade (K). Seguindo Tirabassi (1997), essa teoria pode ser escrita como:

$$\frac{d\bar{C}}{dt} = \frac{\partial \bar{C}}{\partial t} + u \frac{\partial \bar{C}}{\partial x} + v \frac{\partial \bar{C}}{\partial y} + w \frac{\partial \bar{C}}{\partial z} = \frac{\partial}{\partial x} \left(k_x \frac{\partial \bar{C}}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(k_y \frac{\partial \bar{C}}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(k_z \frac{\partial \bar{C}}{\partial z} \right) \quad (2.13)$$

onde $\bar{C}$ é a componente média da concentração, e K_x , K_y e K_z são coeficientes de difusão longitudinal, lateral e vertical respectivamente.

Esquemas que seguem esta abordagem são muito dependentes dos coeficientes de difusividade, que podem ser especificados como uma função da rugosidade da superfície, estabilidade termodinâmica da atmosfera, cisalhamento do vento, dentre outros.

Além do transporte, os gases e partículas em suspensão sofrem processos de deposição. A deposição seca de gases e partículas consiste no transporte destes materiais da atmosfera para a superfície, controlada pela turbulência atmosférica, propriedades químicas das espécies e pela natureza da superfície receptora (FREITAS et al., 2009b). O processo de deposição úmida ocorre quando o material em questão está embebido dentro de uma porção de água condensada em precipitação depositando-o sobre a superfície abaixo. Para parametrizar esse processo, assume-se a lei de Henry, que estabelece um estado de equilíbrio entre as fases gasosa e aquosa.

Os poluentes primários emitidos para a atmosfera sofrem processos químicos cinéticos e de foto-dissociação que modificam localmente a razão de mistura das espécies emitidas e geram poluentes secundários. A colisão entre moléculas é a característica que define o processo cinético. Já na foto-dissociação há interação dos fótons com as moléculas, levando-as a um estado excitado e, potencialmente, uma dissociação.

Um estudo detalhado da formação de oxidantes na troposfera inclui considerar uma vasta quantidade de espécies envolvidas em milhares de reações químicas. Entretanto, esse elevado número de espécies e reações, resulta em uma limitação para a sua implementação em modelos numéricos de previsão de tempo químico.

Sob essa perspectiva, o mecanismo químico é um dos mais importantes componentes dos modelos regionais para se entender o efeito das emissões antrópicas e biogênicas na qualidade do ar (STOCKWELL, 1986). Existem mecanismos com alto detalhamento químico, como o MCM (*Master Chemical Mechanism*) (JENKIN et al., 1997) com aproximadamente 2400 espécies químicas, que, entretanto, demandam tempo de processamento e requisito

memória RAM muito altos (GROSS et al., 2003). Portanto, agregar as espécies químicas em grupos, com base no peso molecular, reatividade ou outras características físico-químicas, foi a solução encontrada para simular os processos de reação química nos atuais modelos atmosféricos regionais.

Vários estudos comparando os diferentes mecanismos químicos existentes para a modelagem da qualidade do ar têm sido publicados nos últimos anos (e.g. STOCKWELL, 1986; KUHN et al., 1998, GROSS et al., 2003). A Tabela 2.3 lista alguns dos principais mecanismos químicos de processos troposféricos fase-homogênea utilizados em modelos regionais de qualidade do ar.

Tabela 2.3 – Mecanismos químicos troposféricos em modelos numéricos de qualidade do ar.

Mecanismo/ Referência	Número de espécies Inorgânicas	Número de espécies orgânicas	Número de reações de fotólise	Número de reações químicas
RACM¹				
Stockwell et al., 1997	21	56	23	214
RADM2²				
Stockwell et al., 1990	21	42	21	137
EMEP³				
Simpson et al., 1997	22	57	24	117
RELACS⁴				
Crassier et al., 2000	12	35	17	111
CBM-IV⁵				
Gery et al., 1988	14	22	15	88
SAPRC⁶				
Carter, 1990	24	48	30	184

¹ Regional Atmospheric Chemistry Mechanism

² Regional Acid Deposition Model, version 2

³ Co-operative Programme for Monitoring and Evaluation of the Long-Range Transmission of Air Pollutants in Europe

⁴ Regional Lumped Atmospheric Chemical Scheme

⁵ Carbon Bond Model IV

⁶ Statewide Air Pollution Research Center

2.7 Representação de processos químicos nas escalas local e regional.

A boa representatividade dos processos químicos na atmosfera em modelos regionais depende de vários fatores: o nível de especificidade e distribuição das emissões (discutido no item 2.4), o tipo de abordagem para a inclusão dos processos químicos que ocorrem na baixa troposfera nos mecanismos químicos, o nível de detalhamento das parametrizações do modelo atmosférico, dentre inúmeros outros fatores. Todos estes fatores tornam a previsão do tempo químico uma ferramenta complexa e dependente da capacidade computacional disponível. Essa relação comumente é expressa em termos de resolução espacial e temporal. Tie et al. (2010) estudaram o impacto da resolução espacial do modelo e dos inventários de emissão na simulação da formação do ozônio sobre a cidade do México, com o modelo WRF-CHEM. Os resultados sugerem importante impacto da resolução no cálculo do ozônio e precursores, e estabeleceram 24 km como limite máximo para uma boa representatividade local da distribuição espacial e do comportamento temporal desses poluentes em modelos de qualidade do ar. A melhoria na resolução espacial dos inventários de emissões também impactou positivamente os resultados.

Outro fator de extrema importância nas simulações de qualidade do ar é a escolha do mecanismo químico. Gross et al. (2003) compararam três dos esquemas químicos comumente utilizados em modelagem regional descritos na Tabela 2.4 (EMEP, RACM e RADM2). Os mecanismos foram aplicados para simulações de cenários com e sem emissões. Os resultados mostraram valores próximos de ozônio e precursores entre os esquemas químicos sobre áreas rurais, porém, considerável diferença sobre a área urbana, especialmente para simulações com emissões.

2.8 Geração de cenários de emissões associadas a projeção da frota veicular.

O ozônio produzido nas cercanias de áreas urbanas provém de uma complexa interação entre CO, NO_x e COVNM, emitidos em sua maioria (acima de 90%) por atividade veicular. Portanto, para produzir cenários futuros de formação e destruição de ozônio nas escalas local/regional, é imprescindível estimar o comportamento da frota circulante de veículos para cada cidade e prever seu comportamento para as próximas décadas. Porém, estimar a evolução da frota veicular, em nível nacional ou local, depende de muitos fatores socioeconômicos, e principalmente da oferta/demanda de energia planejada para o futuro. Construir um cenário de planejamento energético significa organizar, sistematizar e delimitar as incertezas, observando os pontos de mudança dos rumos de uma dada evolução de situações. Essa seção elucida sobre a construção da matriz energética brasileira e a projeção da oferta interna de energia no Brasil, discutidos nos itens 2.8.1 e 2.8.2, respectivamente.

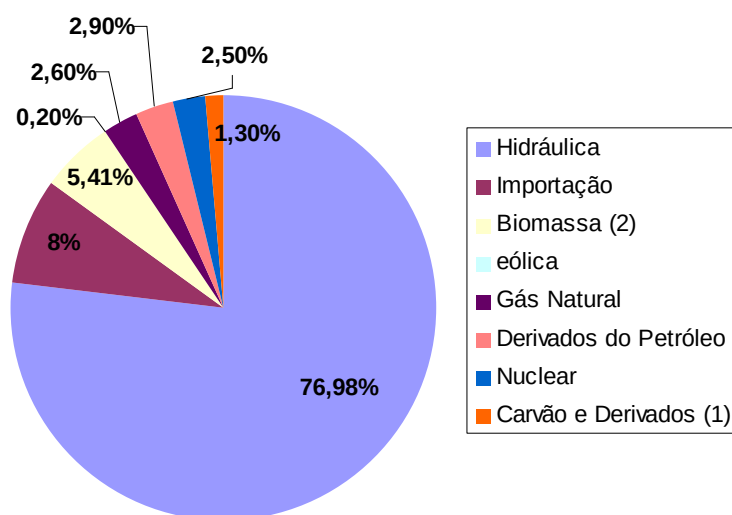
2.8.1 Matriz Energética brasileira

A atual matriz energética brasileira baseia-se no balanço energético nacional 2010, ano base 2009, e anos anteriores, da Empresa de Pesquisa Energética (EPE) (<https://ben.epe.gov.br/>), que quantifica toda a oferta e o consumo de energia no Brasil, contemplando atividades ligadas à exploração e produção de recursos energéticos primários, à conversão em formas secundárias, às contas de importação e exportação, à distribuição e ao uso final da energia.

Conforme balanço energético, a energia hidráulica responde por 76,9% da oferta de energia interna no Brasil (Figura 2.9). No período de 1974 a 2005, a potência instalada em usinas hidrelétricas foi acrescida de 57.134 MW (EPE, 2007). Estima-se que o potencial de geração hídrica no Brasil seja da ordem de 260.000 MW (ELETROBRÁS, 1992), sendo que 70% encontram-se nas Bacias do Amazonas, Paraná e Tocantins/Araguaia. Do total do potencial disponível,

30% estão explorados (usina em operação, em construção ou em processo de licenciamento).

Do total de importação das fontes de energia primária, 53,4% consiste em petróleo (19.368 mil tep), 25,8% em carvão metalúrgico (9.376 mil tep) e 20,7% em gás natural (7.518 mil tep). Com relação às fontes de energia secundária, o Brasil importa Nafta (3.958 mil tep em 2009), óleo diesel (2.981 mil tep em 2009), GLP (1.562 mil tep em 2009), Urânio (3.707 mil tep em 2009), Querosene (1.044 mil tep em 2009), dentre outros. Toda importação representou 8,1% da oferta interna de energia elétrica no Brasil no ano base de 2009.



(1) Inclui gás de coqueria

(2) biomassa inclui lenha, bagaço de cana, lixo e outras recuperações

Figura 2.9 – Oferta interna de energia elétrica por fonte, em 2009. Fonte: EPE, 2010.

Outros potenciais geradores no Brasil são: biomassa, nuclear e eólica. A produção de eletricidade a partir da fonte eólica alcançou 1.238,4 GWh em 2009, com um incremento da potência instalada para geração eólica no país de 45,3%. Conforme EPE (2007), houve também um aumento de 11,2% na produção nacional de cana de açúcar, gerando um total 33,7 milhões de toneladas. Desse total produzido, 73% foram utilizados na forma de álcool hidratado.

2.8.2 Plano Energético Nacional para 2030

O Plano Nacional de Energia (EPE, 2007) é uma iniciativa do Ministério de Minas e Energia, através da EPE, com o objetivo de atender a crescente necessidade de um novo ordenamento setorial para suprir as recentes mudanças implementadas no setor elétrico e garantir atendimento às projeções futuras.

O estudo compõe-se em quatro grandes etapas: formulação de cenários macroeconômicos para a economia nacional e mundial; estudo de demanda; estudo de oferta e integração dos estudos de oferta e demanda. Essa última etapa foi realizada com a utilização do modelo MESSAGE (*Model for Energy Supply Strategy Alternatives and their General Environmental Impacts*) (MESSNER E STRUBEGGER, 1995), discutido com maiores detalhes no capítulo VI, que juntamente com os demais módulos, permitiu formular hipóteses de projeção da matriz energética para os próximos 25 anos.

A formulação dos cenários nacionais levou em conta dois fatores: as potencialidades, que representam a consolidação das instituições e da estabilidade macroeconômica, elevado potencial de crescimento do mercado interno, biodiversidade e recursos naturais em abundância, dentre outros; e os obstáculos a superar, que representam a necessidade da expansão da infraestrutura, desigualdades sociais, fatores de produção com baixa competitividade, elevado custo do capital, dentre outros.

A Tabela 2.4 mostra os cenários nacionais estudados pelo EPE. No cenário A, o desenvolvimento econômico leva a uma redução das disparidades sócio-regionais e a um aumento do poder aquisitivo da população, com impacto positivo sobre a distribuição de renda no país. No cenário B1, o crescimento da economia brasileira supera um crescimento mais moderado da economia mundial, fruto de uma gestão mais ativa no encaminhamento dos problemas internos. No cenário B2, o crescimento do país está muito dependente do cenário econômico mundial, por causa da dificuldade de enfrentar os problemas estruturais internos. No cenário C, o país se ressentir de um cenário

mundial conturbado, onde os fluxos de capitais são virtualmente interrompidos e o comércio internacional se expande a taxas modestas ou mesmo se retrai em alguns períodos (EPE, 2007).

Tabela 2.4 - Caracterização dos cenários nacionais. Fonte: EPE, 2007.

	Denominação dos cenários			
	A	B1	B2	C
	Na crista da onda	Surfando a Marola	Pedalinho	Náufrago
INFRA-ESTRUTURA	Redução significativa dos gargalos	Gargalos parcialmente reduzidos	Permanência de gargalos importantes	Deficiência relevante
DESIGUALDADES DE RENDA	Redução muito significativa	Redução relevante	Redução pequena	Manutenção
COMETITIVIDADE DOS FATORES DE PRODUÇÃO	Ganhos elevados e generalizados	Ganhos importantes porém seletivos	Ganhos pouco significativos e concentrados em alguns setores	Baixa, embora com ganhos concentrados em alguns setores
PRODUTIVIDADE TOTAL DA ECONOMIA	Elevada	Média para elevada	Média para reduzida	Reduzida

A quantificação dos cenários macroeconômicos e a posterior integração dos estudos de demanda e oferta associados permitiram a construção da matriz energética e dos balanços energéticos consolidados até 2030. Com relação ao consumo final de energia, os derivados do petróleo devem permanecer na liderança da matriz, ainda que sua participação caia para algo entre 35% e 37%, lembrando que uma parcela do diesel será oriunda do processamento de óleos vegetais (H-Bio). Produtos da cana ganham participação, em razão do crescimento do etanol (para 14%), e o gás natural tende a responder por aproximadamente 8% do consumo final de energia, com relação a 6% em 2005. O biodiesel, dependendo do cenário, surge com participação de 1% a 2,5% do total. A eletricidade consolida-se como segunda forma de energia mais utilizada, com sua participação elevando-se para a faixa de 22% a 24%.

3 INVENTÁRIO REGIONAL DE EMISSÃO VEICULAR NA AMÉRICA DO SUL

3.1 Introdução

Na região metropolitana de São Paulo as fontes móveis são responsáveis por 95% da emissão total de monóxido de carbono (CO) e por 98% da emissão total dos óxidos de nitrogênio (NO_x) (CETESB, 2005). Similar contribuição relativa é encontrada na maioria das cidades brasileiras e mesmo sul-americanas.

A distribuição espacial e temporal das emissões possui um impacto significativo nas simulações de qualidade do ar. Os inventários globais RETRO e EDGAR de emissão antrópica urbana e industrial possuem baixa resolução espacial, portanto, não conseguem captar características específicas das emissões por região, temporalmente e espacialmente, principalmente no que diz respeito à representação dos centros urbanos. O problema se agrava no continente Sul-Americano onde as informações nacionais são mais escassas e consequentemente as estimativas inferem maior erro.

Diante da necessidade de se atualizar as bases de dados globais RETRO/EDGAR para a América do Sul e agregar as informações locais disponíveis, desenvolveu-se um inventário regional de emissões urbanas para a América do Sul em três etapas: levantamento dos inventários locais disponíveis, extrapolação para as cidades não-inventariadas e distribuição espacial das emissões. A construção e avaliação deste inventário estão descritos nas seções seguintes deste capítulo e no Anexo A, o qual contém o artigo publicado sobre este trabalho.

3.2 Dados e Metodologia

3.2.1 Inventários locais de emissões veiculares

A contribuição individual das emissões provenientes da frota veicular nas grandes cidades sul-americanas foi avaliada a partir das informações disponíveis dos inventários locais para algumas cidades dos estados de São Paulo e Rio de Janeiro, Região Metropolitana de Porto Alegre, Região metropolitana de Buenos Aires, cidade de Santiago e Região metropolitana de Bogotá. A seguir descrevemos alguns destes inventários locais.

Estado de São Paulo: O monitoramento da qualidade do ar no estado é realizado pela Companhia de Tecnologia de Saneamento Ambiental do Estado de São Paulo (CETESB - <http://www.cetesb.sp.gov.br>). Os relatórios de emissões produzidos pela CETESB sintetizam a contribuição relativa das várias fontes emissoras para monóxido de carbono (CO), óxidos de nitrogênio (NO_x), hidrocarbonetos (HC), óxidos de enxofre (SO_x) e Material Particulado (MP). As estimativas de emissões por tipo de fonte são baseadas nas informações disponíveis no ano-referência do relatório. Alguns dos fatores de emissões foram extraídos da Agência de Proteção Ambiental Norte-Americana (EPA), enquanto os demais foram obtidos de ensaios das próprias fontes (CETESB, 2005). As informações de emissões por fontes móveis, disponíveis no relatório da CETESB e usadas nesse estudo, abrangem as seguintes cidades: Região Metropolitana de São Paulo (23S - 46W), com uma área urbanizada de 1.550 km² e uma população da ordem de 19 milhões de habitantes; cidade de Sorocaba (23,5S - 47,5W) localizada a 60 quilômetros a oeste da capital São Paulo, com uma área de 443 km²; São José dos Campos (23,2S - 45,9W), com uma população em torno de 540 mil habitantes, localizado no vale Paraíba, distante cerca de 70 quilômetros a nordeste da cidade de São Paulo; e, finalmente, a Região Metropolitana de Campinas (22,9S - 47,1W), que engloba cidades com altos índices de industrialização, cuja sede é o município de Campinas, com aproximadamente 970 mil habitantes.

Estado do Rio de Janeiro: A Fundação Estadual de Engenharia do Meio Ambiente (FEEMA) (<http://www.feema.rj.gov.br/>) monitora a qualidade do ar e inventaria as emissões de poluentes no estado do Rio de Janeiro. Este levantamento das fontes emissoras inclui os poluentes regulamentados (material particulado, dióxido de enxofre, monóxido de carbono, óxidos de nitrogênio e hidrocarbonetos) provenientes de atividades industriais e veículos automotores (FEEMA, 2004). O Rio de Janeiro é o quarto menor estado brasileiro, porém, detém o segundo lugar no PIB nacional. A Região Metropolitana do Rio de Janeiro (22,9S - 43,2W) possui uma extensão territorial de aproximadamente 6.500 km², sendo que a região mais densamente urbanizada compreende uma área de aproximadamente 700 km².

Região metropolitana de Porto Alegre: Teixeira et al. (2008) fez um estudo das emissões de fontes móveis de CO, SO_x, NO_x, MP e aldeídos para a Região Metropolitana de Porto Alegre (30S - 51,2W), localizada na região sul do Brasil. A metodologia utilizada segue os padrões usados pela EPA e o inventário refere-se à frota veicular circulante em 2004.

Região metropolitana de Buenos Aires: As emissões de CO e NO_x são provenientes do trabalho de D'angiola (2009), para veículos circulantes no ano 2006. O trabalho realizado é do tipo “Bottom-Up” e usa a metodologia europeia COPERT (COMputer Programme to calculate Emissions from Road Transport - NTZIACHRISTOS e SÂMARAS, 2000) para a classificação da frota veicular e para o cálculo da emissão total, estimado pela soma das emissões quente, fria e evaporativa.

Cidade de Santiago: O inventário para a cidade de Santiago foi regulamentado pela Comissão Nacional de Meio Ambiente do governo do Chile (CONAMA – <http://www.conama.cl>) e utiliza metodologia “Bottom-Up” (CORVALÁN et al., 2002). Os fatores de emissão usados são provenientes do modelo COPERT III (NTZIACHRISTOS e SAMARAS, 2000) e de medidas locais.

Região metropolitana de Bogotá: A informação para Bogotá, Colômbia, foi obtida da atualização do inventário de fontes móveis proposta por Rodriguez e

Benhetz (2009), cujos fatores de emissão são em sua maioria obtidos de dados de campanhas.

3.2.2 Extrapolação das informações locais

Como o número de cidades que possuem inventários de emissões veiculares é muito pequeno com relação ao número de cidades de médio e grande porte do continente sul-americano os inventários locais existentes foram extrapolados para os demais municípios. Para tanto, os fluxos de emissões de CO e NO_x por fontes móveis das cidades inventariadas foram cruzados com dados socioeconômicos buscando uma correlação significativa que permitisse extrapolar essas emissões para localidades não inventariadas. Foram avaliadas informações municipais do índice de desenvolvimento humano (IDH), do produto interno bruto (PIB), óbitos por distúrbios respiratórios, densidade populacional urbana e densidade veicular, dentre outros índices socioeconômicos.

3.2.3 Distribuição espacial das emissões urbanas

A partir do banco de dados regional já atualizado com as informações de emissões veiculares, tanto dos inventários disponíveis quanto das informações extrapoladas para as demais cidades brasileiras, trabalhou-se na sua melhor representação espacial em alta resolução. O objetivo desta representação foi gerar um inventário consistente para a escala local e regional, bem como permitir uma avaliação do impacto desta representação na escala regional.

Na versão original do pré-processador de emissões (FREITAS et al., 2011) do CCATT-BRAMS, descrito com mais detalhes no item 3.2.6, os dados dos inventários globais RETRO/EDGAR são interpolados na grade do modelo através do esquema numérico “vizinho mais próximo”, não representando detalhadamente o limite urbano. Neste trabalho propõe-se um novo esquema, no qual a área urbana é identificada por um algoritmo numérico, baseado em Graham (1972), que reconhece os pontos pertencentes a um intervalo de valores pré-definido, fazendo uma varredura a partir de um ponto central, geralmente definido como o centro da área urbanizada. Adaptou-se esse

algoritmo para ler o mapa de cobertura do solo derivado das imagens do instrumento AVHRR (*Advanced Very High Resolution Radiometer*) a bordo do satélite da NOAA (*National Oceanic and Atmospheric Administration*), proveniente do GLCF (*Global Land Cover Facility*) (<http://glcf.umiacs.umd.edu/data/landcover>). A banda 13 (urbana e construção) foi utilizada como padrão para a captura. O algoritmo desenvolvido por Graham (1972), basicamente, é aplicado como uma solução numérica para obtenção de um polígono convexo, no qual dado um conjunto finito $S=\{S_1,...,S_n\}$, acha-se um ponto P no interior deste plano, expressa-se cada $S_i \in S$ em coordenadas polares, com origem em P e ângulo 0, e procede-se com uma série de comparações por vizinhos mais próximos, que depende do seu ângulo com relação ao ponto P. Dependendo da resolução, cidades distintas porém muito próximas, podem ser mescladas e representadas por uma única “mancha urbana”. Isso é resolvido aplicando um raio de influência que delimita a atuação do algoritmo à área urbana efetiva do município. Posteriormente aplica-se um algoritmo para verificar quais pontos da grade estão dentro do polígono de referência obtido e procede-se a distribuição das emissões nessa área. Essa ferramenta também permite agregar áreas pré-definidas por outros processos de georreferenciamento, de acordo com a necessidade de detalhamento das emissões e, portanto, é uma metodologia aplicável em várias resoluções.

3.2.4 Avaliação do inventário

Para avaliar o processo de agregação e distribuição das emissões de fontes móveis no inventário regional, analisou-se sua aplicação na modelagem numérica da química atmosférica em escala regional, utilizando-se o modelo CCATT-BRAMS.

Os experimentos realizados são representativos das estações de verão (mês de janeiro), inverno (mês de julho) e primavera (mês de outubro) no Hemisfério Sul, para o ano de 2005. Foram realizadas duas simulações por período, a primeira com dados de emissões antrópicas baseada nos inventários RETRO/EDGAR, chamada CONTROLE, e a segunda com o inventário regional de emissão veicular gerado neste trabalho, chamada SA-INV. Utilizaram-se três grades com 80, 20 e 5 km de espaçamentos horizontais, sucessivamente

aninhadas e interagentes pelo método 2-way. A grade de 80 km cobre uma extensa área da América do Sul, entre as latitudes de 14° Sul e 32° Sul. A grade de 20 km cobre principalmente as regiões sudeste e centro oeste do Brasil. A mais fina cobre os estados de Minas Gerais e São Paulo, abrangendo suas respectivas capitais, Belo Horizonte e Região Metropolitana de São Paulo (Figura 3.1). Os experimentos foram conduzidos com 35 níveis na vertical. A primeira camada possui espessura de 100 metros que aumenta nos demais níveis através de uma progressão geométrica com taxa de 1.1. Ambas as simulações possuem condições iniciais e de contorno atmosférica do modelo global T126L28 (CPTEC/INPE). Foi introduzido um perfil vertical médio de algumas espécies como condição inicial química, baseado numa climatologia das análises do modelo global MOCAGE (*Multi-scale Chemistry and Transport Model*) (JOSSE et al., 2004; TEYSSÈDRE et al., 2007) para o continente sul-americano.

Para a avaliação dos resultados das simulações foram utilizados dados de observações ao nível de superfície de O₃, CO e NO_x realizadas nas regiões metropolitanas de São Paulo (Sistemas de Informações da Qualidade do Ar da CETESB) (http://www.cetesb.sp.gov.br/Ar/ar_qualar.asp) e Belo Horizonte (Fundação Estadual do Meio Ambiente de Minas Gerais) (<http://www.feam.br>).

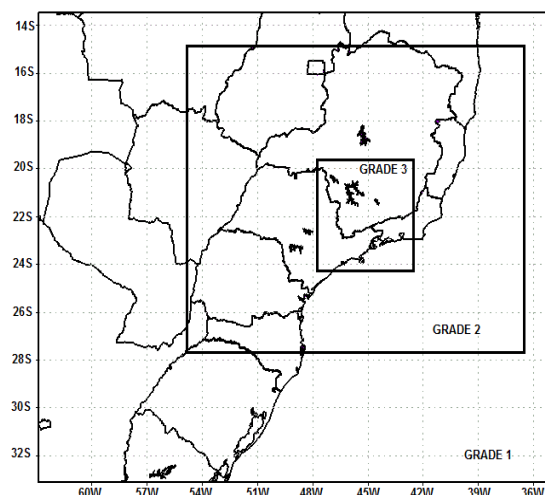


Figura 3.1 – Configuração das grades dos experimentos CONTROLE E SA-INV.

3.2.5 Modelo CCATT-BRAMS

A ferramenta escolhida para o estudo numérico da composição química atmosférica na América do Sul foi o CCATT-BRAMS. O CCATT é um modelo Euleriano de transporte atmosférico que prognostica a razão de mistura de gases traço através da solução da equação da conservação de massa, que inclui os processos de advecção, mistura turbulenta na camada limite planetária (CLP), deposição seca e úmida, ascensão da pluma associada com focos de queimadas, e transporte vertical associado a convecção rasa (não precipitante) e profunda. Além disso, o modelo inclui reatividade química e interação de aerossóis com a radiação solar e terrestre.

O modelo BRAMS é a versão brasileira do modelo RAMS (*Regional Atmospheric Modelling System*), desenvolvido na Universidade do Estado do Colorado (EUA) a partir de um modelo de mesoescala (PIELKE, 1974) e de um modelo de nuvens (TRÍPOLI e COTTON, 1982). O RAMS é capaz simular escoamento em escalas de metros a centenas de quilômetros, e inclui um grande número de opções físicas, as quais podem ser selecionadas pelo usuário. Todos os processos físicos associados à formação de nuvens, precipitação, transferência de radiação, transporte turbulento de calor, umidade e momentum, e interação com a superfície podem ser ativados.

No sistema CCATT - BRAMS a advecção é resolvida com um esquema de 2ª ordem e limitadores de fluxo para manter a solução positivo definida (TREMBACK et al., 1987). Para calcular o transporte na escala da sub-grade associado à difusão dentro da CLP utiliza-se o esquema de Mellor e Yamada (1982).

A dispersão dos poluentes via transporte por convecção no modelo CCATT-BRAMS utiliza o formalismo do fluxo de massa, baseado em Grell e Devenyi (2002), que contabiliza o desentranhamento de massa das correntes ascendente e descendente (somente convecção profunda) dentro de uma nuvem cumulus e a subsidência ambiental (equações 3.1 e 3.2).

$$\left(\frac{\partial \bar{s}}{\partial t}\right)_{\text{convecção profunda}} = \frac{m_{u,dp}(z_b)}{\rho_0} \left[\underbrace{\delta_u \eta_u (\bar{S}_u - \bar{S})}_{\text{ascendente}} + \underbrace{\delta_d \epsilon \eta_d (\bar{S}_d - \bar{S})}_{\text{descendente}} + \tilde{\eta} \left(\frac{\partial \bar{s}}{\partial z}\right) \right] \quad (3.1)$$

$$\left(\frac{\partial \bar{s}}{\partial t}\right)_{\text{convecção rasa}} = \frac{m_{u,sh}(z_b)}{\rho_0} \left[\underbrace{\delta_u \eta_u (\bar{S}_u - \bar{S})}_{\text{ascendente}} + \tilde{\eta} \left(\frac{\partial \bar{s}}{\partial z}\right) \right] \quad (3.2)$$

onde $\delta_{u,d}$ expressa a taxa de desentranhamento de massa da nuvem no ambiente das correntes ascendentes (u) e descendentes (d), e o termo $\tilde{\eta} \left(\frac{\partial \bar{s}}{\partial z}\right)$ representa o transporte do traçador no ambiente pela subsidência compensatória deste. O termo $m_{u,dp-sh}$ representa o fluxo de massa na base da nuvem z_b , e determina a magnitude do transporte, e é obtido pela hipótese de fechamento. O termo $\eta_{u,d}$ refere-se ao fluxo de massa normalizado. As variáveis $\bar{S}_u; \bar{S}$ representam as razões de mistura dentro da nuvem e no ambiente.

Os processos físico-químicos não descritos em termos de transporte são representados no modelo CCATT-BRAMS como segue:

Emissões: O modelo utiliza um pré-processador de emissões (FREITAS et al., 2011) que considera fontes urbanas/industriais, biogênicas, por queima de biomassa e vulcânicas. As emissões de origem antrópica são provenientes das bases de dados RETRO e EDGAR 3.0/4.0, atualizadas para a América do Sul pelo trabalho descrito nesse capítulo. Estimativas de emissões biogênicas podem ser obtidas a partir do programa *Global Emissions Inventory Activities* (GEIA, www.geiacenter.org), ou a partir do *Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature* (MEGAN) (GUENTHER et al., 2006). As emissões por queimadas são estimadas seguindo uma relação entre a quantidade de biomassa seca acima do solo na posição do fogo, a fração de biomassa efetivamente consumida, o fator de emissão que expressa a quantidade de massa do gás emitido por unidade de biomassa seca consumida e a área queimada pelo fogo que podem ser atualizados diariamente. Devido a sua característica particular de empuxo na fase de chamas, essas emissões são tratadas com o uso de um modelo de levantamento de plumas no qual a altura da injeção e a espessura da camada de injeção são estimadas (FREITAS et al., 2005; LONGO et al., 2009b).

Deposição Úmida: Para gases, assume-se um estado de equilíbrio entre as fases gasosa e aquosa (lei de Henry). A taxa de deposição úmida para uma dada camada de espessura Δz é proporcionalmente dada por:

$$\left(\frac{\partial \bar{s}}{\partial t} \right)_{dep\ úmida} = \alpha - \frac{k_H r_{lw} \bar{S}_{gasosa} p_r}{\Delta z} \quad (3.3)$$

Onde $\bar{S}_{gasosa}$ se refere à razão de mistura da espécie na fase gasosa dentro da porção da nuvem em precipitação, p_r a taxa de precipitação, r_{lw} a razão de mistura da água ou do gelo e, k_H é a solubilidade da espécie a uma dada temperatura. Os termos r_{lw} e p_r podem ser obtidos a partir das parametrizações de microfísica e de cumulus do modelo atmosférico (FREITAS et al., 2009b).

Deposição Seca: O termo sumidouro correspondente à deposição úmida é expresso em termos de fluxo de deposição, como segue:

$$\left(\frac{\partial \bar{s}}{\partial t} \right)_{dep\ seca} = \frac{v_d \bar{S}_{Zref}}{\Delta z_1} \quad (3.4)$$

onde $\bar{S}_{Zref}$ é a razão de mistura na altura de dois metros acima da superfície e Δz_1 refere-se à primeira camada do modelo. A velocidade de deposição v_d de um determinado gás pode ser estimada via teoria da resistência aerodinâmica e é determinada em termos da estabilidade atmosférica próxima à superfície e da rugosidade desta. O esquema de deposição seca usado no CCATT-BRAMS considera também a aerodinâmica, camada quase-laminar e resistências do dossel (WESELY, 1989, SEINFELD e PANDIS, 1998).

Devido à ação gravitacional partículas pesadas rapidamente entram num regime de equilíbrio entre as forças gravitacional e de arraste associada à resistência do ar e são sedimentadas. A velocidade de sedimentação também é parametrizada no modelo (FREITAS et al., 2009b).

Processos Químicos: O modelo CCATT-BRAMS pode virtualmente ser configurado com qualquer mecanismo químico, através do uso da versão modificada do aplicativo para pré-processamento químico SPACK (*Simplified*

Preprocessor for Atmospheric Chemical Kinetics) (DJOUAD, 2002), daqui adiante *Modified-SPACK* ou, simplesmente M-SPACK (LONGO et al., 2011). As informações necessárias para a caracterização do mecanismo químico incluem: as espécies químicas consideradas, as reações químicas, as taxas de velocidade de reação (as quais dependem da temperatura e pressão do ar), as razões de mistura de alguns gases fixos da atmosfera como oxigênio e nitrogênio, a razão de mistura de vapor de água e as taxas de fotólise (também variáveis com o ângulo zenital, a localização, o albedo superficial, a altura da coluna de ozônio, entre outros). O modelo trabalha com duas opções para as taxas de fotólise: condições padrão para um conjunto de ângulos zenitais ou cálculo atualizado a cada passo no tempo com o código de transferência radiativa (interativo com nuvens e aerossóis) utilizando o modelo FAST-TUV (TIE et al., 2003). O integrador numérico dos mecanismos químicos é baseado no método *Rosenbrock* (HAIRER e WANNER, 1991). As simulações realizadas nesse trabalho usam a versão RODAS 3, com quatro estágios e terceira ordem, descrito em Longo et al. (2011). O M-SPACK permite acoplamento direto com o CCATT-BRAMS para os seguintes mecanismos químicos: CB-07 (versão adaptada do CB-04), RACM, RADM2, RELACS.

3.2.6 Pré-processador de emissões

O pré-processador de emissões (PREP-CHEM-SRC, Freitas et al., 2011) utilizado pelo modelo CCATT-BRAMS é uma ferramenta para a preparação dos campos de emissões para uso nos modelos regionais e globais de qualidade do ar e considera fontes urbanas/industriais, biogênicas, por queima de biomassa e vulcânicas.

Na parametrização da emissão dos gases traços e aerossóis pela queima da biomassa (LONGO et al., 2010) a emissão da fonte de queima (para CO, CO₂, CH₄, NO_x e PM_{2.5}) usa os produtos de fogo GOES-12 - WF_ABBA (*Geostationary Operational Environmental Satellite with Wildfire Automated Biomass Burning Algorithm*) (PRINS et al., 1998; <http://cimss.ssec.wisc.edu/goes/burn/abba.html>) GOES-12 – AVHRR

(*Geostationary Operational Environmental Satellite - Advanced Very High Resolution Radiometer*), do MODIS (*Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer*) pelo CPTEC-INPE (<http://www.cptec.inpe.br/queimadas/>), e em fatores de combustão e emissão derivados de medidas diretas (ANDREAE e MERLET, 2001; YOKELSON et al., 2007 e 2008). Para cada fogo captado por sensoriamento remoto, estima-se a massa emitida de gás traço ou aerossol através da obtenção da biomassa disponível para a queima, os respectivos fatores de combustão e emissão e a área de queima. O tipo de vegetação que está queimando é obtido do mapa de vegetação de 1km do IGBP-INPE (*International Geosphere-Biosphere Programme* e Instituto Nacional de Pesquisas Espaciais) (<http://www.cptec.inpe.br/proveg/>). Esse modelo é denominado *Brazilian Biomass Burning Emission Model* (3BEM) (LONGO et al., 2010)

As fontes são distribuídas espacialmente segundo a localização dos focos de queimadas derivados das observações de satélite diariamente, e com o ciclo diurno definido por uma estatística do produto de fogo (WF-ABBA) do satélite geoestacionário GOES (PRINS et al., 1998).

As emissões de carbono orgânico, carbono grafite (CG), SO₂ e dimetilsulfeto (DMS) na resolução espacial de 1 x 1 graus e resolução temporal mensal, são obtidas do sistema GOCART (*Goddard Chemistry Aerosol Radiation and Transport*).

Emissões biogênicas são baseadas no inventário do programa GEIA/ACCENT (*Global Emissions Inventory Activity / Atmospheric Composition Change the European Network*) (<http://www.aero.jussieu.fr/projet/ACCENT/description.php>) na resolução espacial de 1 x 1 graus ou obtidas a partir do modelo MEGAN (*Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature*) (GUENTHER et al., 2006) utilizado para estimativa da emissão líquida de gases e aerossóis por ecossistemas terrestres. Esse modelo requer prévio conhecimento de variáveis que incluem cobertura do solo e condições meteorológicas e químicas.

Os dados de emissão vulcânica provem da base de dados AEROCOM (*Aerosol Comparisons between Observations and Models*) (http://www-lscedods.cea.fr/aerocom/AEROCOM_HC/volc/), para dióxido de enxofre.

As emissões originais de fontes urbana e industrial são contabilizadas das bases de dados RETRO/EDGAR, já discutidas no capítulo II. A versão mais recente do PREP-CHEM-SRC inclui as emissões de fontes urbanas para a América do Sul deste trabalho, descrito neste capítulo. O artigo que descreve o PREP-CHEM-SRC esta incluso no Anexo B. A Tabela 3.1 mostra alguns exemplos de gases e aerossóis cuja emissão é atualmente estimada no pré-processador.

Tabela 3.1 – Exemplo de emissões estimadas no pré-processador do modelo CCATT-BRAMS.

Espécie	Emissão Antrópica urbana	Emissão por Queimadas	Emissão biogênica	Emissão Vulcânica
Monóxido de Carbono	RETRO/EDGAR ¹	3BEM	MEGAN/GEIA	-
Dióxido de Enxofre	EDGAR ¹	3BEM	-	AEROCOM
Sulfato	EDGAR ^{1,2}	-	-	-
Óxidos de nitrogênio	RETRO/EDGAR ¹	3BEM	MEGAN/GEIA	-
Monoterpenos	-	-	MEGAN/GEIA	-
Terpenos	RETRO/EDGAR ¹	3BEM	MEGAN/GEIA	-
Isopreno	-	-	MEGAN/GEIA	-
Benzeno	RETRO/EDGAR ¹	3BEM	-	-
Cetona	RETRO/EDGAR ¹		GEIA	-
Etano	RETRO/EDGAR ¹	3BEM	MEGAN/GEIA	-
Metano	RETRO/EDGAR ¹	3BEM	MEGAN/GEIA	-
Alcanos	RETRO/EDGAR ¹	3BEM	MEGAN/GEIA	-
Radical hidroxila	RETRO ¹	3BEM	MEGAN/GEIA	-
Etileno	RETRO ¹	3BEM	MEGAN/GEIA	-
Aldeídos	RETRO ¹	3BEM	MEGAN/GEIA	-
α - Pinene	RETRO ¹	3BEM	MEGAN/GEIA	-

¹ Atualizado no inventário regional descrito nesse capítulo.

² Estimado como 3% do dióxido de enxofre emitido (CHIN et al.,2000).

3.2.6.1 Especiação e agrupamento dos compostos orgânicos voláteis

Uma das grandes dificuldades na modelagem numérica da química atmosférica é representar consistentemente a especiação e agrupamento dos compostos orgânicos voláteis emitidos para a atmosfera. Particularmente em áreas urbanas, a fração de espécies químicas que compõe determinado grupo está intimamente ligada ao tipo de fonte e não é a mesma em todas as cidades, portanto, deve-se assumir uma especiação que represente o mais realisticamente possível todos os centros urbanos.

Como discutido no capítulo 2, as numerosas reações dos COVs na atmosfera são representadas nos modelos de previsão de tempo químico através dos mecanismos químicos de forma mais simplificada, porém computacionalmente viável. Na química orgânica algumas espécies são consideradas individualmente enquanto outras são agrupadas em espécies fictícias chamadas de agregados (ou do inglês, *lumping*) que representam um conjunto de COVs que individualmente são menos importantes (GACITA, 2010). No caso do RACM, por exemplo, a agregação das espécies químicas é realizada conforme a informação das taxas de emissão tipicamente encontradas nos Estados Unidos, semelhanças nos grupos funcionais e reatividade dos compostos em relação ao OH.

Os distintos inventários de emissão reportam espécies que, no geral, não coincidem com as espécies dos mecanismos químicos, tornando necessário o uso de coeficientes de agregação. Originalmente, o PREP-SRC-CHEM utiliza a ponderação por massa molar. Porém, adicionalmente trabalhou-se na opção de agregar as espécies ponderando por reatividade com intuito de proporcionar uma flexibilidade na agregação das emissões que se estenda a todos os mecanismos de abordagem molecular (GACITA, 2010; FREITAS, 2010). A Tabela 3.2 mostra os fatores de agregação utilizados na conversão dos inventários de emissão antrópica RETRO para as espécies do mecanismo RACM através da ponderação por reatividade, seguindo stockwell et al. (1997).

Tabela 3.2 – Fatores de agregação utilizados na especificação das emissões de COVs no mecanismo RACM.

Descrição da categoria de emissão RETRO	Fator de Agregação	Espécie RACM
Etano	1,00	ETH
Acetileno	0,41	HC3
Propano	0,57	
Butano	1,11	
Éster	1,00	
Alcoóis	1,37	
Pentano	0,97	HC5
Hexano mais altos alcanos	0,97	
Éster	1,00	
Alcoóis	1,07	
Hexano mais alcanos superiores	0,57	HC8
Propileno	1,00	OLT
Eteno	1,00	ETE
Trimetilbenzeno	1,00	XYL
Xileno	1,00	
Outros Aromáticos	1,00	
Tolueno	1,00	TOL
Benzeno	0,29	
Formaldeído	1,00	HCHO
Outros Aldeídos	1,00	ALD
Cetonas	1,00	KET
Ácidos	0,44	ORA1
Ácidos	0,56	ORA2

No caso do EDGAR, que agrupa todos os COVNM num único grupo, aplica-se adicionalmente uma especiação de COVs totais em cada um dos compostos fundamentais multiplicando o percentual em massa de uma espécie, obtido através de um perfil sugerido para emissões industriais no Terceiro Relatório de Avaliação do IPCC (TAR, Third Assessment Report), pela massa total (GACITA, 2010). A tabela 3.3 mostra os percentuais utilizados.

Tabela 3.3 – Especiação de COV, RACM

Espécies	% em massa	Espécie RACM
Alcoóis	3,2	HC3; HC5
Etano	4,7	ETH
Propano	5,5	HC3
Butanos	10,9	HC3
Pentanos	9,4	HC5
Alcanos Superiores	18,2	HC8
Eteno	5,2	ETE
Propileno	2,4	OLT
Acetileno	2,2	HC3
Outros alcenos, alcinos, dienos	3,8	HC3; HC5; HC8
Benzeno	3,0	TOL
Tolueno	4,9	TOL
Xileno	3,6	XYL
Trimetilbenzeno	0,7	XYL
Outros aromáticos	3,1	XYL
Formaldeído	0,5	HCHO
Outros aldeídos	1,6	ALD
Cetonas	1,9	KET
Ácidos	3,6	ORA1; ORA2
Outros	8,1	-

Fonte: Adaptado de Houghton et al. (2001) e Gacita(2010).

3.3 Resultados

3.3.1 Inventário de emissões urbanas para a América do Sul

Dentre os vários índices socioeconômicos avaliados, os fluxos de emissão de CO e NO_x apresentaram melhor correlação com a densidade de veículos, com índices de correlação de Pearson de 0,92 e 0,93 e coeficientes de determinação de 0,88 e 0,95, respectivamente. Desta forma, as emissões para as demais cidades brasileiras foram extrapoladas em função da densidade veicular seguindo a curva de correlação da Figura 3.2. CO e NO_x estão presentes em todos os inventários locais e puderam ser analisadas com maior atenção. Embora algumas cidades inventariadas disponibilizassem as emissões totais de hidrocarbonetos, não há informação suficiente de como essas espécies foram agrupadas tornando difícil a comparação e a extrapolação para as outras cidades. Além disso, os inventários globais RETRO e EDGAR possuem tratamentos distintos para os hidrocarbonetos não metano (HCNM): enquanto a base de dados EDGAR os agrega em um único grupo, o RETRO os divide em 22 categorias de espécies distintas. Portanto, para os hidrocarbonetos e demais espécies químicas aplicaram-se fatores de correção obtidos pela razão entre a emissão original de CO e a emissão atualizada por ponto de grade. A razão entre as emissões de compostos orgânicos não metano (COVNM) e os óxidos de nitrogênio dos inventários globais originais apresentou uma diferença da ordem de 15% com relação às emissões locais. Assim, os valores de COVNM foram ajustados por este fator na base de dados regional proposta nesse trabalho.

Embora menos efetivos, outros índices socioeconômicos tiveram uma boa correlação com a emissão de CO e NO_x por fontes móveis, como a densidade populacional, habitualmente utilizada como fator de estimativa em inventários globais como RETRO/EDGAR, e o produto interno bruto municipal, que representa a soma (em valores monetários) de todos os bens e serviços finais produzidos numa determinada região estando, de alguma forma, relacionado à quantidade de veículos licenciados (Tabela 3.4).

Tabela 3.4 – Relação entre as emissões de CO/NO_x com alguns índices socioeconômicos (coeficientes de determinação).

Índices	Emissões	
	CO (kg/m ² s)	NO _x (kg/m ² s)
Índice de Desenvolvimento Humano	0,42	0,34
Produto Interno Bruto (dólares)	0,64	0,74
População Urbana (milhões de habitantes)	0,62	0,58
Densidade Populacional (habitantes/km ²)	0,83	0,89
Densidade Veicular (veículos/km ²)	0,89	0,95

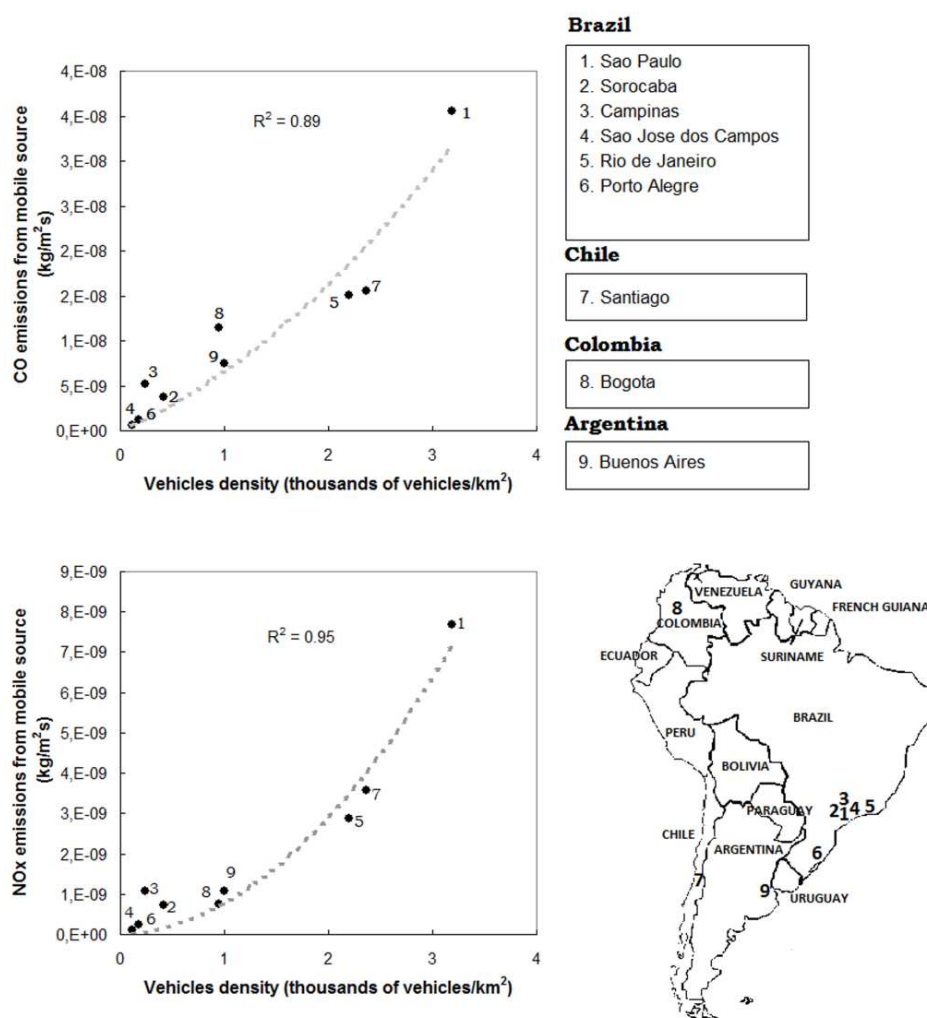


Figura 3.2 - Emissões de CO e NO_x por fontes móveis (kg/m²s) x densidade veicular (milhares de veículos /km²) para as cidades analisadas (localizações indicadas no mapa).

O impacto da inclusão das informações de emissões dos inventários locais no mapa regional e sua extrapolação para as cidades brasileiras não inventariadas é mais evidente nas áreas urbanas de médio e grande porte das regiões centro, sul e sudeste do Brasil, as quais possuem maior participação no PIB nacional e consequentemente uma maior densidade veicular (Figura 3.3). Outro fator que contribui para essa diferença, principalmente na região sudeste, é a discrepância entre as informações dos inventários locais com relação aos bancos de dados globais RETRO e EDGAR. As diferenças na emissão de NO_x para São Paulo entre o inventário da CETESB e as bases de dados globais, por exemplo, alcançam um fator 2.

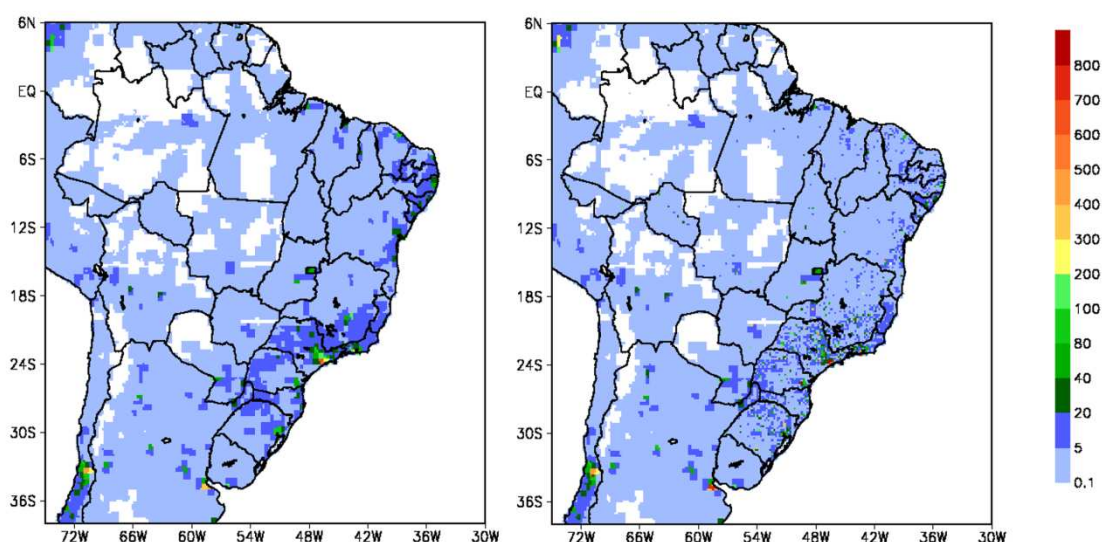


Figura 3.3 - Emissões de CO ($\times 10^6 \text{ kg/m}^2/\text{dia}$) do inventário original (A) e extrapolado (B) em uma grade de 20 km sobre a América do Sul.

Em grades mais finas, a metodologia de distribuição espacial através da análise da área urbanizada torna a representação da contribuição urbana mais realista. A Figura 3.4 mostra as emissões atualizadas pré-processadas na grade de 5 km dos experimentos de avaliação e a imagem de satélite com resolução de 1 km. O nível de detalhamento da representação da área urbanizada vai depender da resolução espacial da grade e do número de pontos usados na composição do polígono convexo sobre o qual as emissões serão distribuídas. O raio de influência não permite que cidades vizinhas sejam representadas por uma única área, o que é extremamente importante em áreas

densamente povoadas. Este método permite a utilização consistente de um mesmo inventário de emissões desde a escala local até a grande escala.

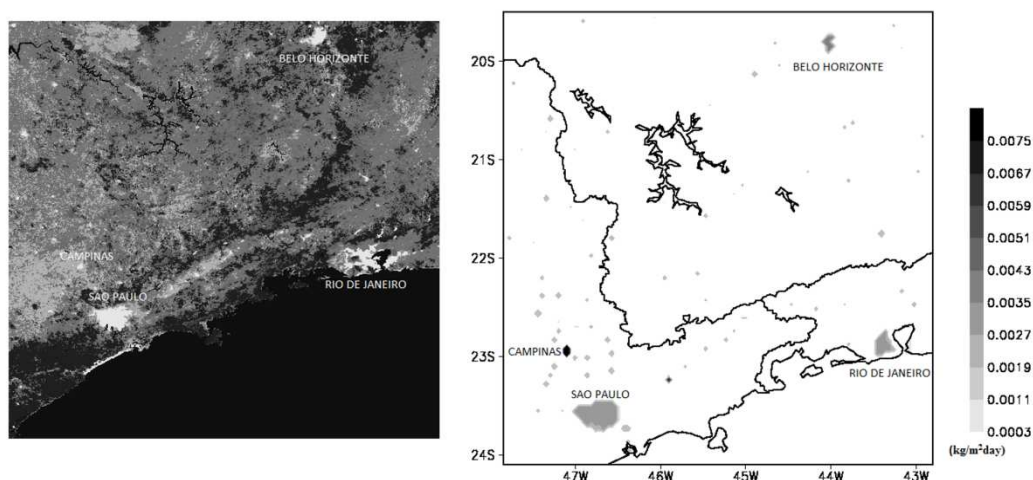


Figura 3.4 - Imagem do sensor AVHRR / NOAA, classe 13, obtida no período de 1981 a 1994, com 1 km resolução espacial, e as emissões extrapoladas de CO ($\text{kg/m}^2\text{dia}$) na grade de 5 km.

3.3.2 Avaliação do inventário regional

Grandes quantidades de compostos químicos são emitidas para a atmosfera através dos processos antrópicos e biogênicos. Na atmosfera, estes gases traço estão sujeitos a diversos mecanismos de transporte e complexas transformações físico-químicas, estas últimas responsáveis pela formação de poluentes secundários. No entanto, mesmo que a representação destes complexos processos seja bastante realista nos modelos de poluição do ar, os resultados das simulações não o serão se a emissão não estiver também adequadamente incluída.

Nesta seção, o inventário regional será avaliado para o ano de 2005, analisando seu desempenho numa modelagem numérica regional sobre o continente sul-americano.

3.3.2.1 Situação meteorológica e análise do desempenho do modelo na simulação das condições gerais da atmosfera

O início de 2005 foi marcado pela atuação da Zona de Convergência do Atlântico Sul (ZCAS), em três episódios ao longo do mês de janeiro, ocasionando um aumento das chuvas em alguns estados, incluindo São Paulo e sul de Minas Gerais. Em julho, a precipitação média mensal foi baixa no sudeste brasileiro, em especial nas regiões norte e centro-oeste do estado de Minas Gerais. Houve, entretanto, valores ligeiramente acima da média no norte de São Paulo, decorrentes da aproximação de frentes frias. O mês de outubro foi caracterizado por precipitação acima da média no estado de São Paulo, porém abaixo do registro histórico nos estados do Rio de Janeiro e Minas Gerais (CPTEC - <http://climanalise.cptec.inpe.br/~rclimanl/boletim>). Em geral, os experimentos numéricos representaram coerentemente a distribuição espacial da precipitação, porém superestimaram sua intensidade (Figura 3.5). Evidencia-se também o bom desempenho dos experimentos na simulação dos valores mínimos e máximos de temperatura sobre a Região Metropolitana de São Paulo, embora a comparação tenha sido realizada com uma única estação localizada no aeroporto Campo de Marte (SBMT). A Figura 3.6 mostra esse resultado para o mês de janeiro.

Como os processos de remoção e dispersão de poluentes são fortemente afetados pela CLP, avaliou-se também o desempenho do modelo em simular sua altura na grade de mais fina resolução espacial. A altura observada da CLP foi estimada através dos perfis de temperatura potencial e umidade das radiossondagens realizadas a cada 12 horas na estação SBMT. Em geral, as simulações tiveram bom desempenho na representação da variabilidade diária da CLP, a média da altura simulada para o mês de janeiro foi da ordem de 900 metros em contraposição aos valores observados entre 800 e 1.500 metros, com média de 1.087 metros. A figura 3.7 mostra a evolução da altura da CLP modelada no experimento SA-INV e estimada a partir de radiossondagens na estação SBMT durante o mês de janeiro.

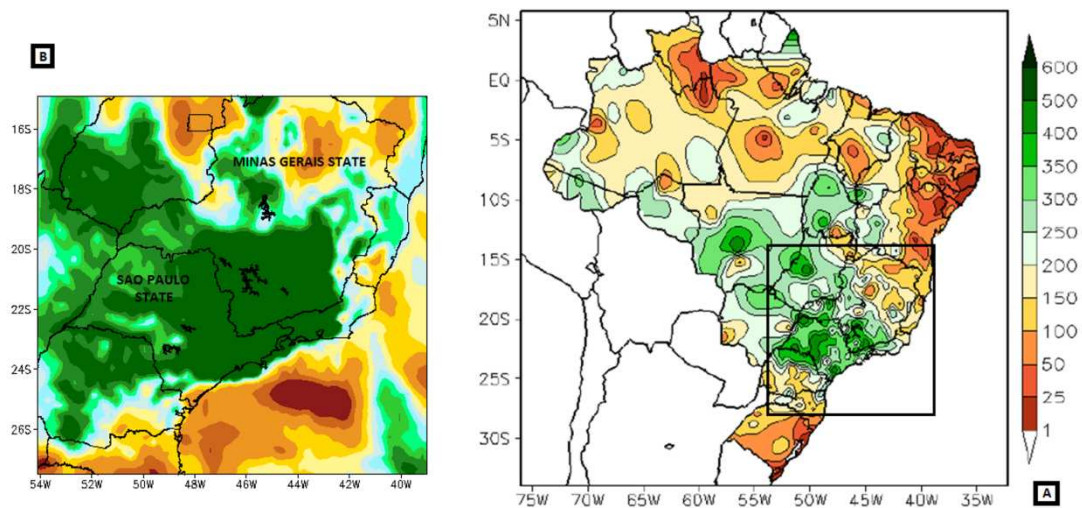


Figura 3.5 - Precipitação acumulada observada (mm) com resolução horizontal de $1^\circ \times 1^\circ$ (<ftp://ftp.cpc.ncep.noaa.gov/precip/wd52ws/brazil/>) [A] e simulada na grade de 80 km [B], para o mês de janeiro de 2005. As siglas representam os estados da República Federativa do Brasil: Santa Catarina (SC); Paraná (PR); São Paulo (SP); Rio de Janeiro (RJ); Espírito Santo (ES); Mato Grosso do Sul (MS); Mato Grosso (MT), Distrito Federal (DF) e Goiás (GO).

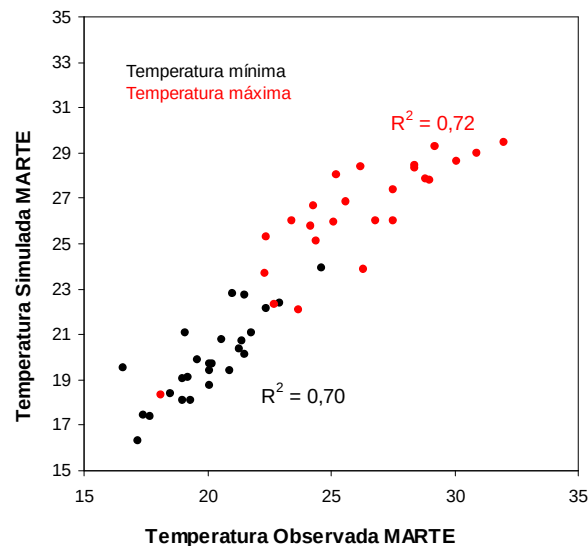


Figura 3.6 – Diagrama de dispersão das temperaturas mínimas e máximas ($^\circ\text{C}$) simuladas pelo experimento SA-INV e observadas no aeroporto Campo de Marte (SBMT), no mês de janeiro de 2005.

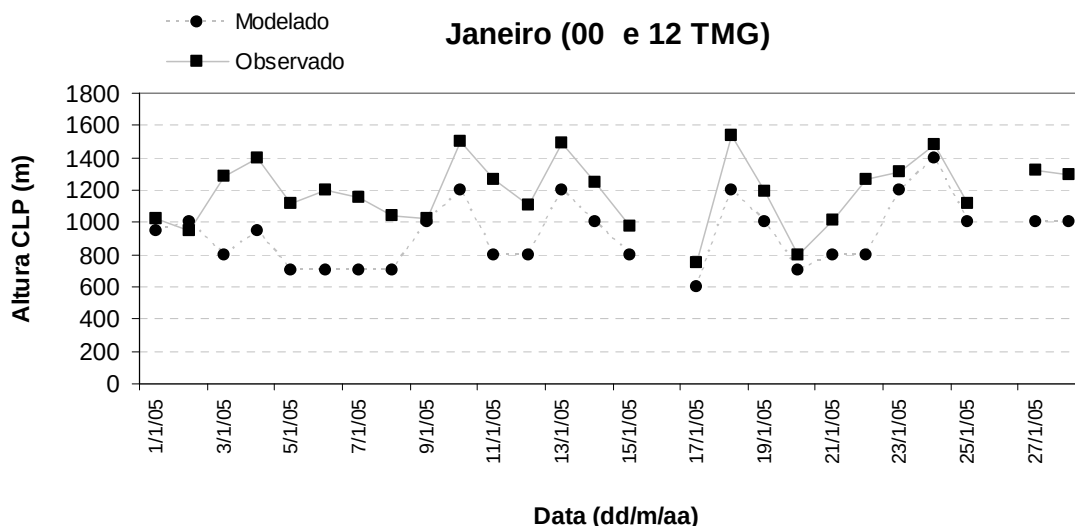


Figura 3.7 – Altura da CLP simulada na grade de 5 km e estimada através dos dados de radiossondagem na estação SBMT (00 e 12 TMG) durante o mês de janeiro de 2005.

3.3.2.2 Comparação das razões de mistura de CO, NO_x e O₃ simuladas e observadas em áreas urbanas

Compararam-se as razões de mistura de CO e NO_x simuladas pelo modelo com os valores observados. Em geral, o CO e o NO_x total (NO + NO₂) são pouco influenciados pela reatividade química na escala temporal da ordem de poucas horas e são, portanto, bons indicadores para avaliação das emissões (Zárate et al., 2007). O novo inventário regional claramente afetou o cálculo das razões de mistura de CO e NO_x simuladas, e resultaram em um ganho significativo no desempenho do modelo em relação as observações, conforme visto nas Figuras 3.8 e 3.9. A barra de erros refere-se ao desvio padrão da média dos valores observados e simulados, o qual, entretanto, foi calculado de maneira distinta nas cidades avaliadas. Para São Paulo a medida da dispersão é espacial, isto é, representativa dos valores médios de todas as estações que compõem a área metropolitana do município. Para a cidade de Belo Horizonte, que possui apenas uma estação de superfície, o desvio padrão representa a dispersão dos valores médios horários. A inclusão do inventário regional também propiciou uma melhoria significativa na representação do ciclo diurno de CO e NO_x, com máximos de concentrações coincidentes com as horas de

tráfego mais intenso, tanto na Região Metropolitana de São Paulo quanto na cidade de Belo Horizonte, porém, a remoção destas espécies durante o dia, período de máxima atividade da camada convectiva, foi superestimado, principalmente no mês de outubro. Quanto à variabilidade mensal, salienta-se que o experimento SA-INV superestimou a razão de mistura de NO_x no mês de janeiro, o que sugere a necessidade de incorporar parâmetros quantitativos particulares para esse mês, como por exemplo, a redução do tráfego urbano associada às férias escolares. O experimento que utilizou as emissões originais (CONTROLE) não conseguiu captar coerentemente o ciclo diurno e principalmente a intensidade da poluição por dois motivos principais: A má representação espacial das emissões em resoluções mais finas e aos valores subestimados para as emissões.

O ciclo diurno do ozônio foi bem representado em ambos os experimentos, com máximos em torno das 14:00 local nas duas cidades analisadas, com ênfase na boa representação dos processos de destruição noturna do ozônio quando utiliza-se o inventário regional. No experimento CONTROLE as razões de mistura de NO_x e CO foram sistematicamente subestimadas, porém os valores para o O_3 foram, em geral, bem representados (Figura 3.10). Esse comportamento evidencia um aspecto importante sobre a representação das emissões dos precursores de O_3 para a atmosfera: embora tenha propiciado significativa subestimativa da razão de mistura de NO_x , com relação ao observado, o uso dos inventários RETRO/EDGAR ainda produz valores consideráveis de ozônio, assumindo-se assim que esses inventários globais apresentam uma correta razão de proporcionalidade entre NO_x/COVNM , o que evidencia a não linearidade do ozônio com seus precursores

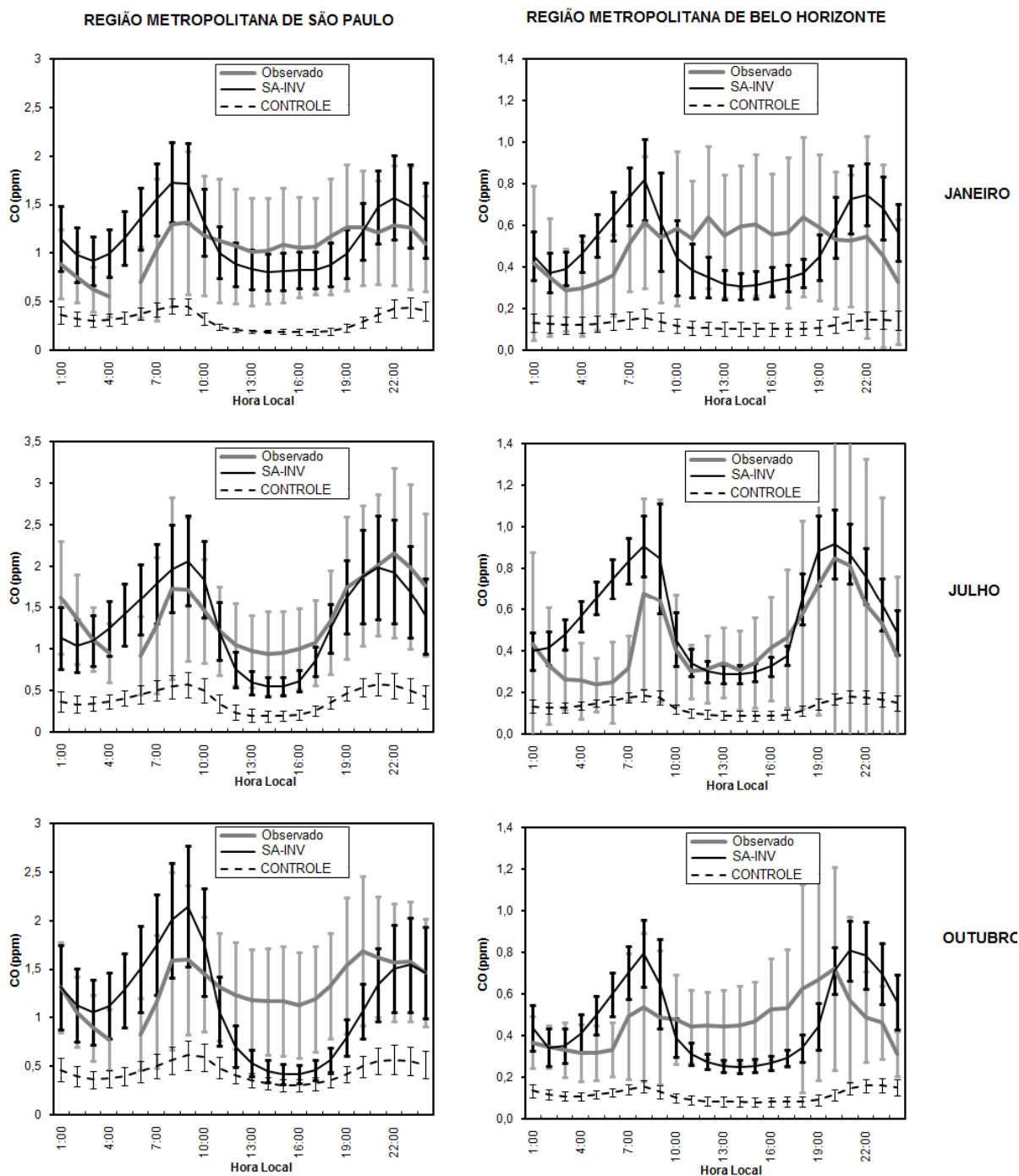


Figura 3.8 - Média horária da razão de mistura de CO observada (linha contínua preta) e simulada nos experimentos CONTROLE (linha tracejada preta) e SA-INV (linha contínua cinza) para a Região Metropolitana de São Paulo (coluna da esquerda) e para a cidade de Belo Horizonte (coluna da direita), nos meses de janeiro, julho e outubro, em ppmv.

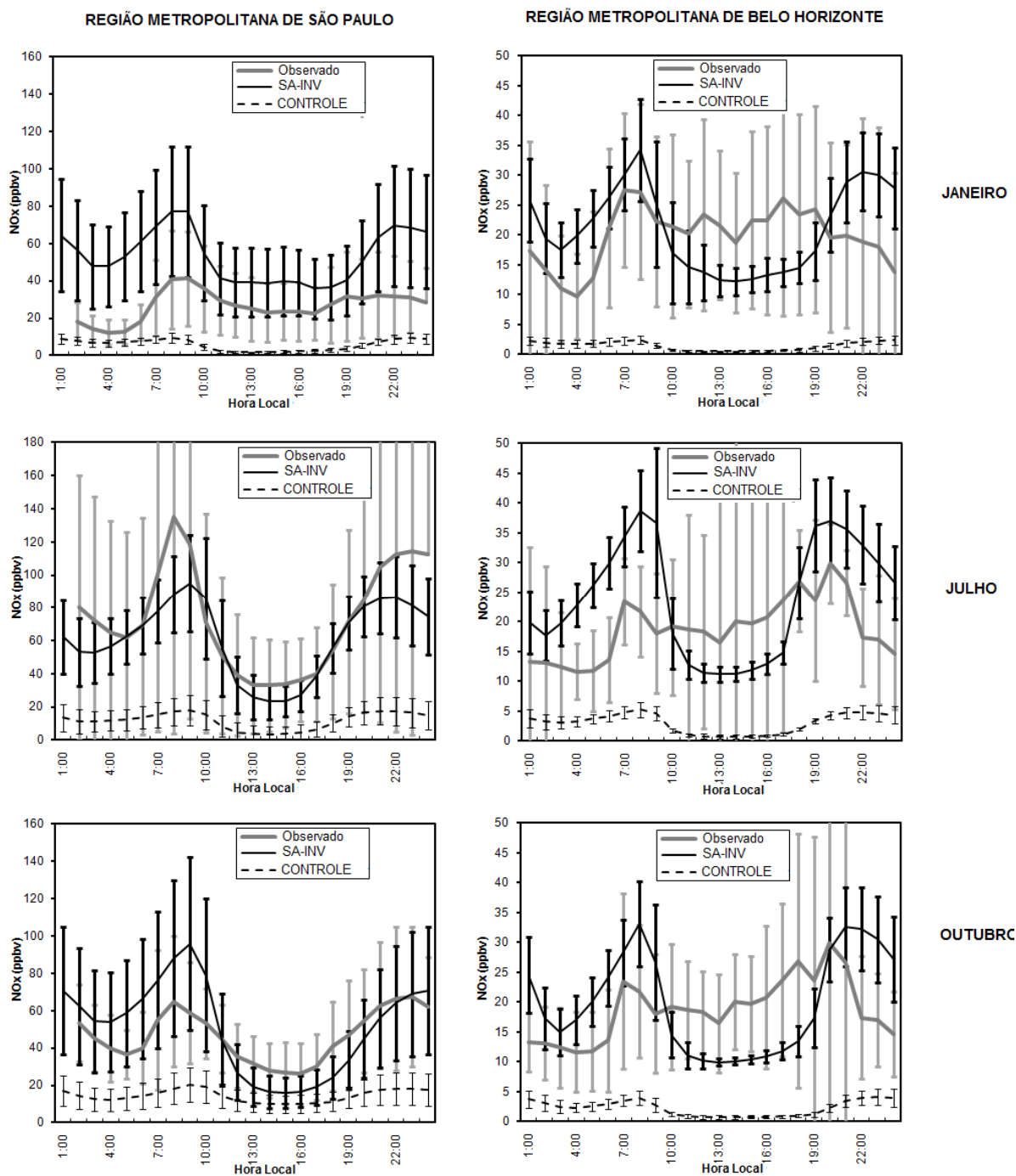


Figura 3.9 - Média horária da razão de mistura de NO_x observada (linha contínua preta) e simulada nos experimentos CONTROLE (linha tracejada preta) e SA-INV (linha contínua cinza) para a Região Metropolitana de São Paulo(coluna da esquerda) e para a cidade de Belo Horizonte (coluna da direita), nos meses de janeiro, julho e outubro, em ppbv.

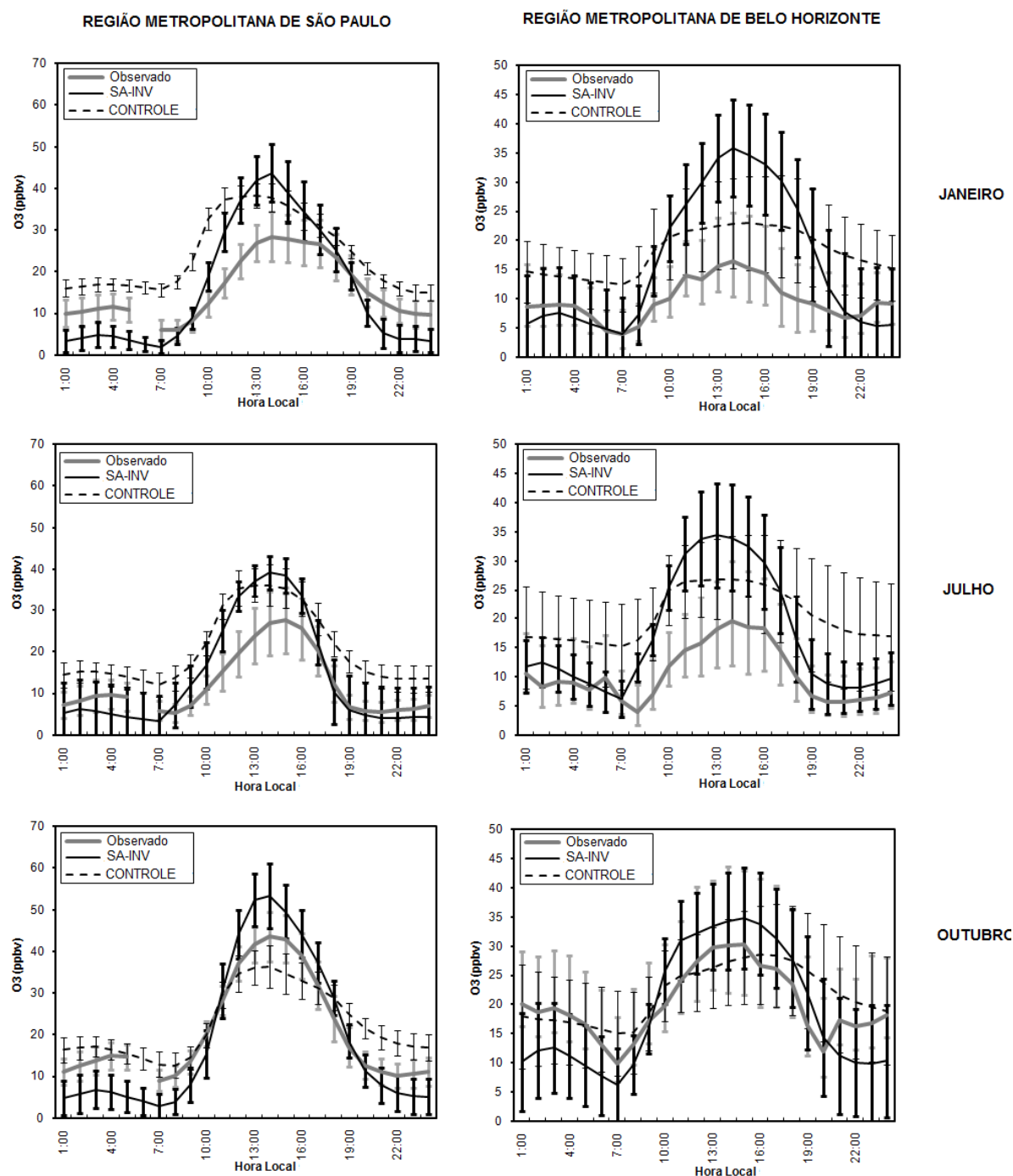


Figura 3.10 - Média horária da razão de mistura de O₃ observada (linha contínua preta) e simulada nos experimentos CONTROLE (linha tracejada preta) e SA-INV (linha contínua cinza) para a Região Metropolitana de São Paulo(coluna da esquerda) e para a cidade de Belo Horizonte (coluna da direita), nos meses de janeiro, julho e outubro, em ppbv.

A agregação das emissões veiculares provenientes dos inventários locais na base de dados global, para a América do Sul, causou um significativo impacto na distribuição espacial simulada do CO e NO_x emitidos pelos grandes centros urbanos e pelo ozônio gerado a partir de reações químicas. A Figura 3.11 mostra a diferença percentual entre as médias mensais dos máximos de concentrações de CO, NO_x e ozônio, nos horários de pico, para o mês de outubro, simuladas pelos experimentos CONTROLE e SA-INV na grade de 80km e o campo médio mensal do vento. A diferença percentual é mais evidente próximo as maiores cidades da região centro, sul e sudeste. A inclusão dos inventários locais e a extrapolação para as demais cidades brasileiras impactaram na distribuição espacial das concentrações de NO_x e CO acima de 25% em extensas áreas circunvizinhas aos grandes centros urbanos. Para o O₃ a diferença percentual ficou mais evidente na região sudeste do Brasil, onde os valores de emissões dos seus precursores no novo inventário são significativamente maiores que os inventários globais RETRO e EDGAR. O comportamento das diferenças percentuais para os meses de julho e janeiro foram similares ao mês de outubro.

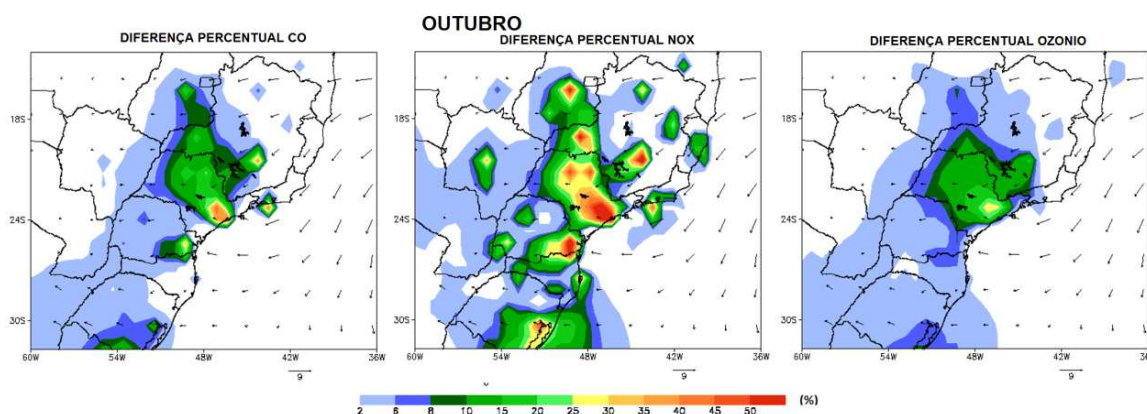


Figura 3.11 - Diferença percentual entre as médias mensais das razões de mistura de CO, NO_x e O₃ nos horários de pico para o mês de outubro, simuladas pelos experimentos CONTROLE e SA-INV na grade de 80km e o campo médio mensal de vento próximo à superfície em m/s.

3.4 Conclusões parciais

Os inventários de emissões em escala global são em geral deficientes na representação detalhada das características das emissões locais, principalmente em regiões com informações de emissões escassas, como é o caso da América do Sul. Portanto, investiu-se na agregação de inventários e dados locais a estas bases de dados globais para a construção de um inventário regional para a América do Sul. A primeira dificuldade encontrada foi o número reduzido de inventários municipais, dado o atual cenário de expansão urbana na América do Sul. Esse problema foi contornado extrapolando-se as informações locais aos demais municípios que não possuem inventário, a fim de construir um banco de dados regional mais completo, consistente e atualizado. A comparação entre as emissões veiculares dos inventários locais e globais das cidades sul-americanas analisadas mostra consideráveis diferenças, corroborando com o que já foi discutido em outros trabalhos.

Uma metodologia de detecção e análise da área urbanizada de um município foi proposta e incorporada ao pré-processador de emissões PREP-CHEM-SRC, o que permitiu distribuir as emissões com mais precisão em resoluções mais finas. Este método permite a utilização consistente de um mesmo inventário de emissões desde a escala local até a grande escala.

Os resultados da avaliação do inventário regional, mediante análise das razões de mistura de CO, NO_x e O₃ nas cidades de São Paulo e de Belo Horizonte, mostram um ganho significativo na representação numérica da composição química da atmosfera local, sugerindo que a atualização da base de dados global com inventários locais é imprescindível para que se obtenha um bom acoplamento entre as escalas local e regional. A superestimação dos valores simulados no experimento AS-INV para NO_x e O₃ em janeiro (férias de verão e conseqüente redução de tráfego veicular em São Paulo) sugere a necessidade de inclusão de fatores de variabilidade mensal e semanal, influenciados principalmente pelo comportamento do tráfego urbano nessa escala temporal. Ressalta-se que, para Belo Horizonte, os valores das emissões no inventário regionalizado são extrapolados, pois não há inventário local disponível para

essa cidade. O bom desempenho do experimento para esta cidade sugere uma boa eficácia do processo de extrapolação.

A modelagem regional é uma ferramenta importante no diagnóstico e prognóstico da composição química da atmosfera. O uso de um banco de dados de emissões que agrega as informações específicas de centros urbanos aos inventários globais mostrou-se relevante para uma boa representação das emissões em modelos de previsão química na escala local e regional. Demonstrou-se que o inventário proposto nesse trabalho melhora o desempenho das simulações de química da atmosfera na escala local e afeta significativamente a distribuição espacial de O_3 troposférico e seus precursores regionalmente. A ferramenta proposta nesse trabalho permitiu uma boa distribuição das emissões em vários níveis de detalhamento, podendo ser usada consistentemente em um amplo espectro de resoluções espaciais. Como perspectiva, pretende-se expandir a extrapolação para as demais cidades sul-americanas não inventariadas que não foram incluídas nessa primeira versão e incluir fatores de variabilidade mensal e semanal, que sejam representativos em todas as cidades. Na primeira versão, foram utilizadas cidades com média e grande densidade veicular na mesma curva de extrapolação. Com a incorporação de novos inventários municipais, pretende-se gerar duas curvas distintas de extrapolação para cidades de pequeno-médio e grande porte, respectivamente.

4 PREVISÃO DA QUALIDADE DO AR PARA OS ESTADOS DE SÃO PAULO E RIO DE JANEIRO

4.1 Introdução

O Grupo de Modelagem da Atmosfera e Interfaces (GMAI) do INPE vêm desenvolvendo juntamente com a CETESB uma ferramenta para o prognóstico da qualidade do ar para o estado de São Paulo, através de simulações com o modelo CCATT-BRAMS em alta resolução (3 km).

O principal objetivo da cooperação é unir esforços na previsão da qualidade do ar para o estado de São Paulo, suprimindo a crescente demanda da sociedade por produtos com esse escopo. A implantação de um modelo regional de qualidade do ar para regiões do Estado de São Paulo irá propiciar a CETESB uma ferramenta que possibilitará informar previamente à população sobre a qualidade do ar na sua região, possibilitando a prevenção dos efeitos adversos, bem como subsidiar ações de controle.

O uso do inventário regional de emissões veiculares é virtualmente aplicável em qualquer resolução, sem apresentar perda de informação inerente à má distribuição espacial. Porém, resoluções mais finas que 3 km requerem um melhor detalhamento quanto à distribuição espacial dessas emissões, justamente porque neste caso a melhor representação dos processos de transporte e química dos poluentes depende fortemente da distribuição geográfica das fontes móveis e fixas.

4.2 Metodologia

Para se obter uma melhor representação das emissões em resoluções superiores a 3 km para uso operacional trabalhou-se em duas frentes principais: inclusão das emissões linha das principais rodovias do estado e a distribuição das emissões na Região Metropolitana de São Paulo através da informação das vias de trânsito rápido existentes.

A emissão linha das principais rodovias brasileiras foi estimada com base nas informações de volume diário médio de veículos obtida do relatório anual da

Agência Nacional de Transportes Terrestres (ANTT, 2008). As rodovias analisadas foram: Presidente Dutra S.A., divida em sete trechos; Ponte Rio-Niterói, sob administração da Companhia de Concessões Rodoviárias (CCR) e Regis Bittencourt (Figura 4.1). Para a estimativa da emissão utilizou-se a seguinte equação:

$$E_p = N \times d \times F_p \quad (4.1)$$

Onde E_p é a Taxa de emissão média de poluente por período definido (g/período), N é o volume diário médio de veículos em determinado trecho (unidade de veículo padrão / dia), d é a distância média percorrida no trecho (km) e F_p o fator de emissão, obtido da CETESB (2005) assumindo uma frota com idade média superior a 2000.

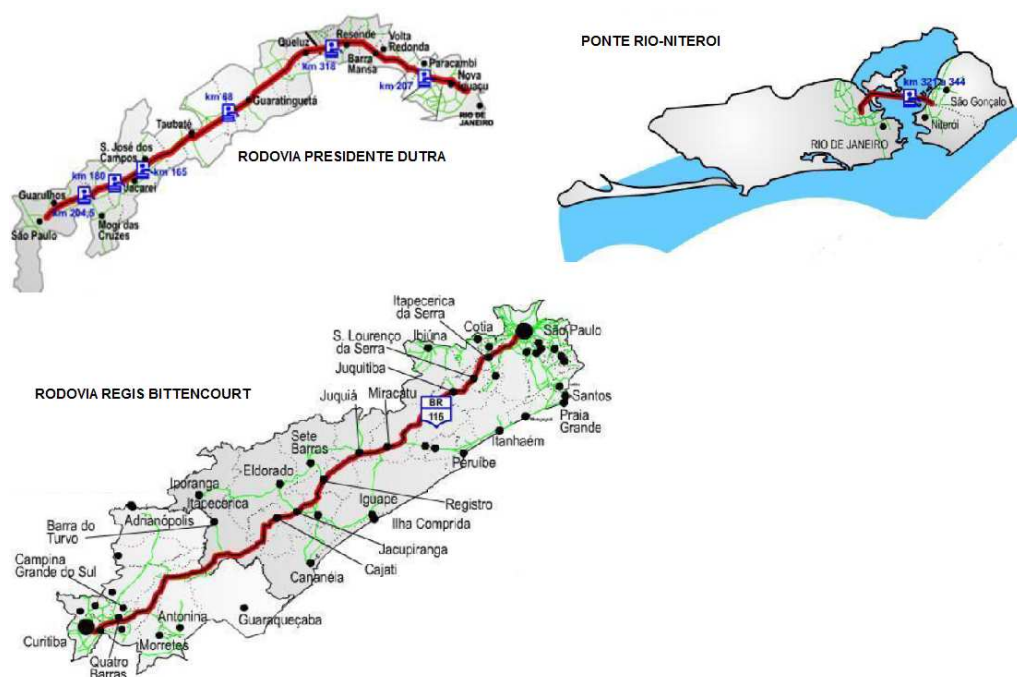


Figura 4.1 – Trechos analisados para a estimativa das emissões linhas referentes ao volume de tráfego diário.

Como o número de trechos que possuem informação de volume de tráfego disponível é muito pequeno, houve necessidade de extrapolar essa estimativa para as demais rodovias estaduais e federais existentes nos estados de São Paulo e Rio de Janeiro. Assumiu-se a média obtida entre os trechos analisados

como representativa da emissão de uma estrada de médio e grande porte, em toda malha viária brasileira, distribuindo-a espacialmente através de um mapa georreferenciado das principais rodovias do Brasil. As emissões linha são automaticamente desenhadas no pré-processador nas resoluções superiores a 3 km, para que não sejam mescladas com as emissões urbanas. Com a mesma metodologia aplicada na distribuição das emissões das rodovias, as emissões provenientes da Região Metropolitana de São Paulo são distribuídas seguindo a informação do volume de tráfego das principais vias de acesso obtida da companhia de engenharia de tráfego (CET, 2006).

4.3 Resultados

A Figura 4.2 mostra a emissão de monóxido de carbono distribuída no domínio utilizado para a operação com 3 km de resolução espacial. Evidenciam-se as emissões linha das principais rodovias intermunicipais dos estados de São Paulo e Rio de Janeiro e a heterogeneidade da distribuição na Região Metropolitana de São Paulo, com máximos localizados na região do centro, devido à grande concentração de vias principais (Figura 4.3) e consequente volume de tráfego.

Os resultados foram consubstanciados numa ferramenta *on-line* que se encontra em fase de avaliação (Figura 4.4); o modelo operacional possui duas grades aninhadas, com 15 e 3 km, respectivamente. Fez-se um levantamento da representatividade do modelo em alta resolução, no período de 08 a 10 de agosto de 2008, com relação ao ciclo diurno do ozônio em três estações espalhadas ao longo da Região Metropolitana de São Paulo (Figura 4.5). Constatou-se que o modelo simulou consistentemente o ciclo diurno e a distribuição espacial do ozônio nessa escala, evidenciando sua potencialidade na previsão operacional da qualidade do ar para a RMSP.

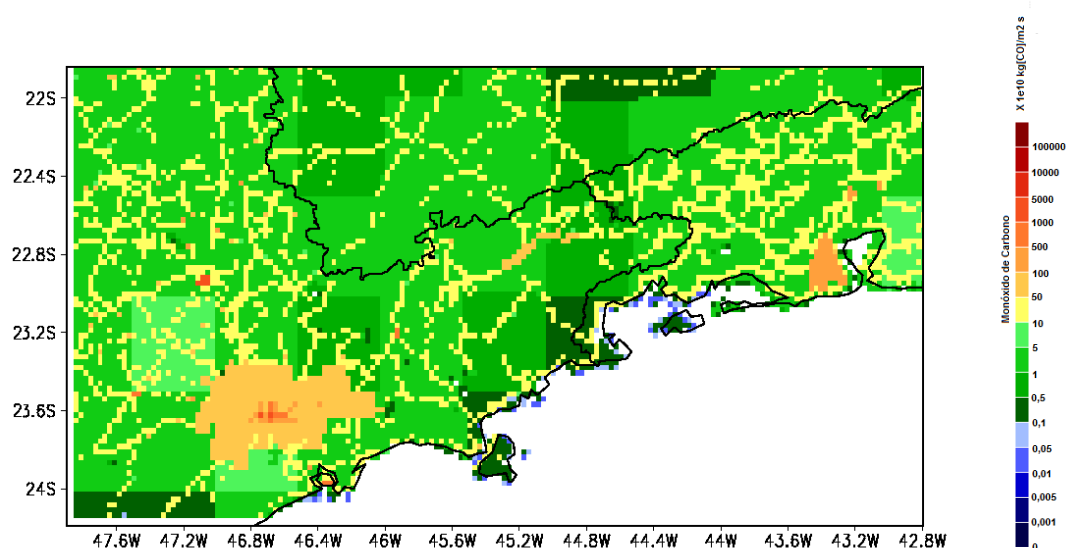


Figura 4.2 – Emissão de monóxido de carbono na resolução de 3 km ($\text{kg}[\text{CO}]/\text{m}^2\text{s}$) utilizada na previsão da qualidade do ar para os estados de São Paulo e Rio de Janeiro.

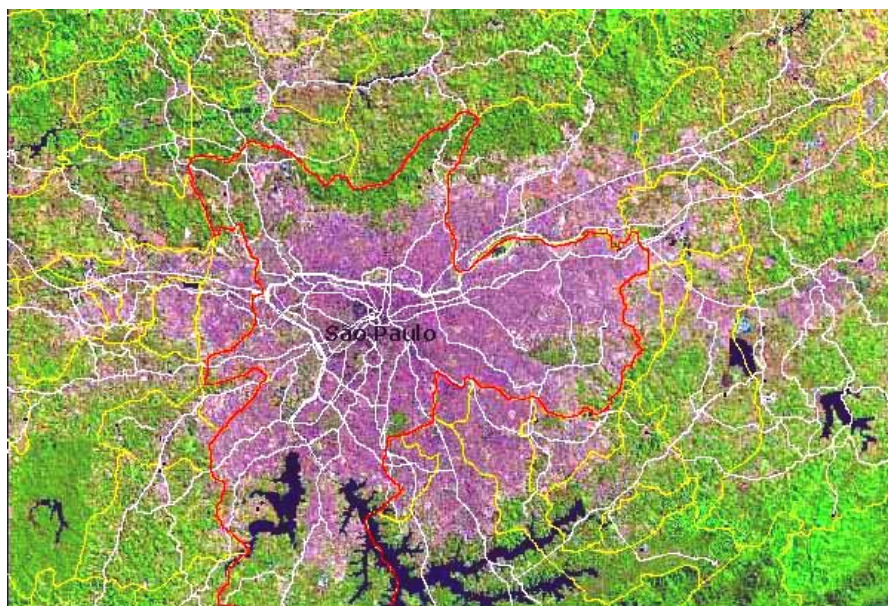


Figura 4.3 – Imagem do satélite LANDSAT (*Land Remote Sensing Satellite*) (<http://landsat.gsfc.nasa.gov/>), com camada sobreposta das principais vias e rodovias.

Conforme pode ser acompanhado na Figura 4.4, que mostra o resultado da simulação operacional do NO_x às 12 UTC do dia 25 de fevereiro de 2011, na

grade de 3 km, valores superiores a 30 ppbv podem ser vistos na extensão da rodovia Presidente Dutra, como resultado das emissões linha somadas às emissões urbanas das cidades adjacentes. Valores superiores a 7 ppbv também foram simulados ao longo da rodovia Fernão Dias, no sul de Minas Gerais. Supan e Schädler (2004), avaliando o impacto das emissões de rodovias na modelagem do ozônio e precursores, já mostravam que sua inclusão provocava um incremento na simulação da razão de mistura do NO_2 numa área em torno de 1000 km^2 adjacente à estrada.

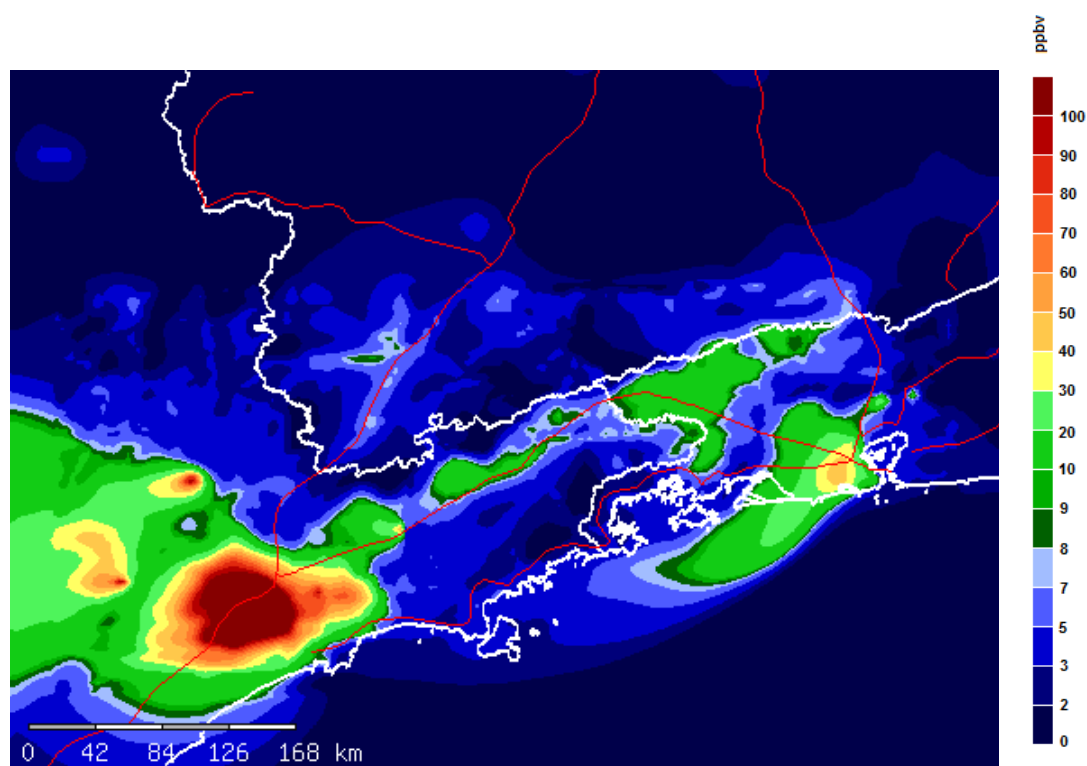


Figura 4.4 – Simulação da razão de mistura de NO_x na grade operacional de 3 km para o dia 25 de fevereiro de 2011 às 12 UTC, em ppbv. As linhas vermelhas representam a localização das rodovias.

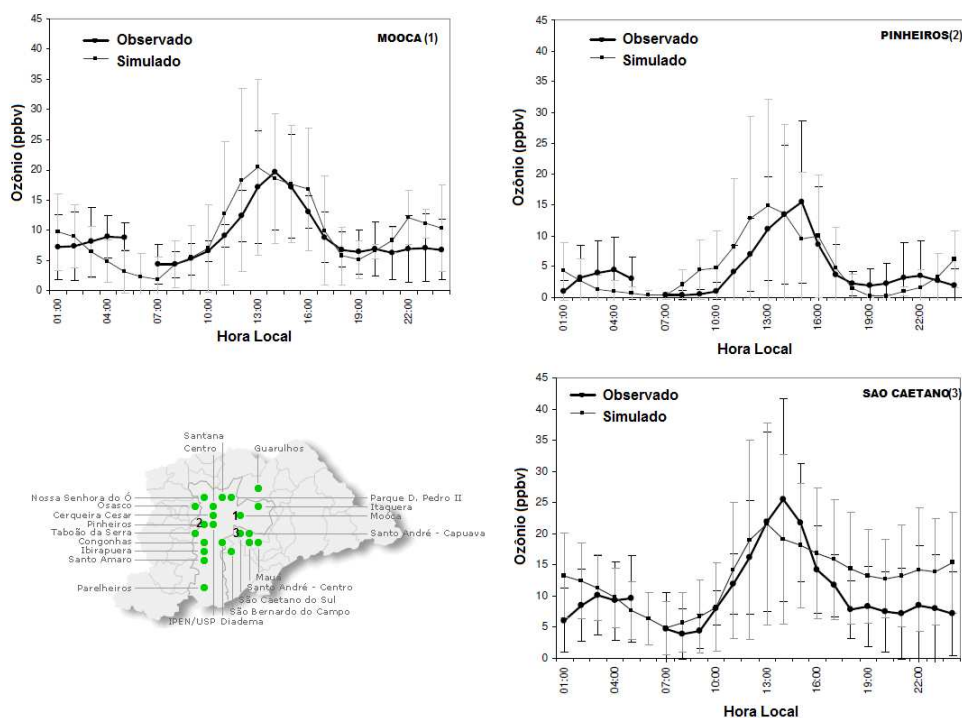


Figura 4.5 – Comparação da razão de mistura de ozônio simulada para o período de 08 a 10 de agosto de 2008, utilizando a configuração proposta para a operação em alta resolução, com a razão do ozônio observada nas estações Mooca, Pinheiros e São Caetano(RMSP), em ppbv.

4.4 Conclusões parciais

Trabalhou-se na operacionalização do modelo CCATT-BRAMS para prognóstico da química atmosférica em alta resolução espacial sobre o estado de São Paulo. Primeiramente adequou-se o inventário regional de emissões urbanas para representação em resoluções superiores a 3 km incluindo emissões linha das principais rodovias do estado e redefiniram-se as emissões da RMSP, outrora distribuídas homogeneamente na área urbana, com a informação de volume de tráfego das vias de trânsito rápido.

A inclusão das emissões de origem antrópica veicular das rodovias intermunicipais propiciou um ganho significativo na distribuição dos poluentes, somando-se à emissão urbana. Na RMSP, a redistribuição das emissões permitiu representar consistentemente o padrão de variabilidade espacial dos

poluentes dentro da área urbana, fundamental para o prognóstico em alta resolução espacial. Esse aspecto foi avaliado para o período de 08 a 10 de agosto de 2008. Atualmente, trabalha-se numa ferramenta *on-line* para a avaliação diária.

5 ESTUDO DO IMPACTO REGIONAL DOS CENTROS URBANOS NA COMPOSIÇÃO QUÍMICA DA AMERICA DO SUL

5.1 Introdução

Estudos prévios apontam que grandes centros urbanos influenciam a distribuição do ozônio nas escalas regional e global (GUTTIKUNDA et al., 2005; LAWRENCE et al., 2007; BUTLER e LAWRENCE, 2009). Embora os impactos sejam mais evidentes nos países desenvolvidos, o atual quadro socioeconômico de urbanização nos países em desenvolvimento, o qual inclui processos desordenados de periurbanização e seus consequentes impactos ambientais, tornou-se uma preocupação crescente e incentiva estudos de caracterização, impacto e sustentabilidade nas grandes cidades menos desenvolvidas. Neste capítulo discute-se os resultados provenientes das simulações com o modelo CCATT-BRAMS, para o ano de 2007, com o intuito de estudar a influência regional das cidades sul-americanas na composição química da América do Sul.

5.2 Metodologia

Os impactos das emissões urbanas foram caracterizados com relação à emissão total dos gases de efeito estufa e precursores do ozônio troposférico, além da formação do ozônio propriamente dito. A determinação da região de influência das emissões pelos aglomerados urbanos, em vários níveis verticais, baseia-se na metodologia proposta por Guttikunda et al. (2005), descrita a seguir.

Foram realizados dois experimentos: O primeiro, denominado REFERÊNCIA, inclui todas as fontes de emissões (urbana, queimadas, biogênica, etc...). Na segunda simulação, denominada SURBAN, excluimos a emissão urbana. Posteriormente, o impacto foi avaliado com a seguinte relação:

$$\left(\frac{REFERÊNCIA - SURBAN}{REFERÊNCIA} \right) \times 100 \quad (5.1)$$

As simulações são representativas do ano 2007, utilizando-se um “*spin-up*” de 30 dias, numa grade com resolução espacial de 50 km cobrindo toda a América do Sul. A Figura 5.1 mostra o total anual das emissões utilizadas nos experimentos numéricos. Seguindo algumas características dos experimentos anteriores de avaliação do inventário, essas simulações também foram conduzidas com 35 níveis na vertical. A primeira camada possui espessura de 100 metros que aumenta nos demais níveis através de uma progressão geométrica com taxa de 1.1. Ambas as simulações possuem condições iniciais e de contorno atmosférica do modelo global do CPTEC/INPE com resolução T126L28 (<http://previsaonumerica.cptec.inpe.br/>). A condição inicial e de contorno química é baseada na climatologia mensal das análises do modelo global MOCAGE (multi-scale Chemistry and Transport Model) (PEUCH et al., 1999) para o continente sul-americano. Para a avaliação dos experimentos, foram utilizadas as seguintes redes de monitoramento local de qualidade do ar: CETESB, para a Região Metropolitana de São Paulo (RMSP), da qual utilizou-se oito estações com medidas horárias de ozônio e NO_x; FEEMA, para a Região Metropolitana de Belo Horizonte (RMBH), com uma estação e MACAM2 (Rede de Monitoramento Automática da Qualidade do Ar Metropolitana II), para a Região Metropolitana de Santiago (RMSA), da qual se utilizou oito estações com medidas horárias de ozônio. Para uma análise qualitativa do perfil vertical do ozônio, foram usados dados observados do projeto MOZAIC (*Measurements of OZone, water vapour , carbon monoxide and nitrogen oxides by in-service Alrbus airCraft*) (<http://mozaic.aero.obs-mip.fr/web/>), disponíveis somente para o período de 1996-1998.

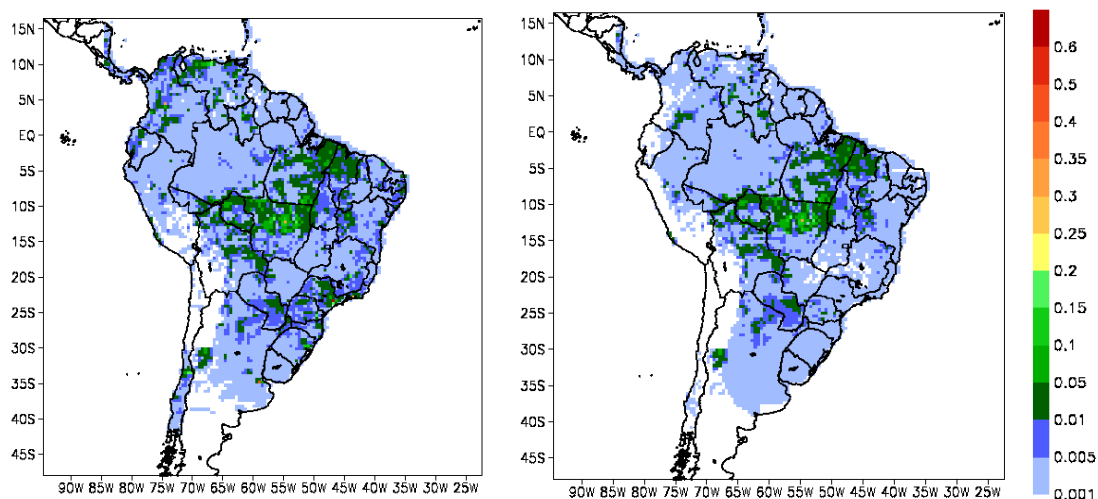


Figura 5.1 – Emissão total de CO gerada pelo PREP-CHEM-SRC para o ano de 2007, em $\text{kg/m}^2\text{ano}$, para os experimentos REFERÊNCIA e SURBAN, respectivamente.

5.3 Resultados

5.3.1 – Aspectos climáticos

O ano de 2007 na América do Sul foi marcado por estações chuvosas e secas com intensidade superior a média histórica, maior quantidade de queimadas com relação aos anos adjacentes (BOLETIM CLIMANÁLISE, 2007) e um número significativo de ultrapassagens dos limites regulados de poluição atmosférica em muitas cidades da América do Sul (ex: CETESB, 2008; FEEMA, 2008).

No mês de janeiro de 2007, o acumulado mensal pluviométrico esteve acima da média climatológica numa faixa que se estende de noroeste até a região sudeste do Brasil (Figura 5.2a), devido ao estabelecimento de dois episódios de Zona de Convergência do Atlântico Sul (ZCAS), principalmente na primeira quinzena, e favorecidos pelo transporte de umidade em 850 hPa em direção ao continente intensificando a convergência de umidade sobre os Estados de São Paulo e Rio de Janeiro e sobre o sul de Minas Gerais, onde as chuvas foram mais intensas. No entanto, configuração dos vórtices ciclônicos em altos níveis sobre a Região Nordeste e Oceano Atlântico adjacente, contribuiu para o aumento da subsidência e ocorrência de baixos índices pluviométricos em

grande parte da Região Nordeste, embora o registro de chuvas diárias mais intensas nessa região, que ocorreu no período de 20 a 25, esteja associado ao posicionamento desses sistemas mais no interior do continente. O posicionamento desses vórtices ciclônicos também afetou a posição média da Zona de Convergência Intertropical (ZCIT) preferencialmente ao norte de sua posição climatológica e com fraca atividade convectiva (BOLETIM CLIMANÁLISE, 2007). A Figura 5.2b mostra, através do escoamento e da razão de mistura em 850 hPa, que as simulações do experimento REFERÊNCIA capturaram consistentemente os fluxos de umidade associados aos padrões de larga escala e de escala sinótica que influenciaram os valores anômalos de precipitação durante o mês de janeiro.

Na Argentina, grande parte do norte e centro-oeste apresentou chuvas mensais acima da média histórica, enquanto as regiões de Buenos Aires e províncias adjacentes apresentaram estiagem, conforme boletim do Serviço Meteorológico Nacional (<http://www.smn.gov.ar/>).

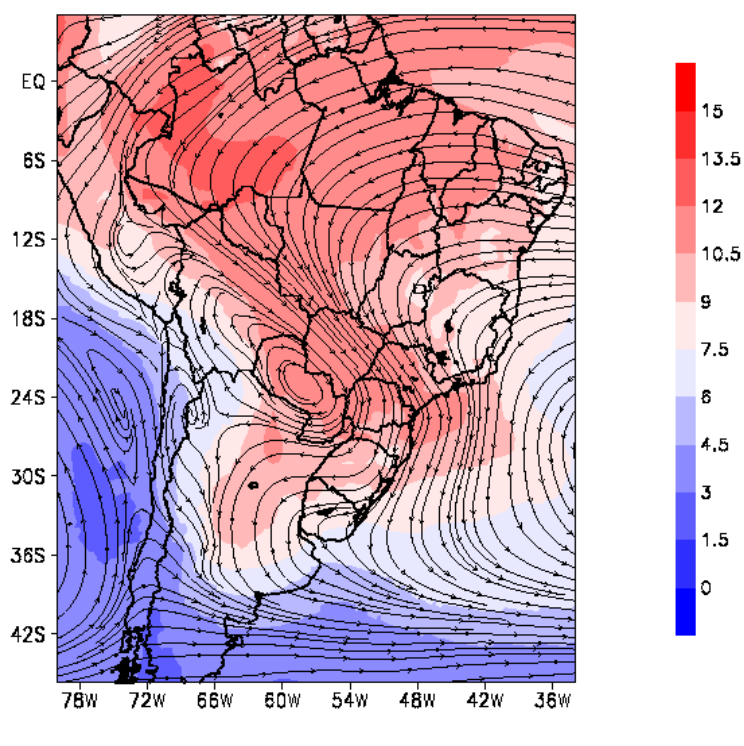
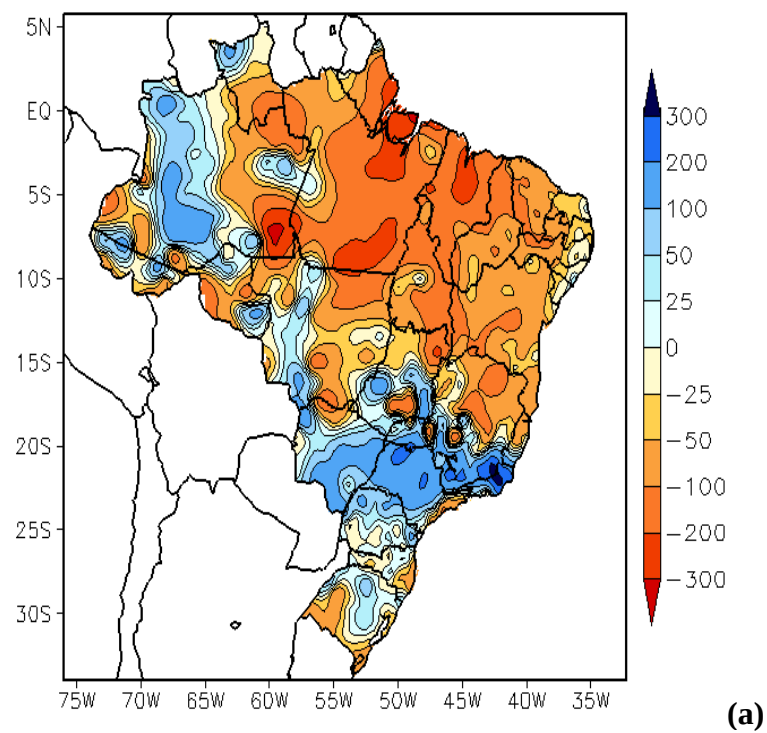


Figura 5.2 – (a) Desvios de precipitação total observada (em mm) com relação à média climatológica para JANEIRO/2007 (Fonte: INMET) e (b) média da razão de mistura (em g/kg) e linhas de corrente do campo de vento em 850 hPa, simulada na primeira quinzena de janeiro, na qual atuaram dois episódios de ZCAS.

O trimestre JAS é típico de estiagem no Brasil; no mês de agosto houve persistência de uma intensa massa de ar quente e seco na maior parte do Brasil Central e no mês de setembro, em particular na primeira quinzena, predominou uma intensa circulação anticiclônica na baixa troposfera (BOLETIM CLIMANÁLISE, 2007) que contribuiu para a escassez de chuva e aumento significativo da quantidade de queimadas, conforme pode ser visto na Figura 5.3.

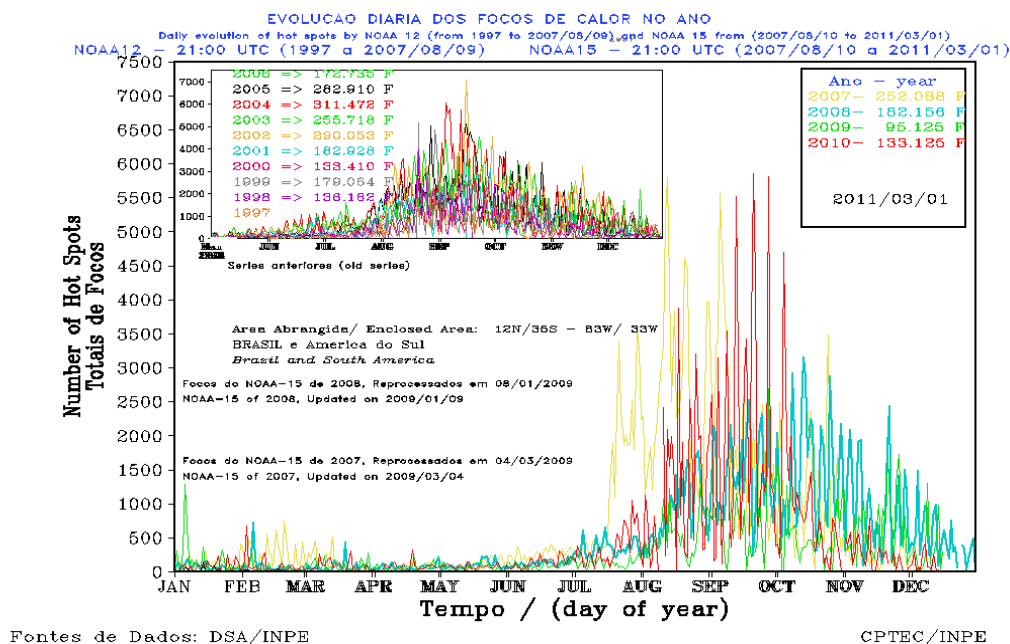
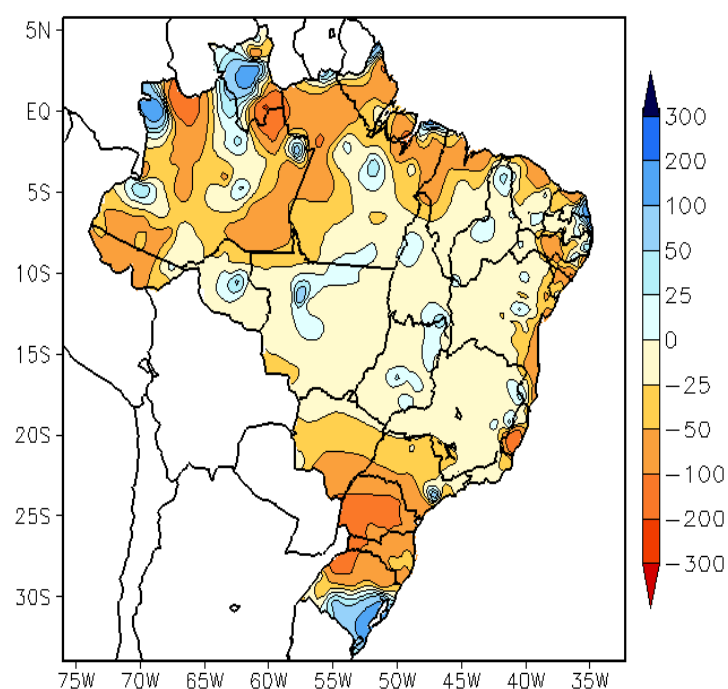
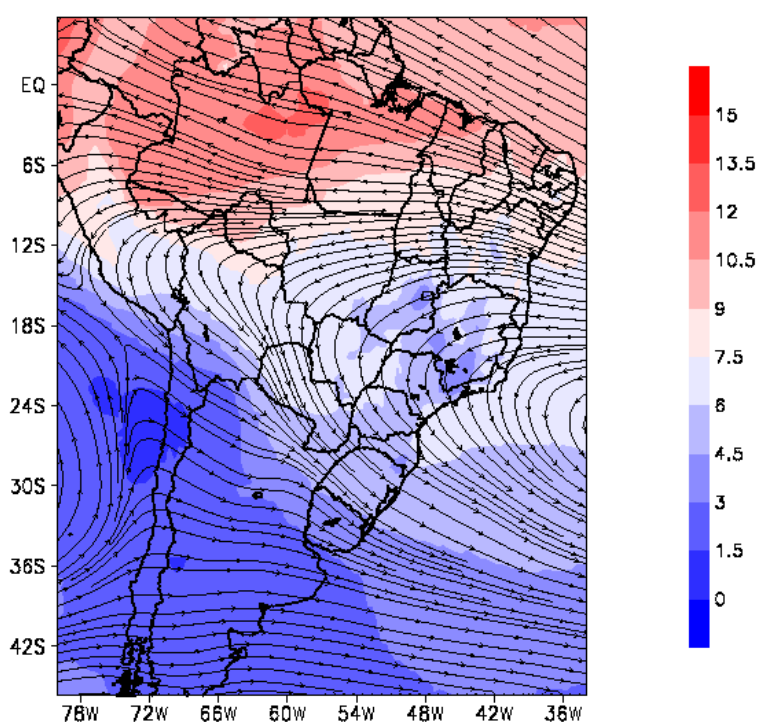


Figura 5.3 – Evolução diária dos focos de calor no período de 2007 – 2010 e 1997 – 2006 (quadro menor). Fonte: DSA/CPTEC/INPE.

Na Região Norte, durante o mês de setembro, destacou-se a maior atividade convectiva sobre o Amazonas, Roraima e extremo noroeste da América do Sul (BOLETIM CLIMANÁLISE, 2007) e precipitação abaixo da média histórica em boa parte da região central e sudeste do Brasil. Destaca-se a boa representatividade desses padrões analisando-se o fluxo de umidade simulado em 850 hPa no experimento REFERÊNCIA, para o mês de agosto de 2007 (Figura 5.4).



(a)



(b)

Figura 5.4 – (a) Desvios de precipitação total observada (em mm) com relação à média climatológica para AGOSTO/2007 (Fonte: INMET) e (b) médias mensais da razão de mistura (em g/kg) e linhas de corrente do campo de vento em 850 hPa, simuladas para o ano de 2007.

5.3.2 Comparação com as observações

Um dos objetivos mais importantes nesse trabalho é representar consistentemente os mecanismos responsáveis pela formação e destruição do ozônio nas escalas local e regional simultaneamente, pois as relações entre ozônio e precursores experimentadas nas diferentes escalas dependem não só da resolução espacial, mas também das fontes de emissão associadas, ou seja, o regime de formação/destruição do ozônio é diferente em áreas urbanas e rurais, porém não é independente.

A simulação REFERÊNCIA, que inclui todas as emissões, apresentou coerente distribuição do ozônio troposférico integrado na coluna, quando comparada com a média mensal simulada com a estimada pelo satélite OMI/MLS (ZIENKE et al., 2006). Porém os valores simulados em geral superestimaram a observação, principalmente nas altas latitudes. Todavia, salienta-se que o produto estimado por satélite não pôde ser avaliado com radiossondagens pontuais, pois a posição da tropopausa apresenta uma significativa variabilidade diária nos extratropicos (ZIENKE et al., 2006). A Figura 5.5 mostra o exemplo para os meses de janeiro e novembro.

Embora o domínio usado no experimento se limite à América do Sul, o modelo conseguiu captar consistentemente dois aspectos importantes do transporte de ozônio em larga escala: a atuação do anticiclone do atlântico sul na distribuição do ozônio, com forte advecção no sentido sudeste-sul do Brasil nos níveis baixos e advecção para nordeste em altos níveis do ozônio produzido por queimadas na AS e o transporte de gases e aerossóis emitidos por queimadas vindos da África (FREITAS et al., 2005; SUDO et al., 2007), esse último devido a condição de contorno química da climatologia mensal do modelo MOCAGE utilizada nas simulações.

Quanto à representatividade dos processos de formação e destruição do ozônio na escala local, constatou-se que o modelo simulou consistentemente o ciclo diurno, a variabilidade mensal e o valor da média horária do ozônio em três grandes regiões metropolitanas analisadas: São Paulo e Belo Horizonte, no Brasil, e Santiago, no Chile, embora tenha superestimado o valor observado em boa parte dos meses na RMBH e no primeiro trimestre do ano na RMSP. A

superestimativa do ozônio na RMBH possivelmente foi causada por dois motivos principais: o ozônio observado foi obtido do monitoramento com apenas uma estação próxima a uma via de trânsito, fonte principal de NO_x e COVNM em áreas urbanas, portanto pode não ser representativo de toda área metropolitana e a variabilidade horária da emissão urbana para todas as cidades segue o padrão observado na RMSP, portanto, pode não ser representativo do tráfego experimentado na RMBH.

Na RMSA os valores de ozônio simulados apresentaram muito boa concordância com o observado pela rede de monitoramento local.

Salienta-se a boa representação dos processos locais de remoção noturna do ozônio em áreas urbanas na RMSP e RMSA (Figuras 5.6 e 5.8). Isso ocorre pela introdução de um ciclo diurno das emissões baseado em estimativas realizadas em estudos de campo na RMSP (CETESB, 2008), aplicado às demais cidades e pela correta representação dessas emissões no inventário regional, no que diz respeito ao valor e distribuição.

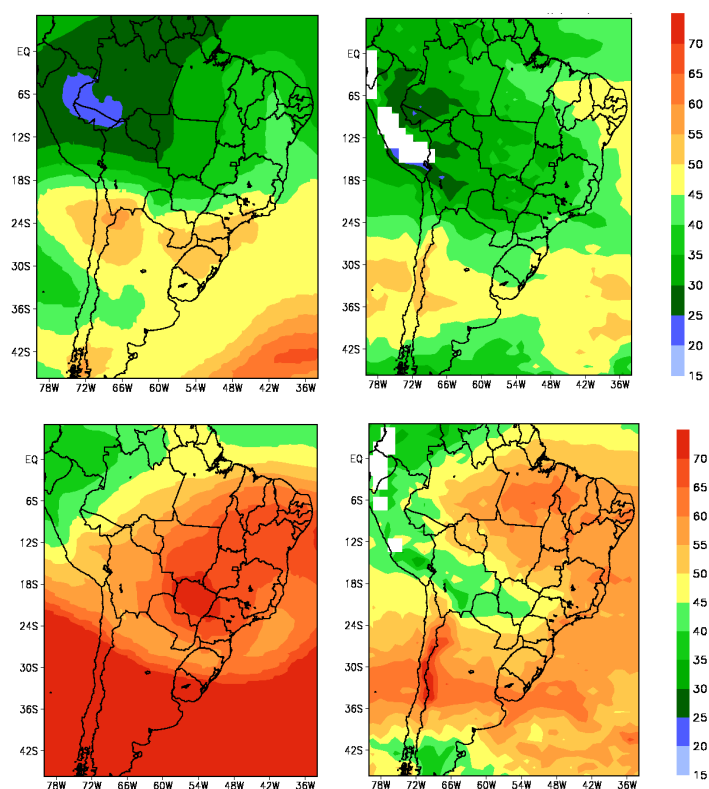


Figura 5.5 – Ozônio integrado na coluna, simulado (esquerda) e estimado pelo satélite OMI/MLS (direita) para janeiro (acima) e novembro (abaixo) de 2007, em ppbv.

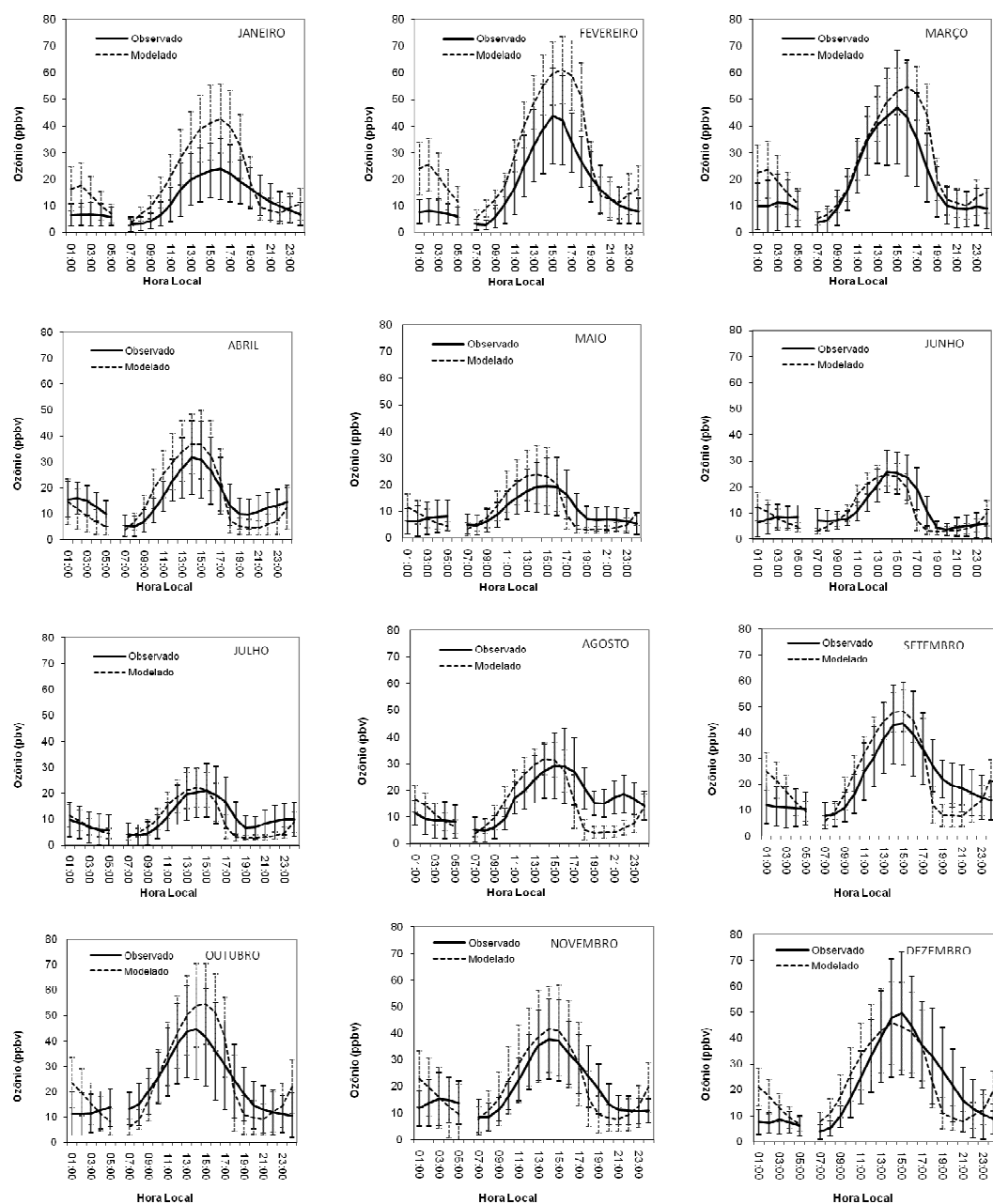


Figura 5.6 – Média horária da razão de mistura de O_3 observados (linha contínua) e simulados pelo experimento REFERÊNCIA (linha tracejada) para a Região Metropolitana de São Paulo. Os desvios padrões do valor observado são em relação à média espacial obtida das estações pertencentes à RMSP.

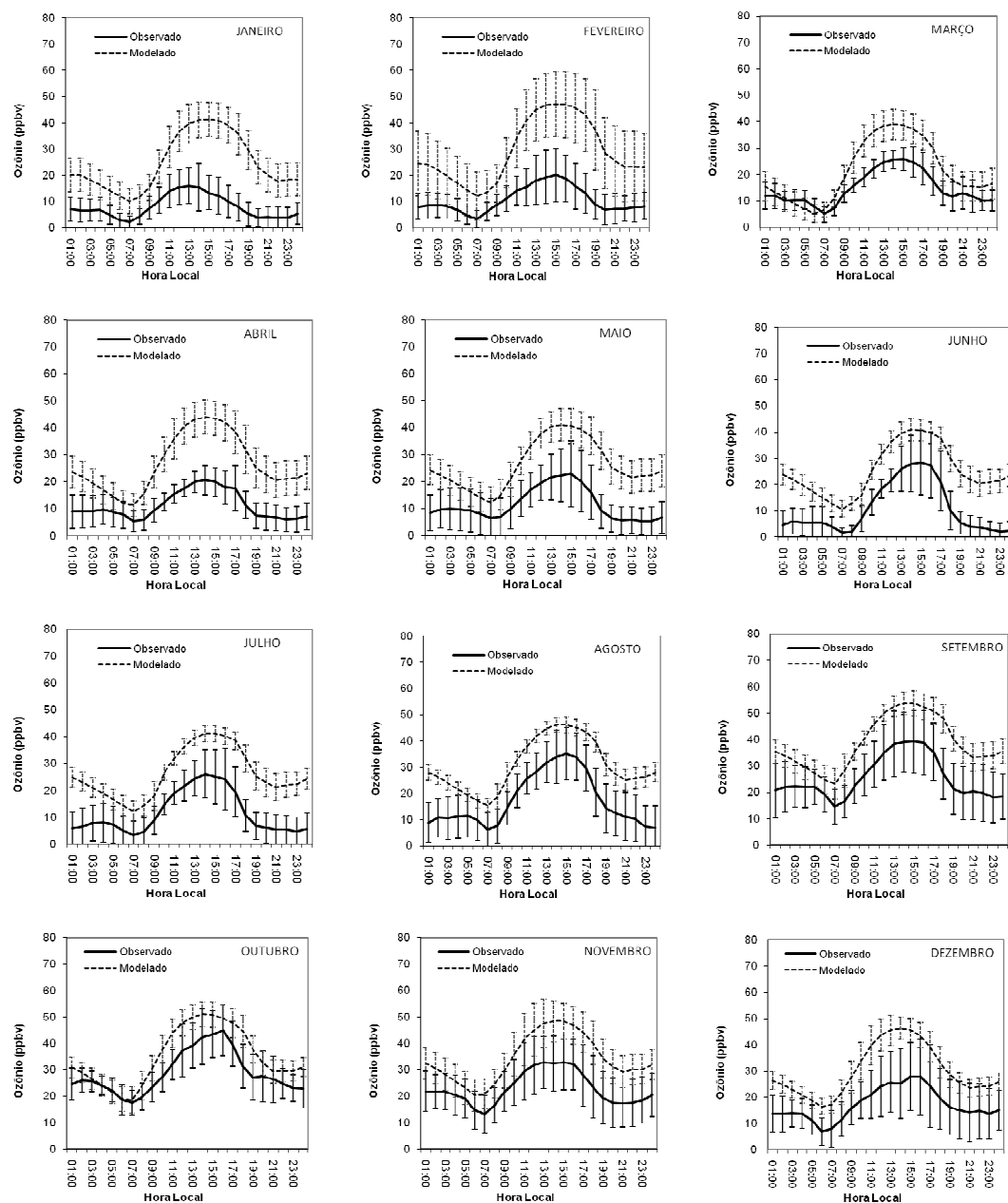


Figura 5.7 – Média horária da razão de mistura de O_3 observados (linha contínua) e simulados pelo experimento REFERÊNCIA (linha tracejada) para a Região Metropolitana de Belo Horizonte. Os desvios padrões do valor observado são em relação à média temporal.

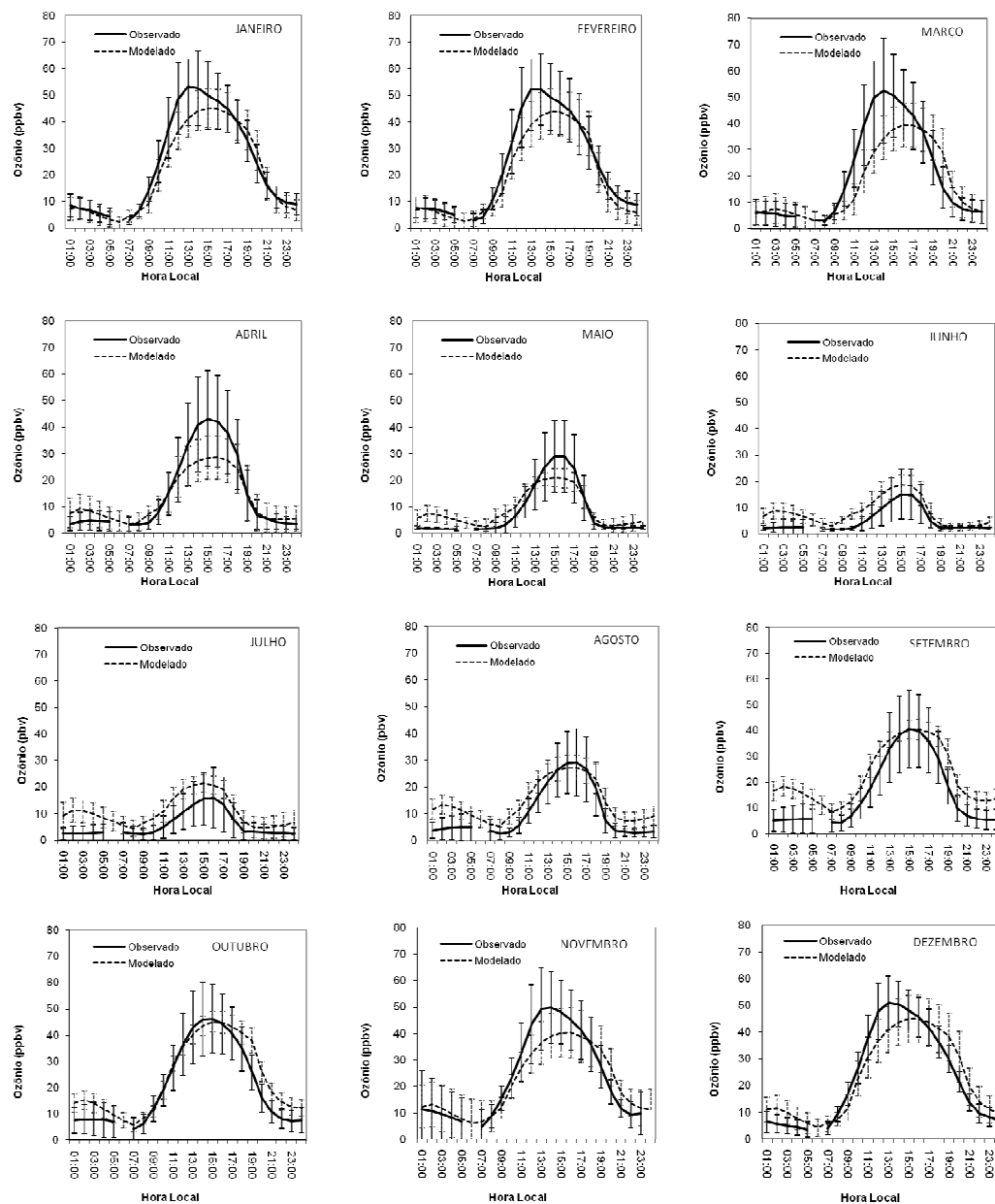


Figura 5.8 - Média horária da razão de mistura de O_3 observados (linha contínua) e simulados pelo experimento REFERÊNCIA (linha tracejada) para a Região Metropolitana de Santiago do Chile. Os desvios padrões do valor observado são em relação à média espacial obtida nas estações espalhadas pela área urbana.

A Figura 5.9 mostra a comparação do NO_x simulado pelo experimento REFERÊNCIA e observado pelas estações Ibirapuera, São Caetano e USP na

RMSP, para os trimestres de 2007. No geral, o modelo captou consistentemente o ciclo diurno da razão de mistura. Para o trimestre de janeiro a março (JFM), houve superestimativa do valor observado no final da tarde e no trimestre de outubro a dezembro (OND) em todos os horários, não representando uma possível variabilidade sazonal da emissão de NO_x na RMSP, o que sugere a necessidade da incorporação de parâmetros quantitativos relacionados à processos socioeconômicos que afetam a variabilidade semanal e mensal do tráfego urbano em regiões metropolitanas. Salientam-se altos valores de desvio padrão nos dados observados de NO_x para os trimestres mais secos, isso ocorre porque a estação de São Caetano, que compõe a série de dados, é próxima à via de tráfego.

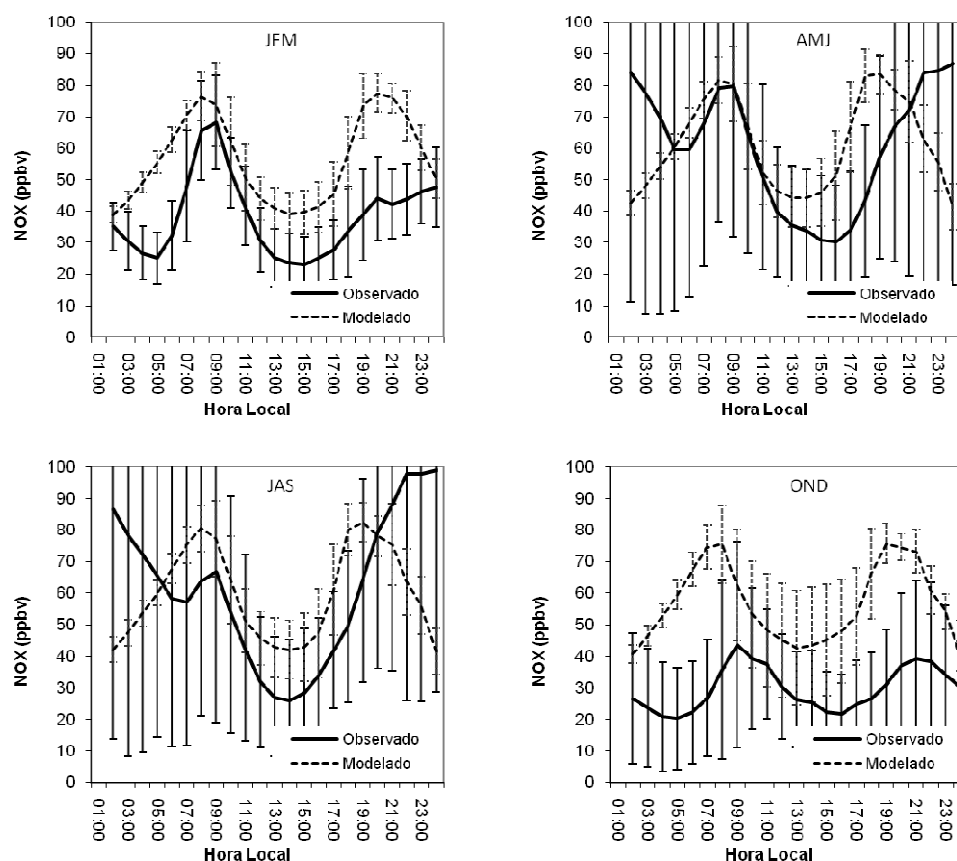


Figura 5.9 - Média horária da razão de mistura de NO_x observados (linha contínua) e simulados pelo experimento REFERÊNCIA (linha tracejada) para a Região Metropolitana de São Paulo, nos trimestres de 2007.

Embora tenha superestimado os valores de NO_x no trimestre OND, a simulação REFERÊNCIA representou consistentemente o ciclo diurno do

ozônio, o que evidencia a não linearidade da relação entre a concentração desse poluente secundário com seus precursores.

Comparando as razões de COVs/NO_x(ppbC/ppbv) para a Região Metropolitana de São Paulo (Figura 5.10) simulados pelo experimento REFERÊNCIA, durante todo o ano de 2007, percebe-se claramente valores abaixo de 5:1 durante praticamente todo ano, não mostrando nenhuma variabilidade mensal significativa. Conforme estabelecido em vários estudos sobre a formação e destruição do ozônio em megacidades (DODGE, 1977; SILLMAN et al., 2003), razões abaixo de 5:1 evidenciam um ambiente sensível aos COVs, ou seja, reduz-se o ozônio diminuindo a concentração de compostos orgânicos voláteis. Essa característica pode ser acompanhada na Figura 5.11, onde um aumento do NO_x acima de 40 ppbv pode inibir a produção de ozônio e o aumento dos COVs contribui não linearmente com o aumento do ozônio. Para as grandes cidades brasileiras, a razão COVs/NO_x geralmente é baixa, devido ao uso do etanol, que reduz as emissões de COVs e CO, e diesel, que contribui significativamente com as emissões de NO_x (Arbilla et al., 2002).

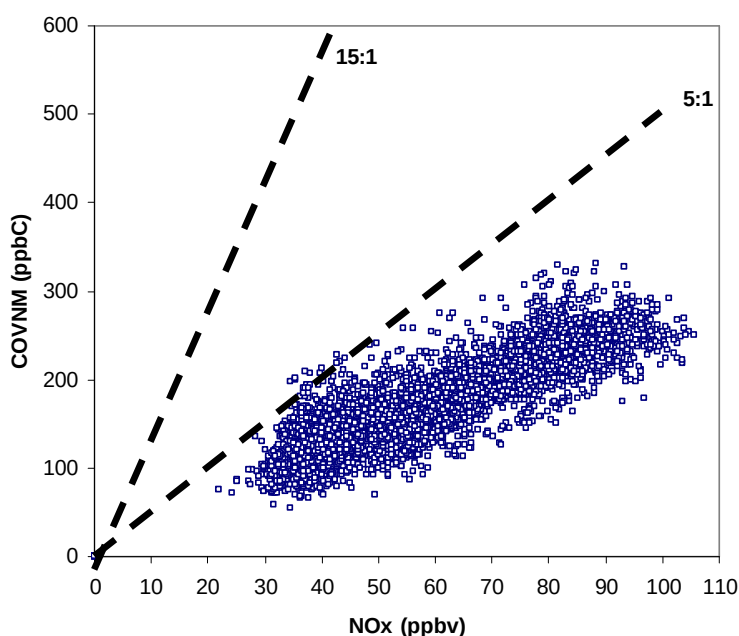


Figura 5.10 – Razão entre as concentrações de COVs e NO_x (ppbC/ppbv) simuladas pelos experimento REFERÊNCIA.

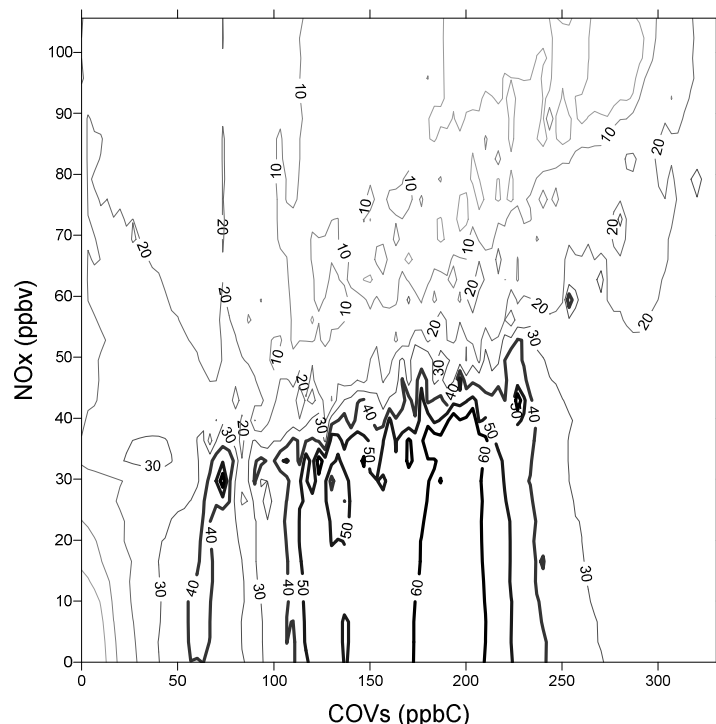


Figura 5.11 – Isopletas da concentração de ozônio simulado na Região Metropolitana de São Paulo (ppbv).

5.3.3 Distribuição regional do ozônio troposférico e precursores sobre a AS

Regionalmente, o ozônio possui uma distribuição sazonal bem definida devido a três fatores principais: os padrões de circulação sobre o continente associados à circulação geral da atmosfera, os fenômenos meteorológicos de meso-escala e escala sinótica e a sazonalidade das fontes de emissão dos precursores. Especificamente nos níveis mais baixos, conforme pode ser visto na Figura 5.12, que mostra a média mensal do ozônio simulada pelo experimento REFERÊNCIA, foram encontrados máximos em torno de 55 ppbv na região sudeste do Brasil, durante o primeiro quadrimestre, e valores médios acima de 30 ppbv no norte da Argentina, boa parte da extensão territorial do Chile e litoral do Equador, Colômbia e Venezuela. Já no trimestre de JAS, no qual se registraram maior quantidade de focos de queimadas na AS, há um aumento significativo no background do ozônio sobre a região central do Brasil. No sudeste brasileiro, região onde se concentra algumas das maiores áreas metropolitanas da América do Sul, o que inclui a sexta maior do mundo, o

ozônio médio se mantém acima de 40 ppbv em boa parte do ano, exceto no período de maio a julho. Isso ocorre porque os valores de NO_x são mais altos nesse período (Figuras 5.9 e 5.13), e em ambientes com altas concentrações de óxidos de nitrogênio, a taxa de formação do ozônio pode diminuir não linearmente com o aumento da concentração de NO_x (SILLMAN et al., 2003).

A distribuição do ozônio nos níveis mais altos é sazonalmente dependente da atividade de queimadas, porém, sofre também influência do transporte intercontinental de ozônio e precursores vindos do centro-norte (HN) e sul (HS) do continente africano, nas respectivas estações secas (Figura 5.14). Conforme pode ser visto na Figura 5.15, que mostra os perfis verticais trimestrais de ozônio observado sobre a RMSP por aviões de carreira no período de 1996 a 1998 (projeto MOZAIC) e os perfis simulados no experimento REFERÊNCIA, para o ano de 2007, as queimadas que ocorrem na América do Sul durante a estação seca influenciam a concentração de ozônio nos médios e altos níveis na RMSP, com variação média de 20 ppbv, corroborando com o observado no período de 1996 a 1998.

Analisando a deposição seca do ozônio acumulada para o mês de setembro (Figura 5.16), durante o qual se registrou atividade intensa de queimadas, pode-se elucidar os principais fatores determinantes na distribuição espacial da deposição de ozônio sobre a América do Sul. Nos estados de Mato Grosso e Pará os valores de deposição seca do ozônio estão associados à atividade de queimadas. Já na região sudeste do Brasil, a deposição seca está associada à emissão de origem antrópica urbana, pela presença de grandes centros como São Paulo e Rio de Janeiro. Nota-se que os maiores valores de deposição seca sobre a região sudeste são observados no entorno dessas áreas metropolitanas, onde o ozônio atinge máxima intensidade. Os valores de deposição simulados pelo experimento sobre a região nordeste do Brasil podem ser explicados por um fator adicional à emissão local urbana: a recirculação da pluma regional produzida pelas queimadas e das emissões urbanas (Figura 5.14). Padrões semelhantes foram encontrados por Longo et al. (1999) durante a campanha SCAR-B (*Smoke, Clouds, and Radiation-Brazil*) durante a estação seca de 1995. Nas regiões norte da Argentina, Bolívia e leste do Peru, os altos valores de deposição seca do ozônio estão relacionados ao transporte continental pela presença dos jatos de baixos níveis.

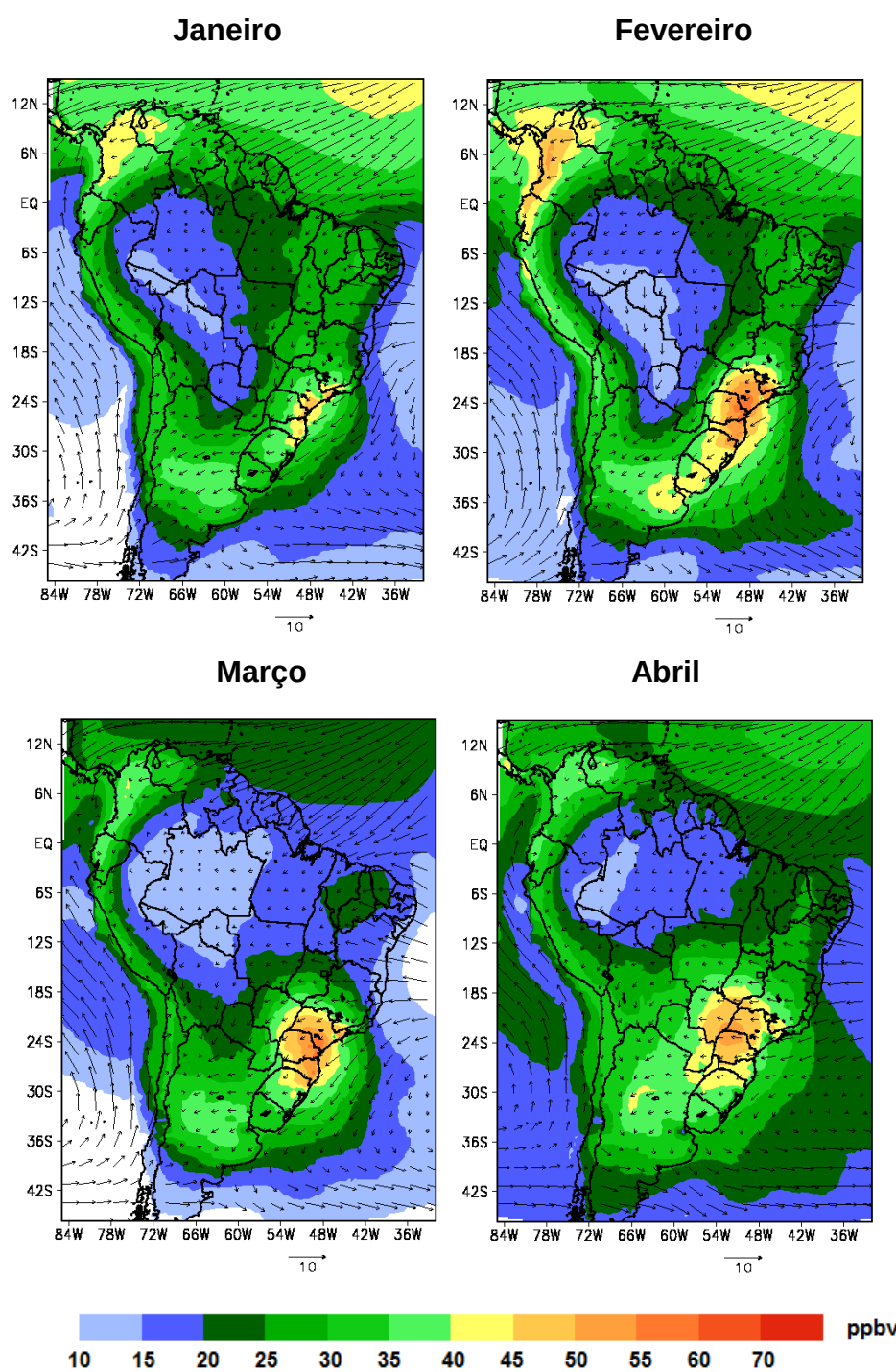


Figura 5.12 – Média mensal de ozônio simulada pelo experimento REFERÊNCIA, com todas as emissões, no nível da superfície, em ppbv e vento médio, em m/s. (Continua)

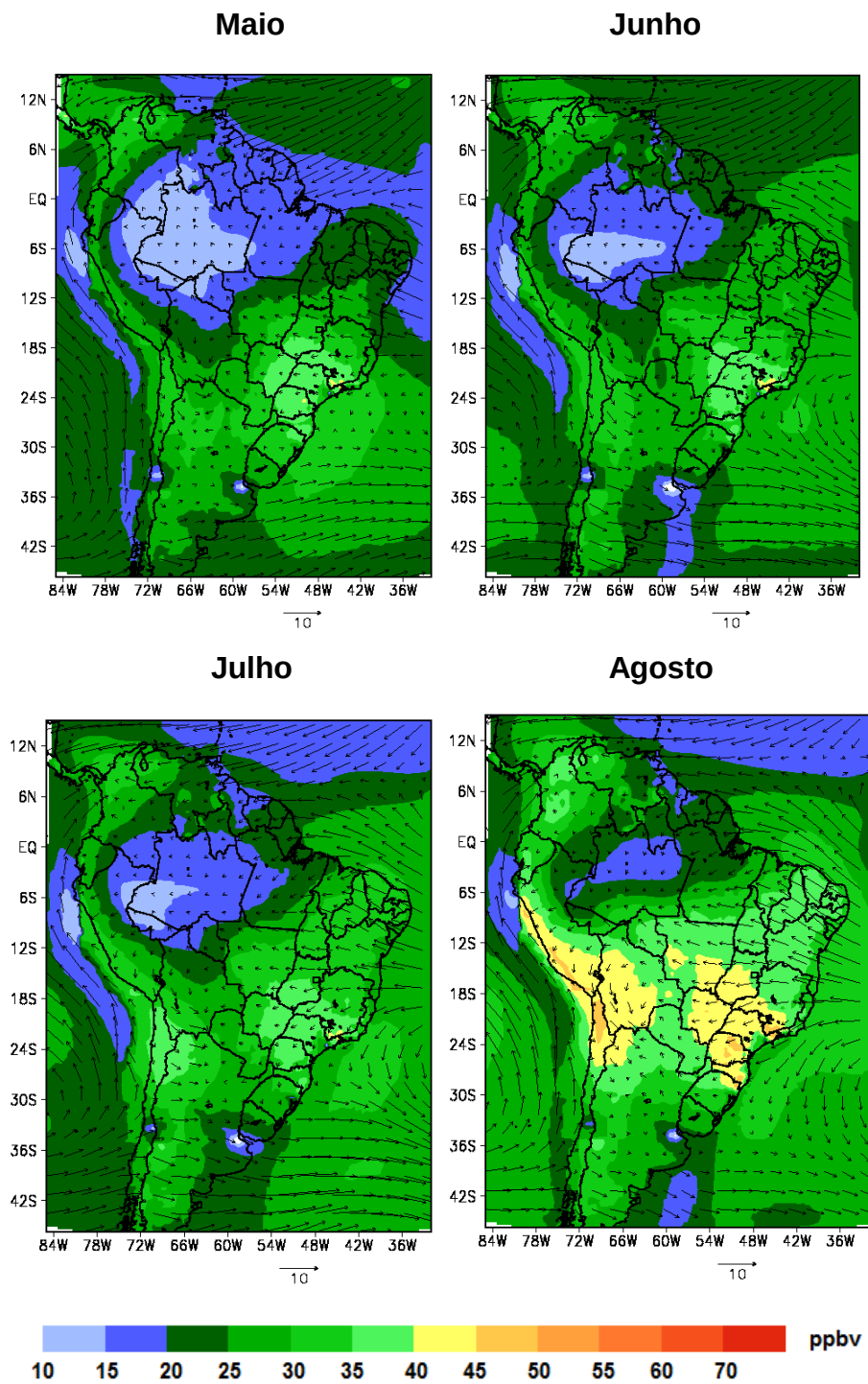


Figura 5.12 – Continuação (Continua)

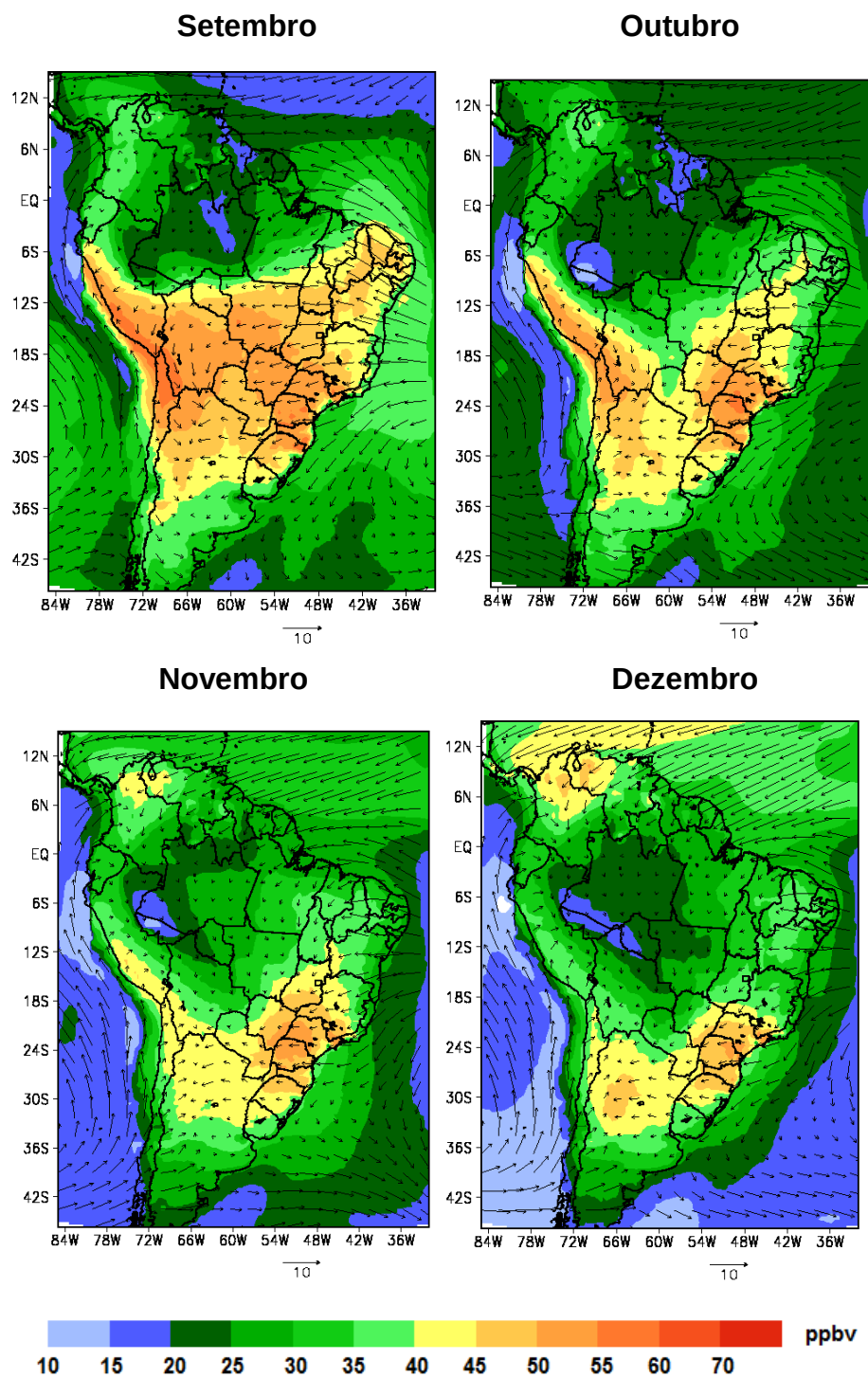


Figura 5.12 – Conclusão.

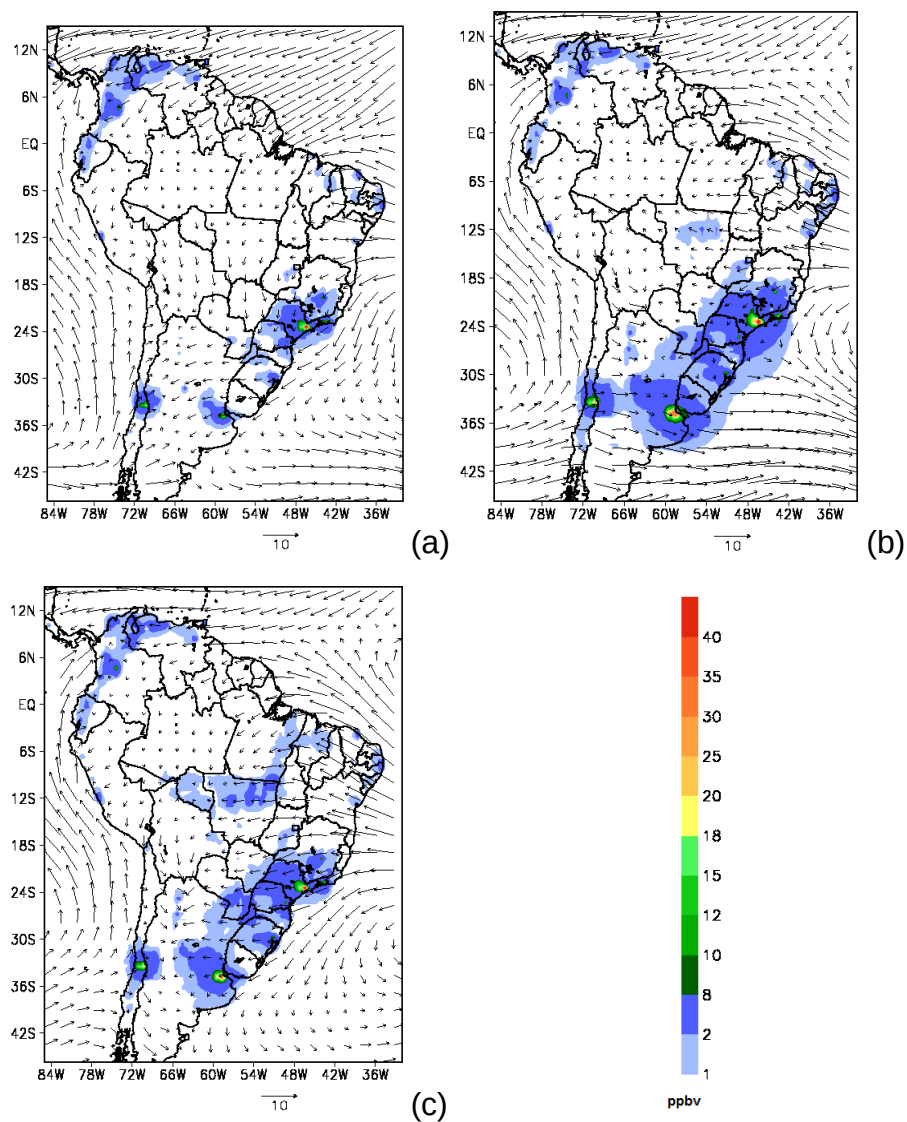


Figura 5.13 – Média mensal do NO_x simulado nos meses de janeiro (a), julho (b) e setembro (c) na superfície. Os vetores referem-se ao vento médio na camada até 1 km.

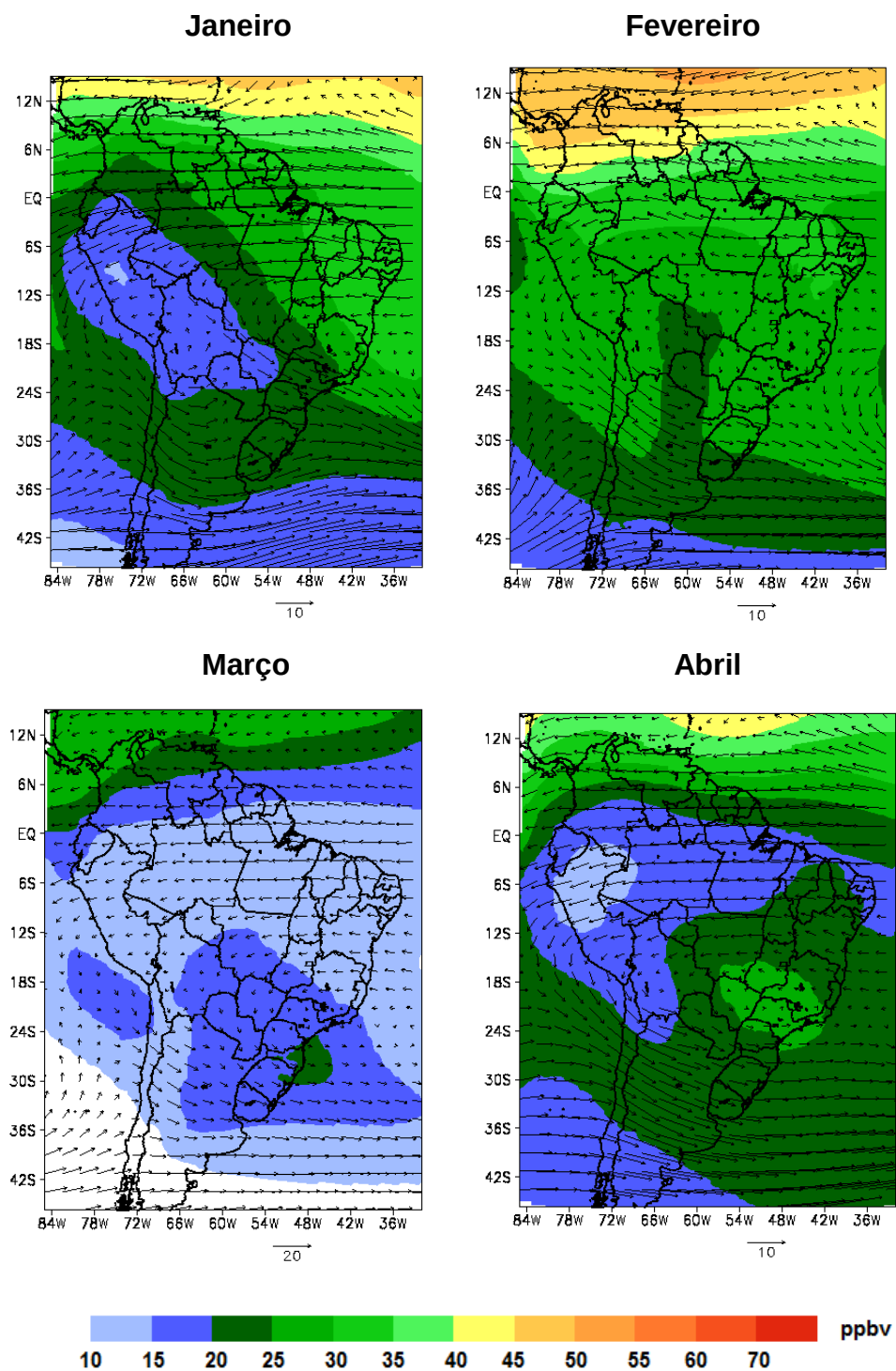


Figura 5.14 – Média mensal de ozônio simulada pelo experimento REFERÊNCIA, com todas as emissões, em ppbv, e vento médio, em m/s, no nível de 700 hpa. (Continua)

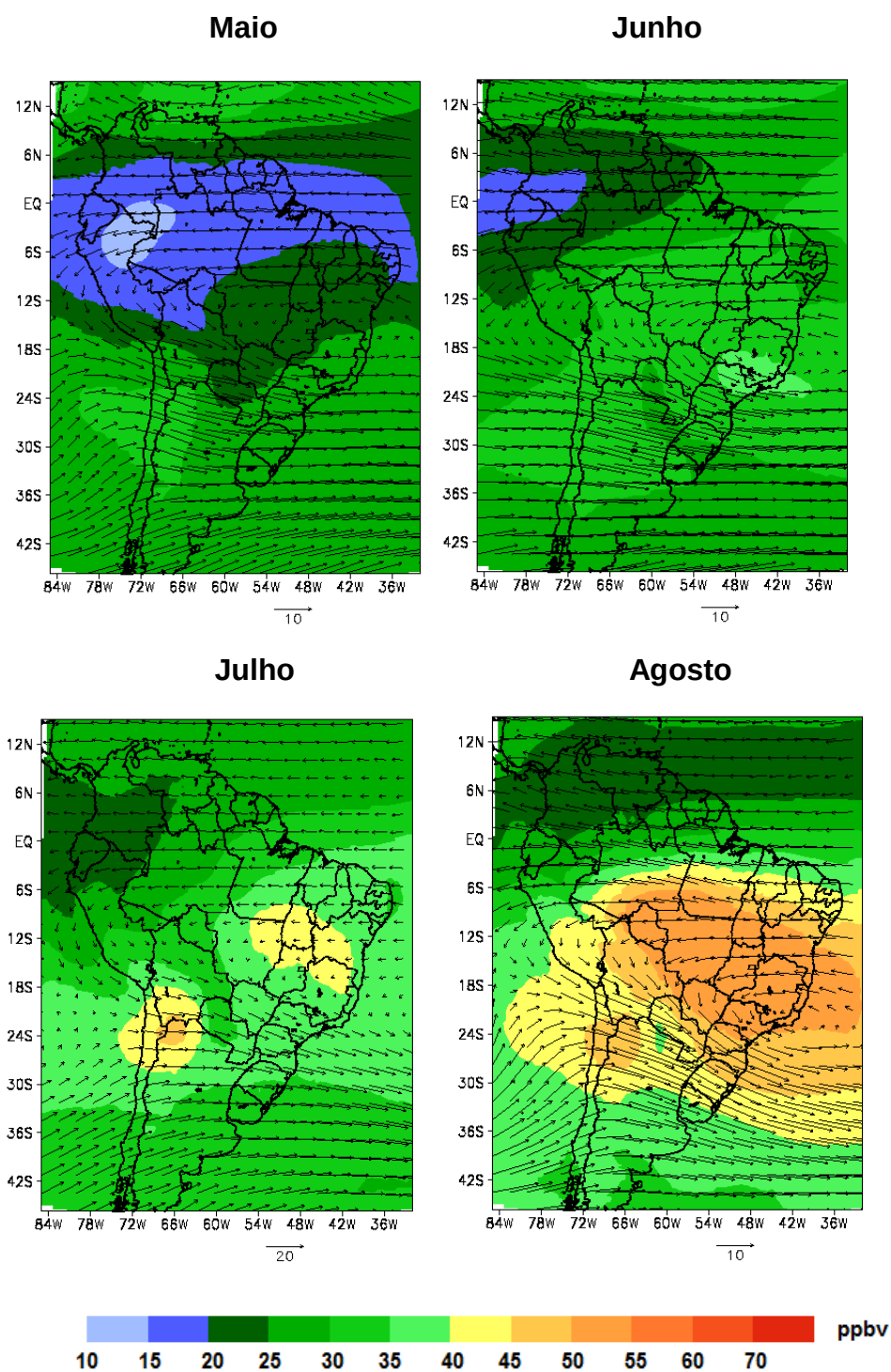


Figura 5.14 – Continuação (Continua)

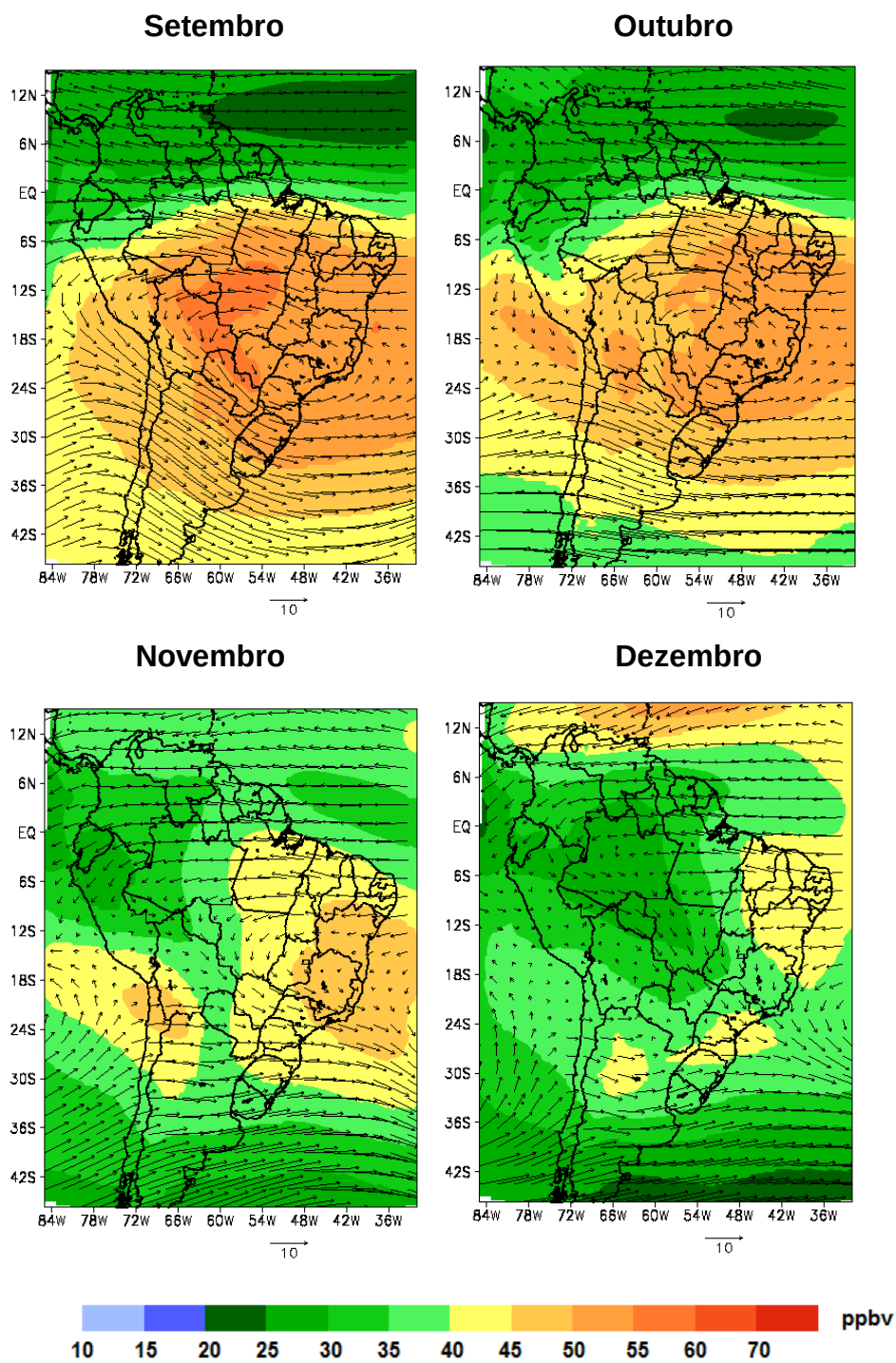


Figura 5.14 – Conclusão.

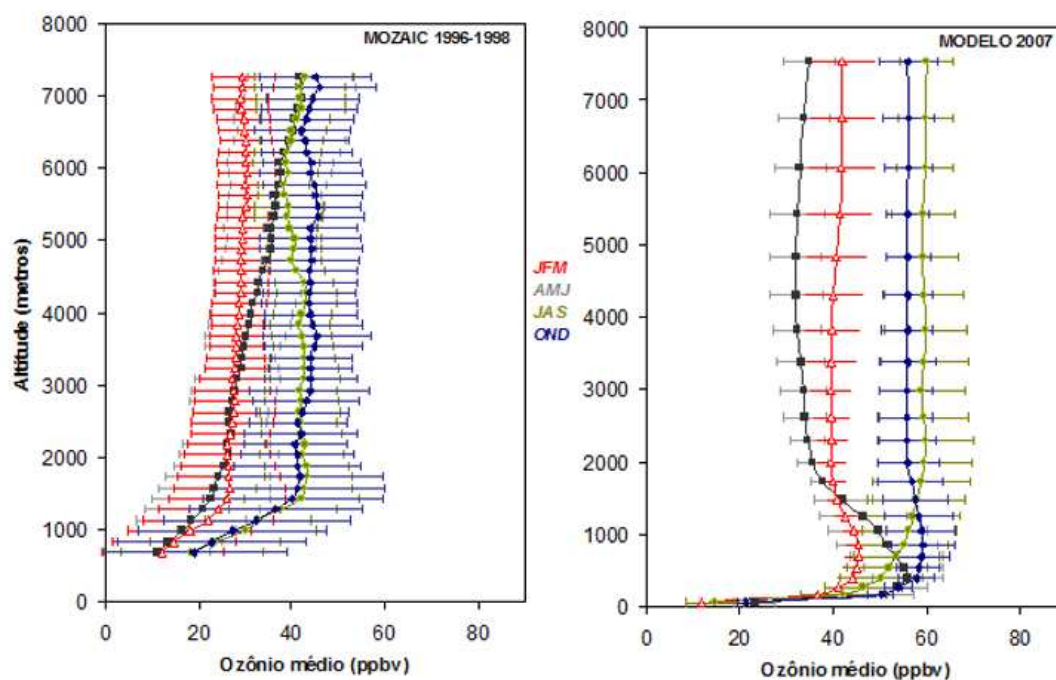


Figura 5.15 – Perfil vertical do ozônio médio simulado pelo experimento REFERÊNCIA (período de 2007) e observado no projeto MOZAIC (período de 1996 a 1998) na Região Metropolitana de São Paulo, em ppbv.

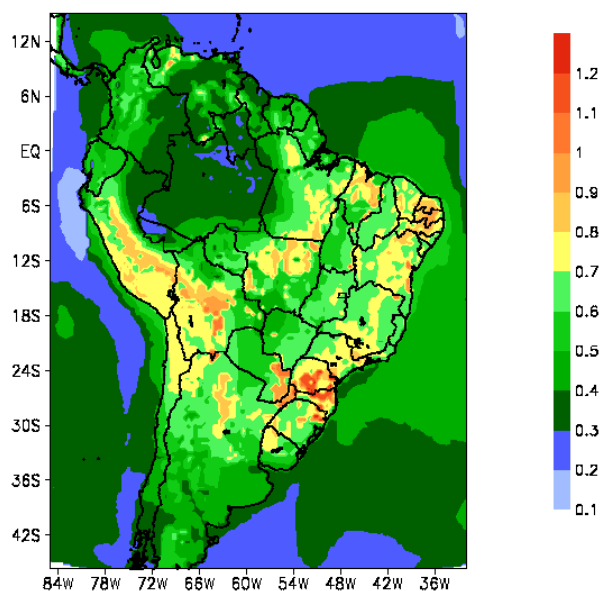


Figura 5.16 – Deposição seca do ozônio acumulada no mês de setembro ($\times 10^{-3} \text{ Kg/m}^2$)

5.3.4 – Contribuição das áreas urbanas na distribuição regional de ozônio

A influência das áreas urbanas na distribuição regional do ozônio sobre a América do Sul foi avaliada, através da diferença entre o experimento REFERÊNCIA, que inclui todos os tipos de emissões, e o experimento SURBAN, no qual se exclui a emissão de origem urbana. A Figura 5.17 mostra a porcentagem de contribuição das áreas urbanas na composição do ozônio médio mensal sobre o continente (ou do inglês, *footprint*), nos primeiros 2 km de altitude. Primeiramente, salienta-se que sobre os grandes centros urbanos sul-americanos (RMSP, RMBH, RMBA e RMSA) a taxa de influência é menor que nas redondezas e negativa em alguns meses do inverno. Isso ocorre porque essas metrópoles apresentam intensa emissão de NO_x e COVs, caracterizando um regime de depreciação do ozônio próximo a fonte, pela remoção noturna, característica das áreas urbanas com alta emissão de precursores. Esse resultado corrobora os de Butler e Lawrence (2009) em simulações na escala global. A Figura 5.18 ilustra esse aspecto, através das médias horárias do ozônio simulado para a RMSP pelos experimentos REFERÊNCIA e SURBAN.

No centro, nordeste e sul da América do Sul, a influência das áreas urbanas na distribuição de ozônio possui um comportamento sazonal definido com a estação úmida e seca, apresentando valores acima de 70% nas proximidades de grandes centros urbanos no primeiro e último trimestre e máximos de até 65% no período seco, justamente pelo aumento das queimadas. Esse comportamento é mais evidente observando-se a influência na região central do Brasil, com valores de no máximo 20% nos meses de agosto e setembro. Nas regiões sudeste e sul do Brasil, registraram-se as mais altas percentagens, pois é uma região com alto Produto Interno Bruto e maiores índices de renda per capita municipal e, portanto, com a emissão urbana mais significativa. As metrópoles sul-americanas, que emitem grandes quantidades de óxidos de nitrogênio e compostos orgânicos voláteis não-metano, apresentam um regime de depreciação do ozônio próximo à fonte de fraca-moderada (JFM e OND) a forte (abril a setembro), porém contribuem significativamente com a geração de ozônio nas áreas vizinhas, afetando a qualidade do ar em centenas de quilômetros.

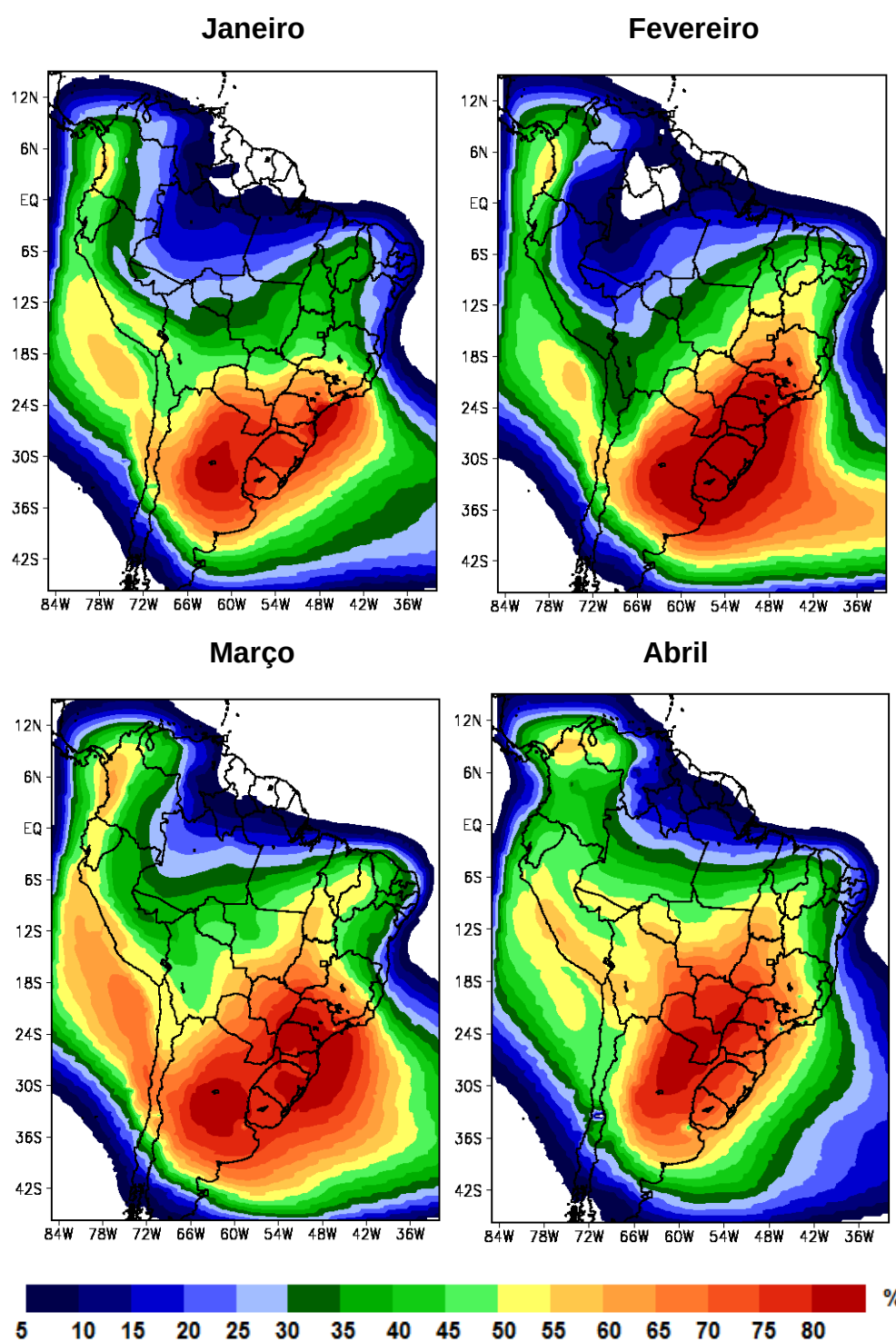


Figura 5.17 – Percentagem de contribuição das áreas urbanas na concentração de ozônio sob os primeiros 2 km acima da superfície. (Continua)

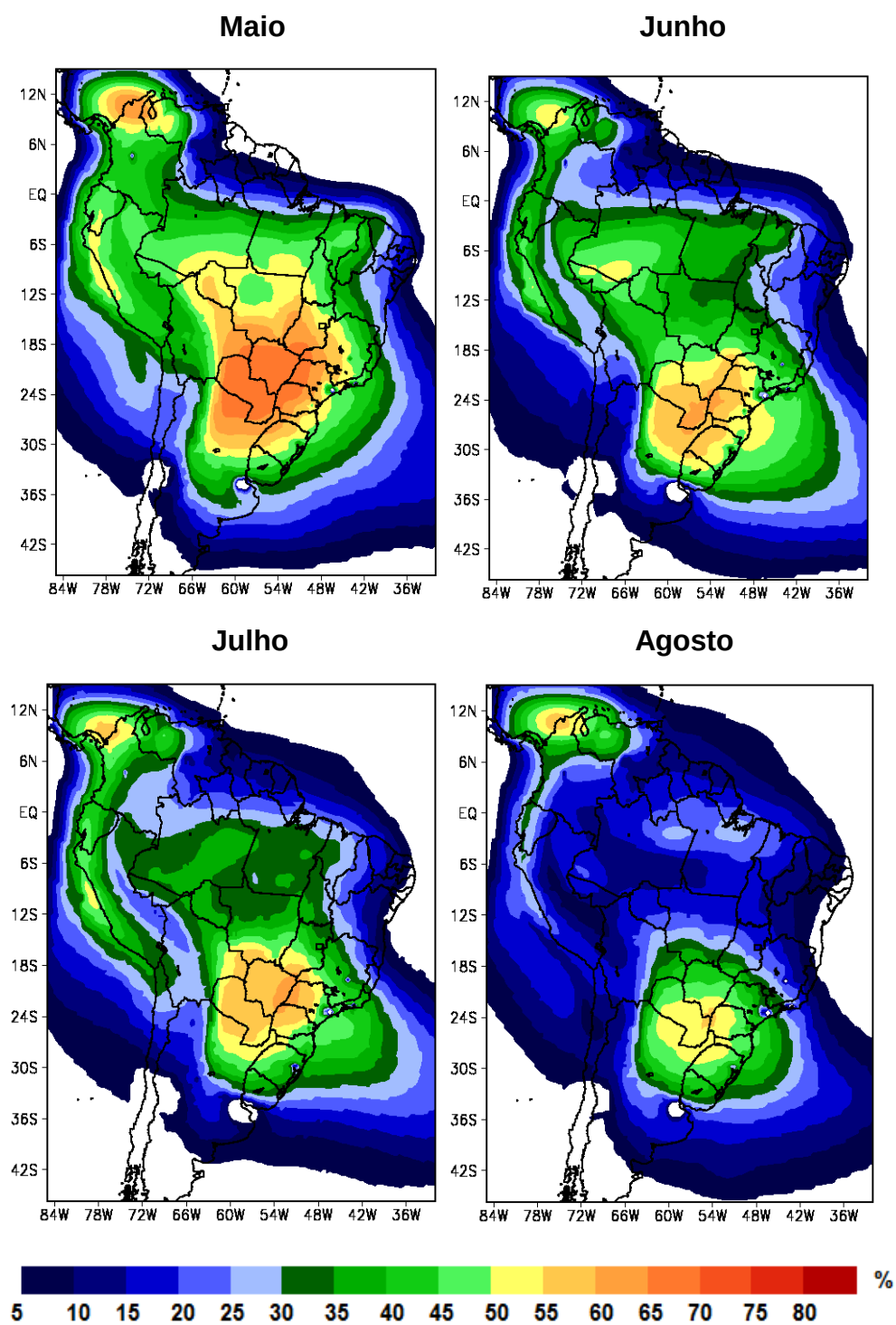


Figura 5.17 – Continuação (Continua).

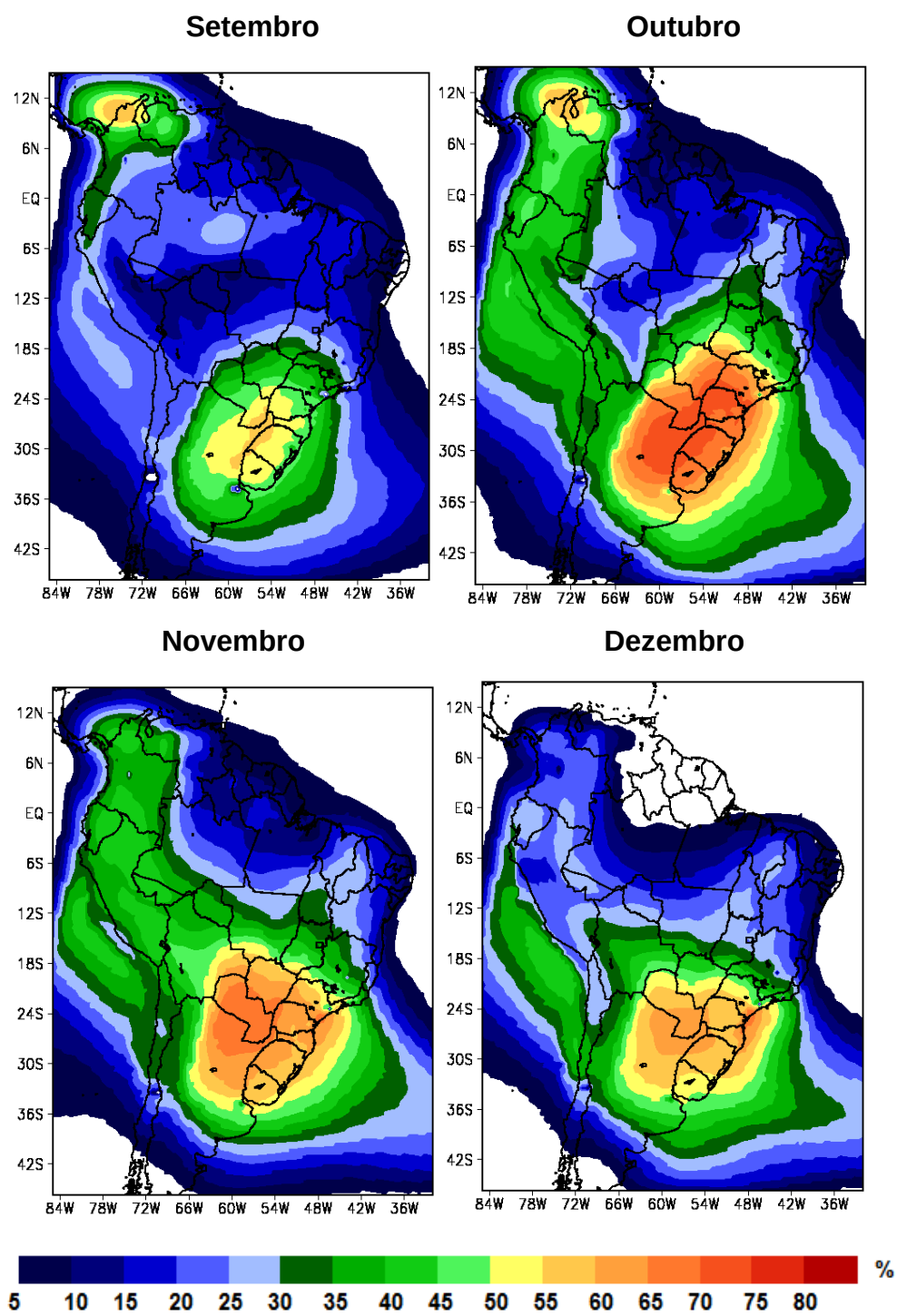


Figura 5.17 – Conclusão.

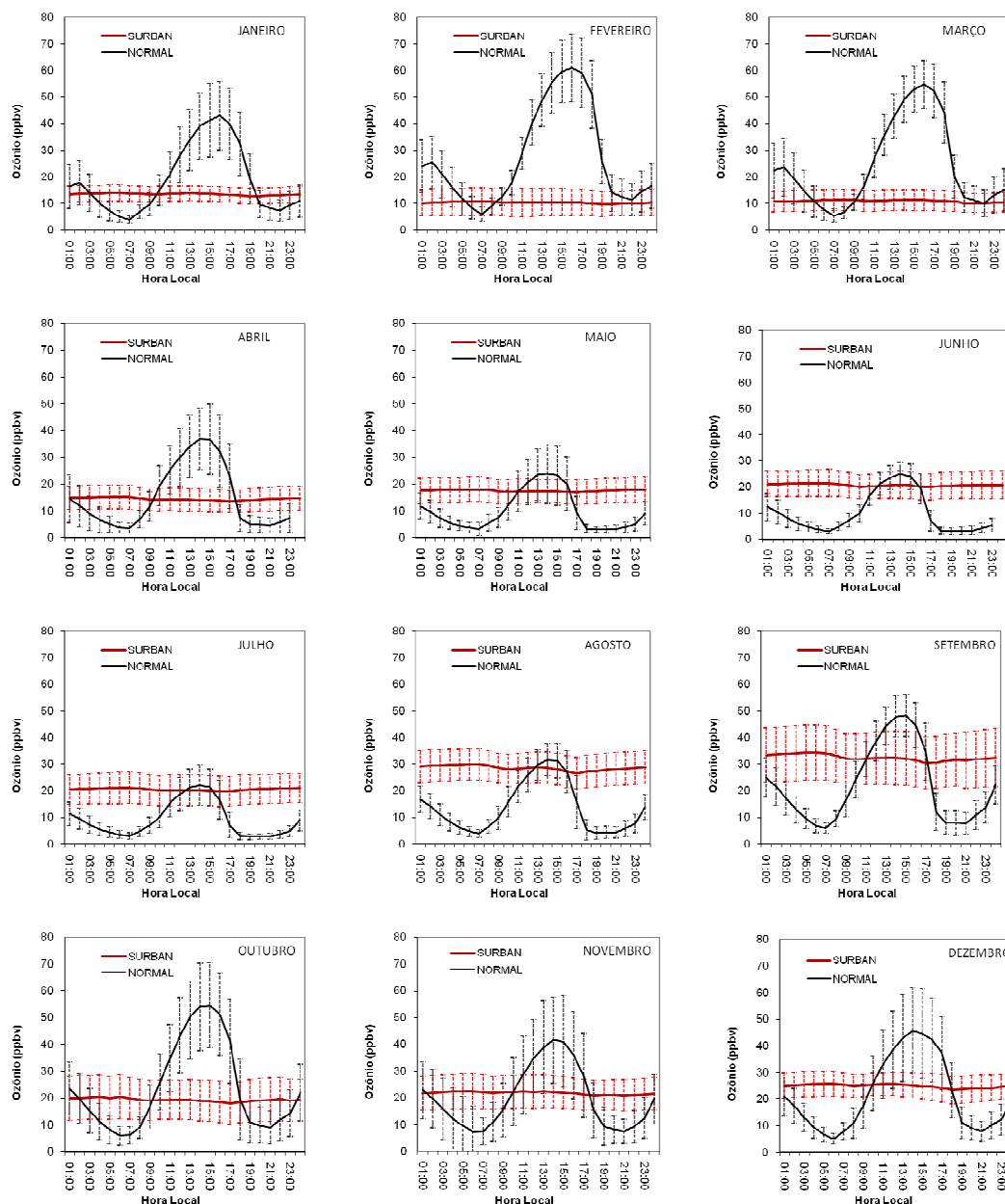


Figura 5.18 – Média horária da razão de mistura de O_3 simulada pelo experimento REFERÊNCIA (linha preta) e pelo experimento SURBAN (linha vermelha) para a Região Metropolitana de São Paulo.

A influência das áreas urbanas se estende por todo litoral oeste da América do Sul, com ênfase no norte da Colômbia e noroeste da Venezuela, próximo a grandes centros como Bogotá, Barranquilla e Maracaibo. Na região norte do Brasil, quando analisamos a porcentagem de contribuição no mês de setembro, fica mais evidente a atuação de dois importantes centros urbanos na distribuição de ozônio na região: Manaus e Belém do Pará.

5.4 Conclusões parciais

Estudou-se a influência regional da emissão de origem antrópica urbana nos regimes de formação e destruição do ozônio na escala regional sobre a América do Sul. Quanto à distribuição, avaliada com os resultados da simulação REFERÊNCIA, o ozônio apresenta um ciclo sazonal bem definido pelo tipo de fonte, isto é, com máximos sobre as regiões de maior produto interno bruto durante todo o ano, com ênfase na região sudeste do Brasil e região norte de Colômbia e Venezuela, estendendo-se para a região central e centro-oeste da AS nos meses mais secos, por conta das queimadas (centro e centro-oeste brasileiro, Bolívia e Paraguai). Nos médios e altos níveis, a distribuição do ozônio é sazonalmente dependente da atividade de queimadas, porém, sofre também influência do transporte intercontinental de ozônio e precursores vindos do centro-norte (HN) e sul (HS) do continente africano, nas respectivas estações secas.

Sob análise da diferença percentual entre os experimentos REFERÊNCIA e SURBAN, conclui-se que as emissões urbanas influenciam significativamente o regime de formação e depreciação do ozônio localmente e regionalmente nas camadas inferiores a 2 km, diretamente impactando a qualidade de vida da população. Os resultados mostram considerável regime de depreciação do ozônio médio mensal sobre as fontes, devido às altas concentrações dos precursores NO_x , que desempenham o papel de remoção noturna, e corroboram com simulações globais realizadas anteriormente, apresentando um notado comportamento sazonal nos extratropicais de fraca-moderada (JFM e OND) a forte (abril a setembro). Já nos trópicos, os grandes aglomerados urbanos como Bogotá e capitais das regiões norte e nordeste do Brasil apresentam a mesma característica durante todo o ano (contribuição positiva de formação do ozônio, no geral, apresentando maior intensidade em regiões distas das fontes, particularmente para Bogotá) sem um regime intenso de depreciação local. A contribuição dos médios e grandes centros para o aumento da concentração do ozônio nas áreas vizinhas fica bem evidente durante todo o ano, em áreas distantes das fontes por centenas de

quilômetros, mostrando que o problema da poluição urbana se estende da escala local para a regional.

6 CENÁRIOS DE EMISSÕES ASSOCIADAS À PROJEÇÃO DA ATIVIDADE VEICULAR NO BRASIL

6.1 Introdução

A atualização do banco de dados regional de emissões de origem urbana, com a agregação de inventários locais e o estudo sobre a influência das megacidades sul-americanas na formação e destruição do ozônio sobre a América do Sul auxilia na compreensão de como a poluição urbana age localmente e quais os fatores que contribuem para sua influência regional. Porém, o uso de ferramentas de modelagem numérica proporciona ao pesquisador a oportunidade de estender esse estudo para o prognóstico desse impacto nas próximas décadas.

Como ozônio produzido nas cercanias de áreas urbanas provém de uma complexa interação entre CO, NO_x e COVNM, emitidos em sua maioria (tipicamente acima de 90%) por atividade veicular, deve-se estimar esse parâmetro com a construção de cenários, de forma que represente o mais fielmente possível o comportamento socioeconômico de um determinado nicho populacional.

A geração dos cenários de emissões associados à projeção da atividade veicular, no geral, depende de uma série de fatores sociais, políticos, econômicos e tecnológicos, tornando-o um estudo complexo. A construção dos cenários apresentados nesse capítulo pode ser resumida em quatro etapas: o diagnóstico e prognóstico da oferta e demanda de energia, para a obtenção do consumo final de combustível; a estimativa e projeção da quantidade de veículos circulantes, por tipo e idade; a junção desses dados com os respectivos fatores de emissão para a estimativa final das espécies emitidas; e, finalmente, a desagregação da emissão nacional para as áreas urbanas, no intuito de gerar o mapa regional.

6.2 Metodologia

A Figura 6.1 ilustra as etapas de desenvolvimento dos cenários de emissão dos precursores do ozônio por atividade veicular. Numa primeira etapa, estimou-se o consumo final de combustível pelo setor rodoviário com o uso do modelo de oferta e demanda MESSAGE (do inglês, *Model for Energy Supply Strategy Alternatives and their General Environmental Impacts*) apresentado com detalhes nos itens 6.2.1 e 6.2.2. A estimativa das emissões veiculares da frota nacional é discutida no item 6.2.2. O cálculo das emissões nacionais e a geração dos inventários regionais projetados são discutidos no item 6.2.3.

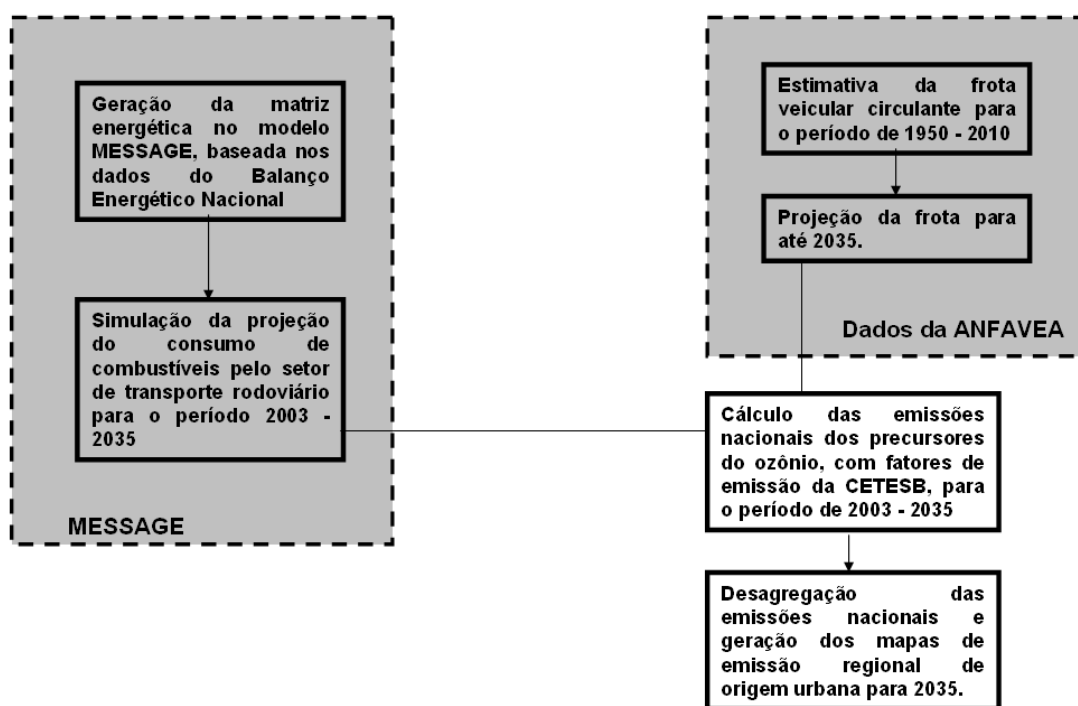


Figura 6.1 – Diagrama esquemático da metodologia proposta para a geração dos cenários de emissão veicular.

6.2.1 Modelo MESSAGE

O modelo MESSAGE, da Agência de Energia Atômica Internacional, foi desenvolvido com o propósito de eleger os meios de produção energética que permitem abastecer uma demanda de fontes primárias (ex: Carvão, Gás, Petróleo) e secundárias (ex: eletricidade, óleo diesel, gasolina) de forma a minimizar os custos de operação e manutenção ao longo do período observado. Portanto, esse sistema é usado para formulação e avaliação de estratégias de suprimento de energia consonantes com alguns fatores definidos pelo usuário, tais como: regulamentação ambiental, níveis de penetração no mercado de novas tecnologias, variação de preço de extração/importação/exportação de um determinado recurso primário, dentre outros.

O MESSAGE permite modelar a cadeia de energia, da demanda aos recursos, através da programação linear contínua dinamizada, sendo que o conjunto de análise é dividido em intervalos menores de igual duração, e a otimização é aplicada sobre esses subconjuntos simultaneamente, correspondendo às variáveis do modelo e às quantidades anuais médias.

Por definição, o critério empregado é a minimização do custo total do sistema, que inclui custos de inversão, operação ou qualquer custo adicional. As relações que definem a estrutura do modelo são representadas em forma de matriz:

As variáveis (colunas) são agrupadas em três categorias:

1. Variáveis de fluxo de energia que quantificam o fluxo de energia anual, comumente expressas em MW/GW por ano;
2. Variáveis de força representando a capacidade de produção de uma determinada tecnologia, expressas em MW ou GW;
3. Variáveis de estoque representando a quantidade de um dado combustível acumulado até certo ponto no tempo, expressas em MW/GW por ano.

As equações (linhas) podem ser agrupadas nas seguintes categorias:

1. Balanços de fluxo de energia numa determinada cadeia de energia por extração de um determinado recurso via conversão, transporte e distribuição até o uso final;

2. Equações relacionais de atividades agregadas numa determinada base temporal;
3. Equações dinâmicas para relacionar atividades de diferentes períodos.

O modelo permite definir quaisquer tipos de fonte primária (petróleo, carvão, gás natural, nuclear, hidroeletricidade, solar, geotermia, dentre outras), e os respectivos centros de transformação que permitem obter as energias secundárias demandadas (eletricidade, refinarias,...). A Figura 6.2 mostra o esquema de um sistema básico de abastecimento de energia representado no MESSAGE.

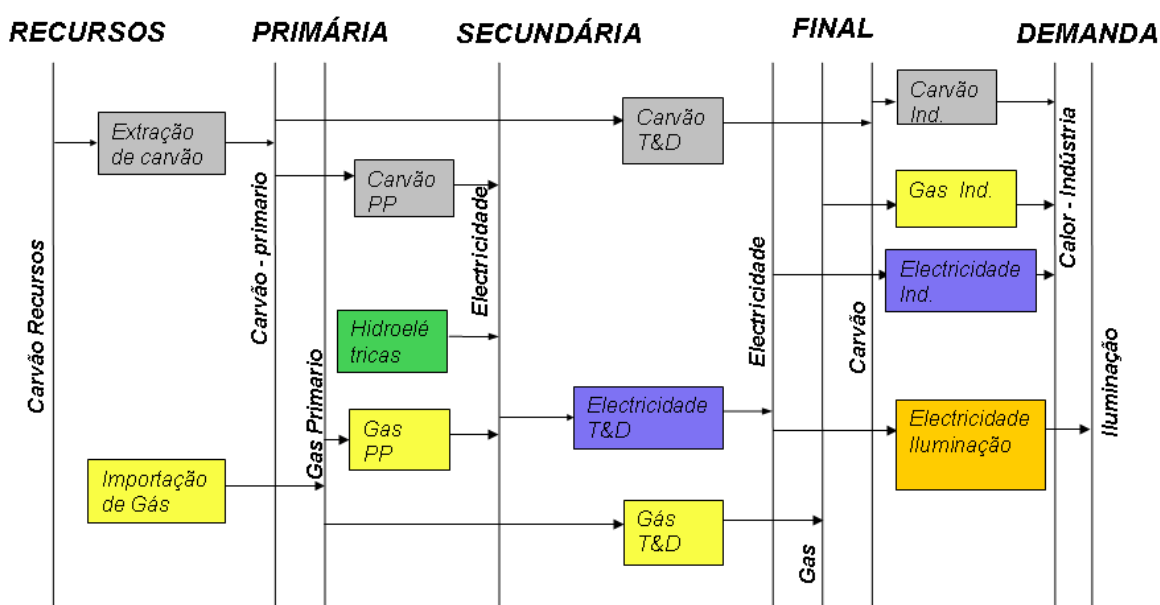


Figura 6.2– Diagrama esquemático de um sistema simples de abastecimento de energia. Onde, *PP* representa a planta de uma determinada forma de energia primária, *T&D* representa o transporte e distribuição de determinado recurso ou forma primária e *Ind* representa o respectivo uso industrial.

Conforme pode ser visto no esquema, o modelo simples contabiliza o gás natural, carvão e hidráulica para a geração de eletricidade. Há também o abastecimento de gás e carvão para uso na indústria. Portanto, o modelo considera apenas o carvão como recurso primário num cenário de uma matriz energética que também possui geração hidroelétrica e importação de gás

natural para suprir sua demanda de iluminação e aquecimento industrial. Através desse esquema, pode-se entender que o modelo MESSAGE irá trabalhar com a minimização de custos para obter o melhor plano energético em função da demanda, isto é, o carvão é a opção mais econômica, porém mais poluente (economia x conservação do meio ambiente); o gás importado pode ser economicamente comparável com o carvão (economia x segurança energética) e a hidráulica é também mais econômica, porém sua disponibilidade varia sazonalmente (economia x confiabilidade).

Um exemplo de aplicabilidade do modelo MESSAGE foi o estudo sobre a matriz energética de Minas Gerais, para o período de 2007-2030 (COPPE/FUPAI/CERNE, 2007), e utilizados pelo Programa de Planejamento Energético, por exemplo, na simulação de cenários de oferta e demanda para elaboração da matriz energética do Estado do Rio de Janeiro [2008-2020] (ADRIO, 2010), a partir de acordo de cooperação internacional com a Agência Internacional de Energia Atômica - IAEA da ONU, e do Brasil [2003- 2023] (SHAEFFER et al., 2004).

6.2.2 Projeção do consumo final de combustível para o setor rodoviário

A partir das informações disponíveis no balanço energético consolidado (BEN, 2008), construiu-se a matriz energética brasileira no modelo MESSAGE, representada pelo esquema mostrado na Figura 6.3 e as suas respectivas demandas. Os dados de custo de operação/extração/importação/exportação disponíveis foram obtidos diretamente dos relatórios do EPE (2010) e ANEEL (2002). A projeção das ofertas e demandas para o período de 2011 – 2030 foi inserida no modelo MESSAGE com base no balanço energético consolidado do Plano Energético Nacional (EPE, 2007) discutido no capítulo II.

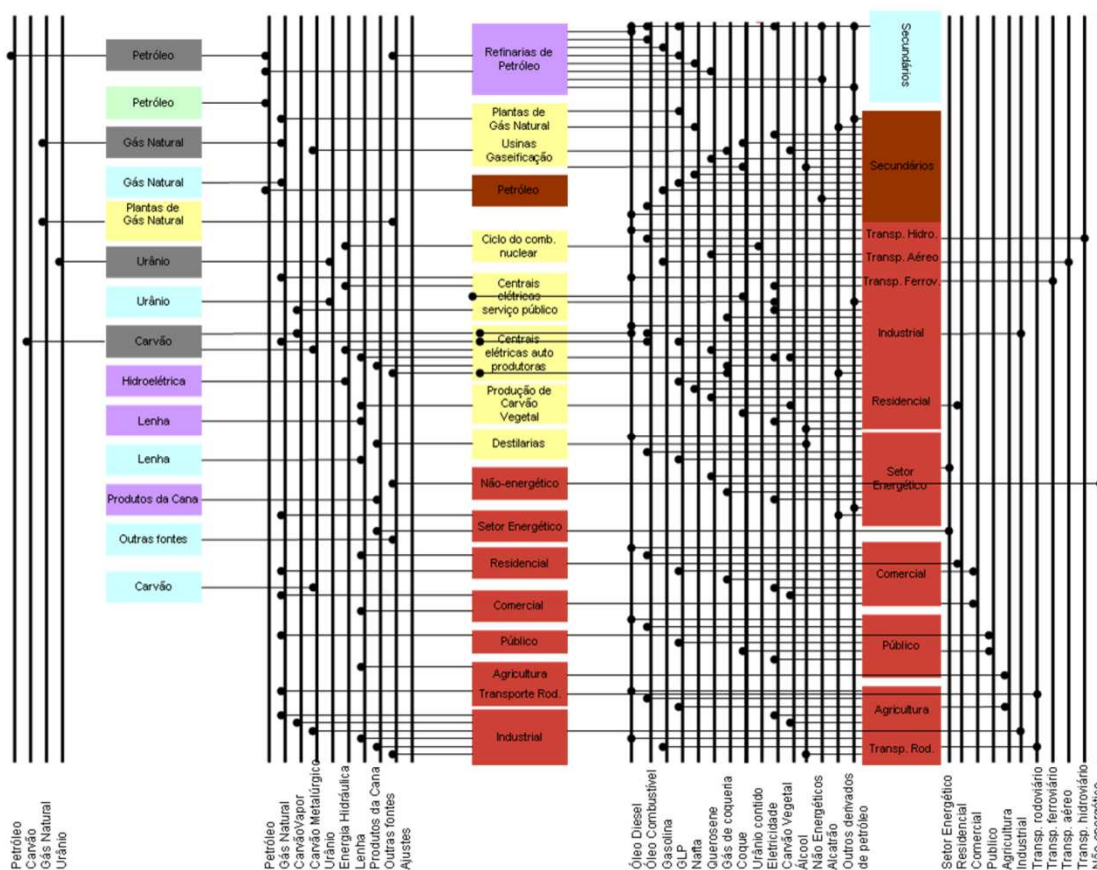


Figura 6.3 – Diagrama esquemático da matriz energética brasileira construída no modelo MESSAGE, com base no Balanço Energético Nacional (BEN, 2008).

6.2.3 Estimativa da frota nacional circulante

A partir do consumo de combustíveis pelo setor de transporte rodoviário, obtido do modelo MESSAGE, calculou-se a frota nacional circulante, classificando-a o mais detalhadamente possível. Este cálculo utilizou o número de veículos licenciados do anuário da Associação Nacional de Fabricantes de Veículos Automotores (ANFAVEA, 2010) e segue a metodologia proposta no segundo inventário brasileiro de emissões antrópicas de gases do efeito estufa (MCT, 2010).

Os veículos contemplados nessa projeção são classificados em automóveis, comerciais leves, caminhões e ônibus. A entrada de veículos novos no período de 1950 a 2010 deriva do Anuário da ANFAVEA (ANFAVEA, 2010), que informa sobre o licenciamento verificado no ano, incluindo os veículos

importados, e seu respectivo tipo de combustível, o que permitiu estender a sua classificação para: automóveis a gasolina, automóveis a álcool, automóveis bicom bustíveis, automóveis a gás natural, comerciais leves a gasolina, comerciais leves a álcool, comerciais leves bicom bustíveis, comerciais leves a diesel, caminhões a gasolina, caminhões a diesel e ônibus a diesel.

O número de veículos que permanecem em circulação foi estimado através de uma função logística (SUCAT) calibrada para reproduzir aproximadamente os dados da frota e a idade média dos veículos de acordo com o Departamento Nacional de Trânsito (MCT,2010). A fórmula utilizada para o cálculo do fator de sucateamento foi:

$$SUCAT(t) = \frac{1}{1 + \exp(a \times (t - 1 - x_0))} \quad (6.1)$$

onde $SUCAT(t)$ é a fração de veículos sucateada na idade do veículo t e x_0 é o ponto de inflexão da curva. As constantes a e x_0 foram obtidas do segundo inventário brasileiro de emissões antrópica de gases do efeito estufa (MCT, 2010). Conforme mostrado na Figura 6.4, a curva de sucateamento utilizada considera a vida máxima de 50 anos por veículo (MCT, 2010).

Portanto, o número de veículos licenciados no ano i que permanecem em atividade no ano t foi calculado pela equação:

$$N_i(t) = \frac{V_i}{1 + \exp(a \times (t - i - x_0))} \quad (6.2)$$

Onde V_i é o número de veículos licenciados no ano i . A frota circulante no ano t é dada pela soma dos veículos de todos os anos anteriores.

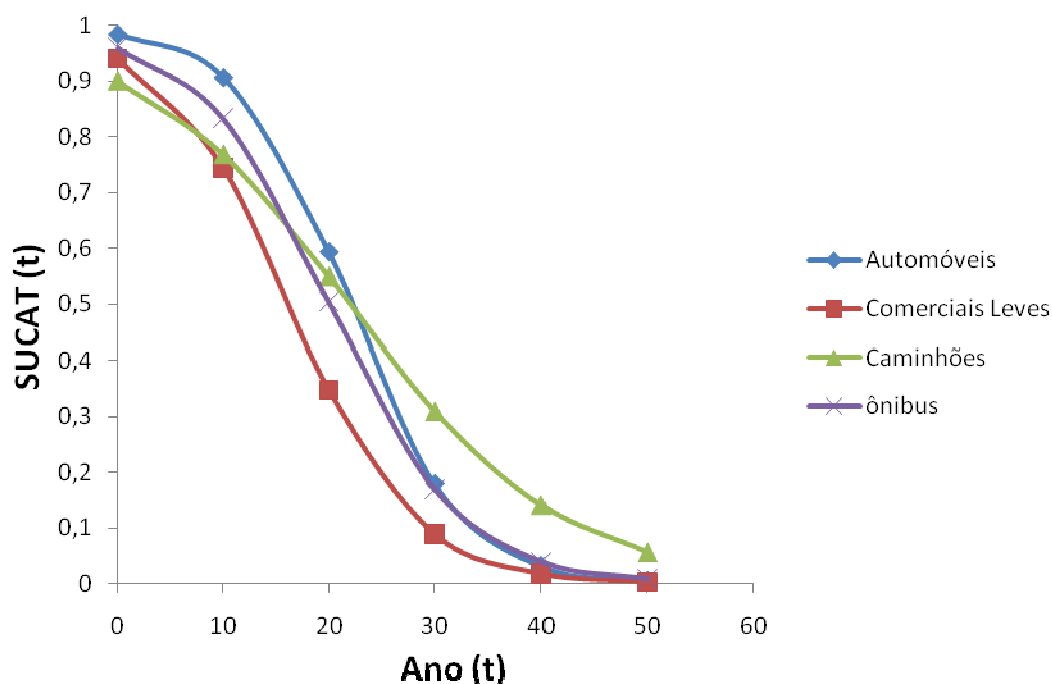


Figura 6.4 – Curvas para o cálculo de veículos circulantes por tipo de veículo.

Para a estimativa da evolução do número de veículos circulantes no período entre 2011 e 2030, levou-se em consideração a relação entre a frota de veículos brasileira e o produto interno bruto, que obteve um coeficiente de determinação de 0,99, e a taxa de decaimento/licenciamento observada no período de 2003 a 2010. Foram estabelecidas algumas hipóteses e premissas técnicas para a projeção:

- O crescimento do PIB brasileiro é de 4% ao ano (IPCC, 2007);
- A participação dos veículos bicompostíveis nas vendas de veículos de passeio novos mantém a tendência atual de crescimento (LOSEKAN, 2010).
- O consumo dos veículos bicompostíveis é predominantemente etanol e a taxa de conversão para veículos à gás foi estimada com base no número de cilindros comercializados no Brasil (GASNET, 2011), expandindo-se linearmente nos anos seguintes.

6.2.4 Cálculo das emissões nacionais e geração dos inventários regionais projetados pelos cenários

A partir da frota de veículos circulantes estimada para o período 2003-2030 por tipo, idade e combustível consumido, calcularam-se as emissões do monóxido de carbono, óxidos de nitrogênio e compostos orgânicos voláteis não-metano, com o uso dos fatores médios de emissão de veículos leves e pesados calculados a partir dos fatores obtidos em CETESB (2008) e o consumo por categoria de veículos, calculado mediante seguinte equação (MCT,2010):

$$C_i = F_i \times U \times rel_{ij} \quad (6.3)$$

Onde C_i é o consumo anual de uma determinada categoria de veículo i , rel_{ij} é a relação de consumo mostrada na Tabela 6.2, F_i a frota circulante de cada tipo de veículo i e U é a unidade de consumo, expressa por:

$$U = \frac{Cons_j}{\sum (F_i \times rel_{ij})} \quad (6.4)$$

Onde $Cons_j$ é o consumo do combustível j , obtido do modelo MESSAGE

Tabela 6.1 – Relações de consumo

Combustível	Tipo de Veículo			
	Automóvel	Comercial Leve	Caminhão	Ônibus
Gasolina	1,0	2,0	9,0	0,0
Álcool	1,0	1,5	5,0	0,0
Diesel	0,0	1,5	5,0	6,0

Fonte: MCT (2010)

Salienta-se que os fatores de emissão obtidos e estimados pela CETESB são relativos à idade da frota, portanto, o uso da curva de sucateamento nos dados de veículos licenciados é de extrema importância para a obtenção de um fator de emissão médio que melhor represente a realidade do tráfego urbano. Para

os COVNM, foram utilizados os fatores de emissão para exaustão e evaporativos.

Com os valores estimados de emissão nacional dos gases precursores do ozônio, aplicou-se a mesma metodologia para as principais cidades brasileiras com intuito de verificar se a projeção nacional é representativa na escala municipal. Para isso, estimou-se a emissão relativa por veículo, através dos fatores médios obtidos nacionalmente e o consumo relativo para cada tipo de veículo (Tabela 6.2) que foi calculado em função da autonomia dos veículos do ciclo Otto e Diesel discutida em Alvin et al. (2000), assumindo-se as relações de consumo do Segundo Inventário Nacional de Gases do Efeito Estufa (Tabela 6.1). Posteriormente esses valores foram multiplicados pela base de dados da frota municipal em 2005, fornecida pelo IBGE.

Tabela 6.2 – Consumo por tipos de veículo e combustível utilizado na estimativa das emissões urbanas com a metodologia aplicada na emissão nacional, em TJ/ano.

Consumo por veículo	Gasolina	Álcool	Diesel
Automóveis	0,0554	0,0690	0,0000
Comerciais	0,1108	0,1035	0,7545
Caminhões	0,4986	0,3450	2,5150
Ônibus	0,0000	0,0000	3,0180

6.3 Resultados

Para uma realista estimativa da oferta e demanda de energia no Brasil para o período de 2011 - 2030 tomou-se o cuidado de avaliar se a matriz construída no modelo é representativa da oferta interna de energia observada no balanço energético nacional, analisando-se o período de 2003-2007. Observou-se que, de fato, há uma pequena diferença entre o balanço energético nacional consolidado e o resultado da matriz construída nesse trabalho, que, entretanto, são aceitáveis e estão associadas às discrepâncias entre os custos estimados e reais (Figura 6.5). Isso ocorre porque muitos dados sobre os custos efetivos,

como por exemplo, importação e exploração de determinados recursos primários, não são públicas.

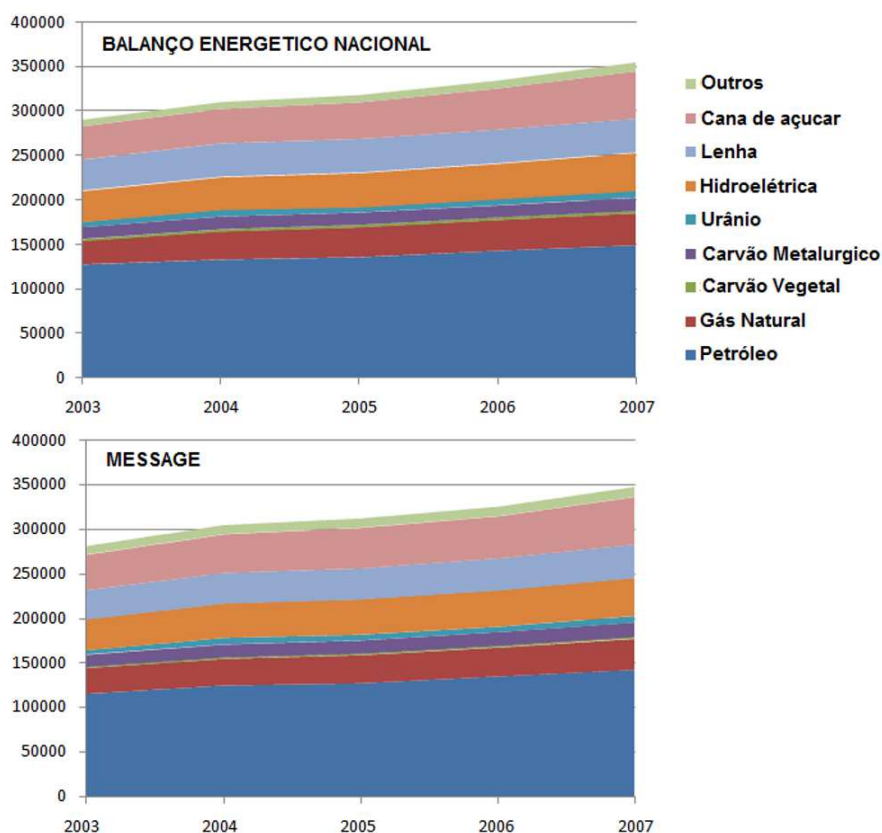


Figura 6.5– Oferta interna de energia, em MW por ano, do balanço energético nacional (topo) (BEN, 2008) e simulado pelo modelo MESSAGE neste trabalho.

O consumo de combustíveis pelo setor de transporte rodoviário, projetado no modelo MESSAGE, para o período de 2003 a 2030, é apresentado na Figura 6.6. No cenário estimado, percebe-se um aumento gradativo do consumo de álcool pelo setor, evidenciando a política brasileira de uso do etanol e a expansão crescente do veículo bicomcombustível (FLEX) no mercado brasileiro. No entanto, a oferta de diesel no setor rodoviário ainda ocupa 50% do consumo total final. A redução do consumo de Etanol experimentada no Brasil em 2010, com agravamento no primeiro quadrimestre de 2011, devido à alta de preços e aumento da alíquota do Imposto sobre Circulação de Mercadorias e Prestação de Serviços (ICMS) em alguns estados, não foi reproduzida no modelo, pois não se inseriram os preços correntes na matriz.

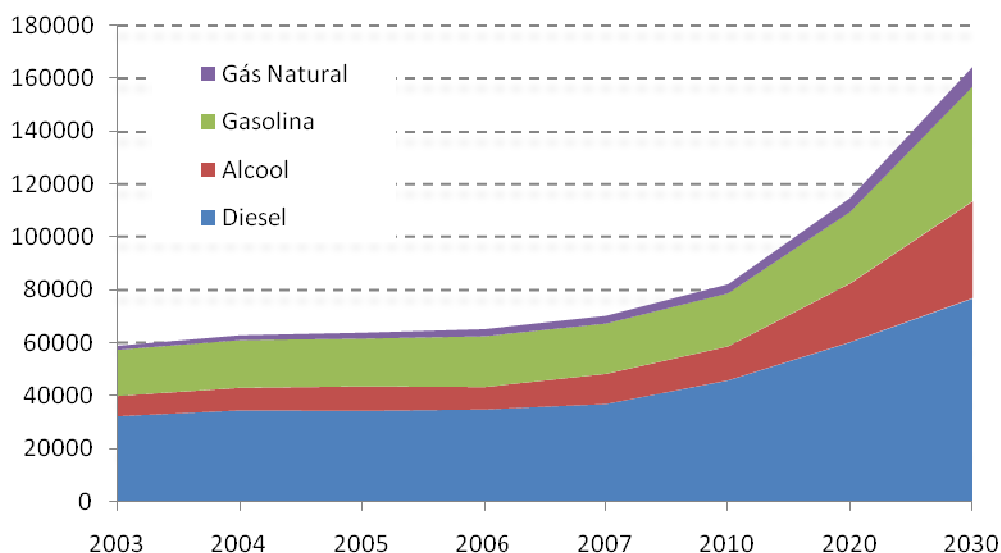


Figura 6.6 – Consumo final de combustível pelo setor de transporte rodoviário projetado com o modelo MESSAGE, utilizando dados de demanda e matriz de energia do Balanço Energético Nacional, em MW por ano.

A Figura 6.7 e a Tabela 6.3 mostram a estimativa de evolução da frota de veículos circulantes no Brasil até 2030, por tipo de combustível e categoria/ tipo de combustível, respectivamente.

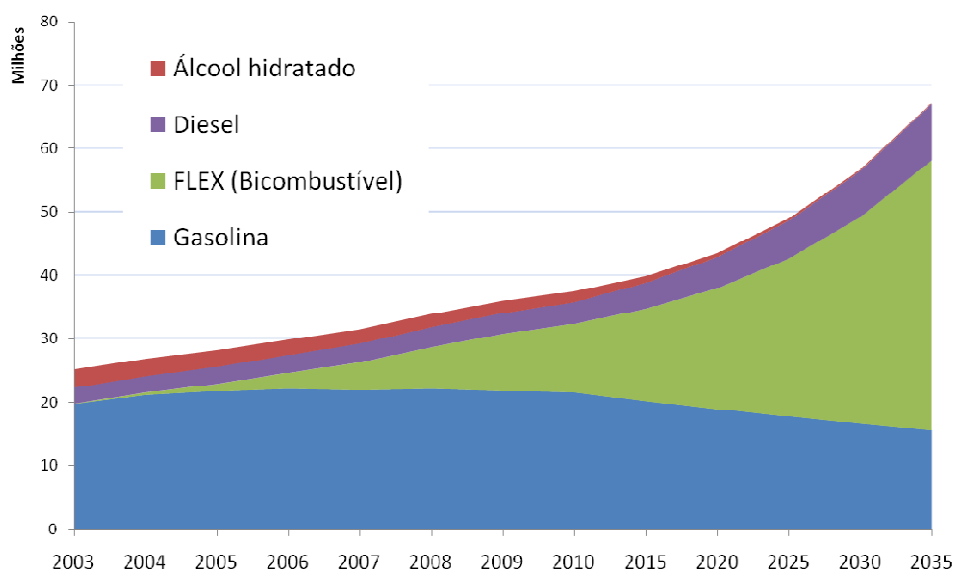


Figura 6.7 - Evolução da frota de veículos em milhões de unidades por tipo de combustível.

Tabela 6.3 - Estimativa de evolução da frota de veículos circulantes no Brasil no período de 2015 – 2030 (a cada cinco anos), por tipo de combustível.

Tipo de veículo	2015	2020	2025	2030
<i>Gasolina</i>				
Automóveis	18.461.286	17.362.292	16.328.721	15.356.678
Comerciais Leves	1.668.650	1.525.333	1.394.326	1.274.571
Caminhões	36.965	27.129	19.909	14.611
<i>Álcool</i>				
Automóveis	973.023	595.281	364.185	222.803
Comerciais Leves	85.927	45.864	24.481	13.066
Caminhões	2.591	1.647	1.042	662
<i>Diesel</i>				
Comerciais Leves	1.197.714	1.343.903	1.507.936	1.691.990
Caminhões	2.045.360	2.585.689	3.268.757	4.132.274
ônibus	509.957	662.712	861.224	1.119.198
<i>Bicombustível</i>				
Automóveis	12.892.190	16.849.577	22.021.723	28.781.511
Comerciais Leves	1.670.110	2.182.768	2.852.790	3.728.483
<i>Gás Natural</i>				
Automóveis	2.037.408	2.455.485	2.958.858	3.565.422

As Figuras 6.8 a 6.10 mostram as projeções de emissão de CO, NO_x e COVNM. Estimou-se uma redução da emissão de monóxido de carbono de 54% em 2030 com relação a 2010, causada pela renovação da idade da frota, incluindo a substituição gradativa dos automóveis a gasolina por

bicombustíveis e principalmente pela implantação de programas efetivos de redução das emissões, como o Programa de Controle da Poluição do Ar por Veículos Automotores (PROCONVE), estabelecido por lei federal nº 8.723, de 28 de outubro de 1993. O mesmo aplica-se aos COVNM, cuja redução é estimada em 37% em 2030 com relação a 2010. No entanto, estimou-se um aumento de 7% na emissão de NO_x no período 2005-2030. Esse comportamento pode estar associado com dois fatores: aumento da frota de caminhões e ônibus no mercado e circulação de veículos pesados antigos. Além disso, enquanto os fatores de emissões dos veículos a gasolina fabricados em 2008 sofreram uma redução de 96% com relação aos fabricados em 1990, o fator de emissão dos caminhões a diesel sofreu uma redução de 56% entre os fabricados em 1990 e 2008. Entretanto, essa redução não foi efetiva para a diminuição da emissão do NO_x no contexto brasileiro.

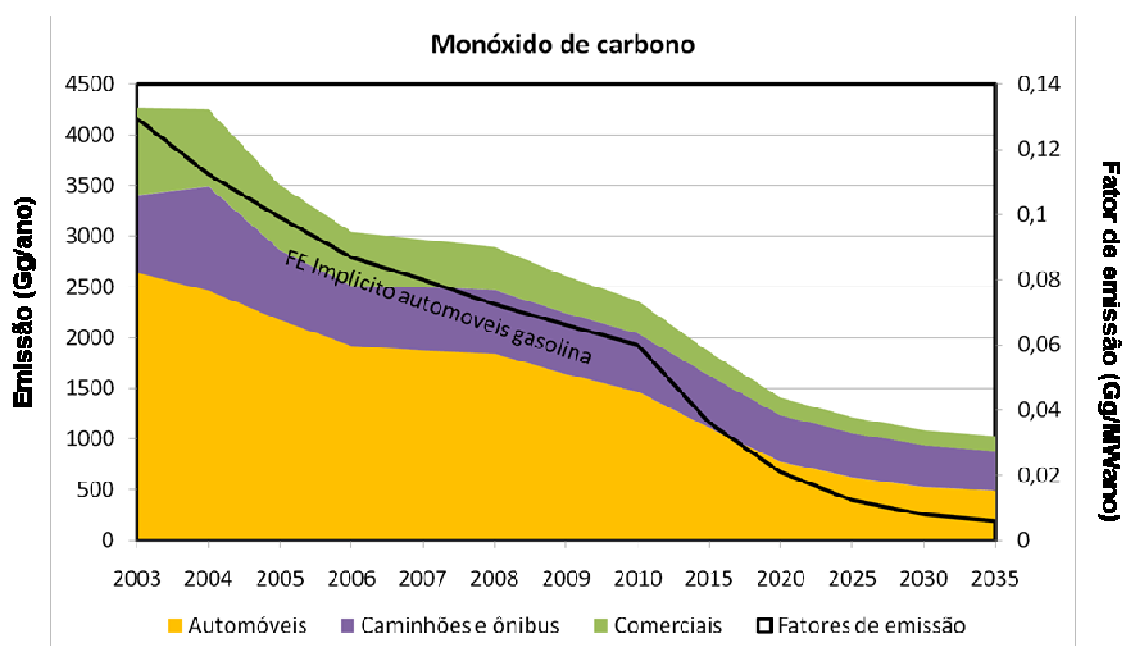


Figura 6.8 – Emissão estimada de monóxido de carbono pelo setor de transporte no Brasil, em Gg/ano. A linha representa o fator de emissão médio estimado para automóveis a gasolina, em Gg/MWano.

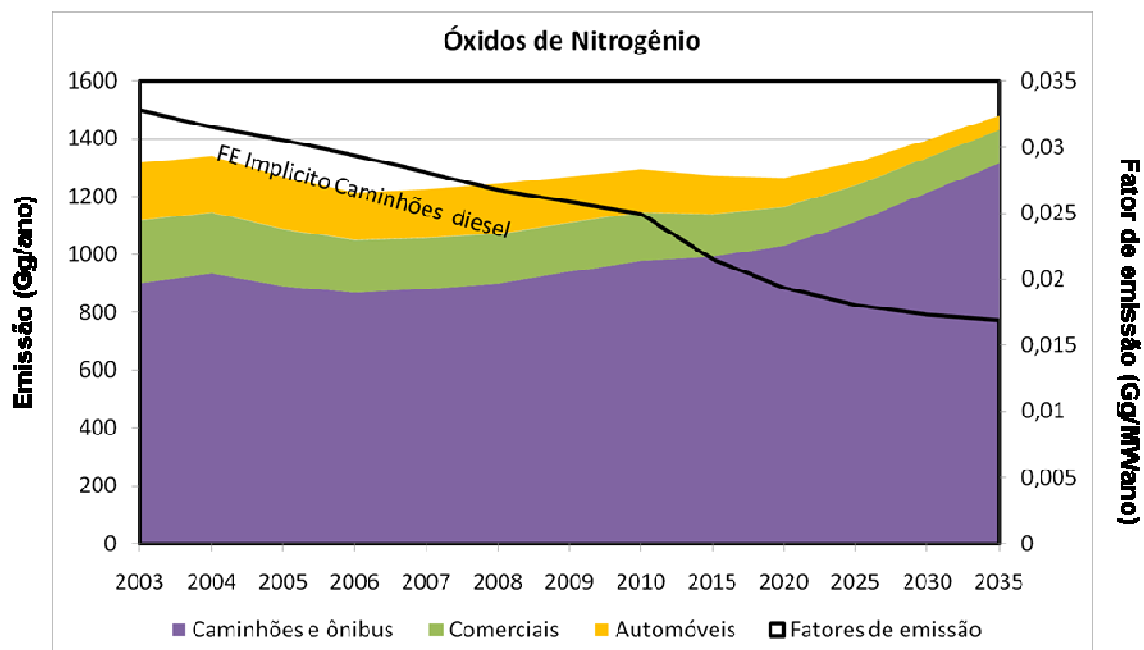


Figura 6.9 – Emissão de óxidos de nitrogênio estimada para o setor de transporte no Brasil, em Gg/ano. A linha representa o fator de emissão médio estimado para caminhões a diesel, em Gg/MWano.

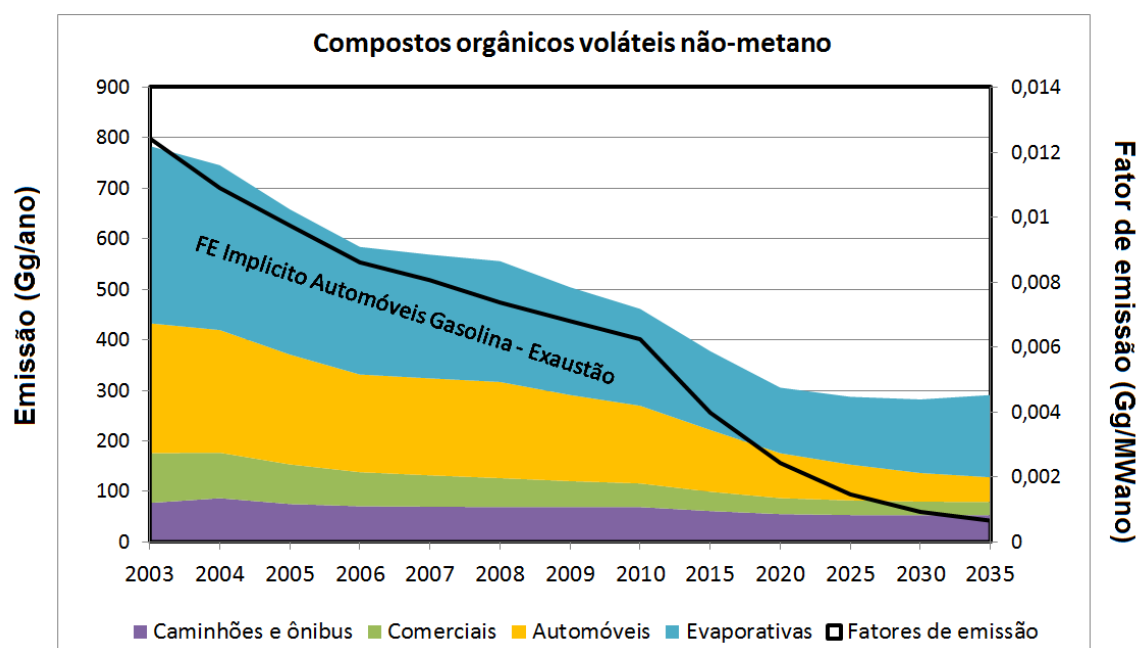
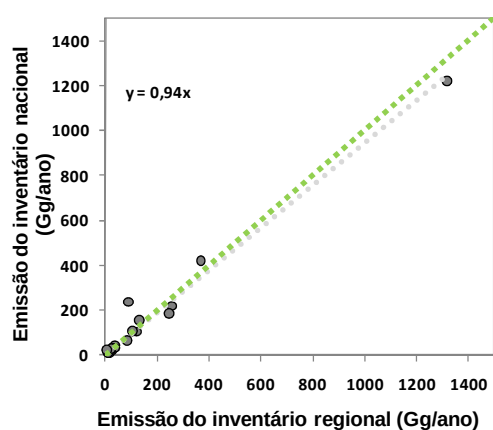


Figura 6.10 – Emissão estimada de compostos orgânicos voláteis não-metano pelo setor de transporte no Brasil, em Gg/ano. A linha representa o fator de emissão médio estimado para automóveis a gasolina, em Gg/MWano.

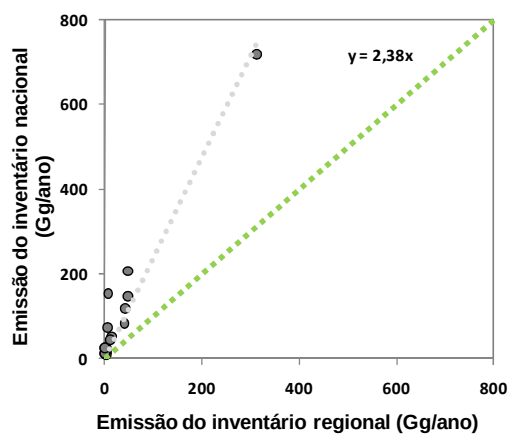
Os valores municipais estimados a partir da metodologia utilizada no cálculo da emissão nacional foram comparados com os valores do inventário regional discutido no capítulo III para as principais cidades brasileiras. Encontrou-se uma excelente correlação para o CO (Figura 6.11a). No entanto, os valores municipais de emissão de NO_x estimados do inventário nacional são aproximadamente 60% maiores que os valores obtidos do inventário regional (Figura 6.11b). Provavelmente, isso ocorre porque o consumo por veículo utilizado na estimativa da emissão municipal é baseado em estimativas nacionais, ou seja, é calculado com relação à quilometragem média da frota nacional de caminhões, que engloba principalmente o transporte intermunicipal e interestadual. As emissões de COVNM estimados com a metodologia nacional não apresentam uma correlação significativa com os valores do inventário regional (Figura 6.11c). Isso ocorre porque as emissões urbanas de COVNM do inventário regional foram obtidas indiretamente pela razão e correção do NO_x, que não necessariamente é a mesma para cada cidade. Outro fator determinante é a não linearidade das fontes de emissão dos COVNM nas cidades, que varia muito mais significativamente do que as outras espécies analisadas.

Embora os valores para NO_x e COVNM apresentem discrepâncias entre os dois inventários, a relação de proporcionalidade entre as emissões é significativa a ponto de, numa primeira hipótese, assumir que o comportamento da emissão nacional dos precursores do ozônio no período analisado pode ser aplicado no inventário regional. Os gráficos de regressão apresentam um coeficiente de determinação acima de 0,90 para as três espécies. Salienta-se que essa correlação é alta, pois foram incluídas as emissões relativas à RMSP, que possui uma densidade populacional muito maior que as demais grandes cidades brasileiras. No entanto, ao se excluir essa megacidade da relação analisada, os coeficientes de determinação passam a ter o valor de 0,85/0,65/0,60 para CO/NO_x/COVNM respectivamente, ou seja, ainda mantém proporcionalidade suficientemente significativa a ponto de permitir a espacialização das emissões veiculares para o período de 2011-2030

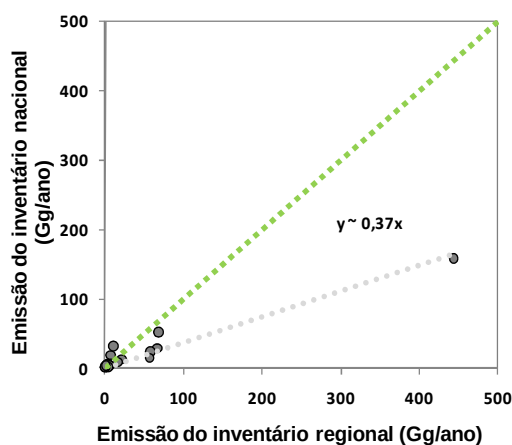
assumindo uma redução em torno de 37%/50% para os COVNM e CO, respectivamente, e um aumento de 7% para NO_x.



(a)



(b)



(c)

Figura 6.11 – Diagramas de dispersão da emissão de (a) CO, (b) NO_x e (c) COVNM desagregada da estimativa nacional com a emissão do inventário regional, em Gg/ano, para algumas cidades brasileiras.

A Figura 6.12 mostra a comparação entre as emissões regionais antrópicas de COVNM para os anos de 2010 e 2030. A razão de emissão COVNM/NO_x no inventário gerado para 2030 é em torno de 60% menor que o valor da base de

dados regional discutida no capítulo III, devido à efetiva diminuição da emissão de COVNM com relação ao aumento de NO_x estimados nos cenários, sugerindo que as políticas de redução dos poluentes primários precursores da geração do ozônio nas cidades e no entorno, adotadas e sugeridas em estudos recentes, podem não ter a mesma eficácia em 19 anos, pois haverá mudança nos regimes de formação e destruição do ozônio, sensíveis à relação de concentração dos precursores.

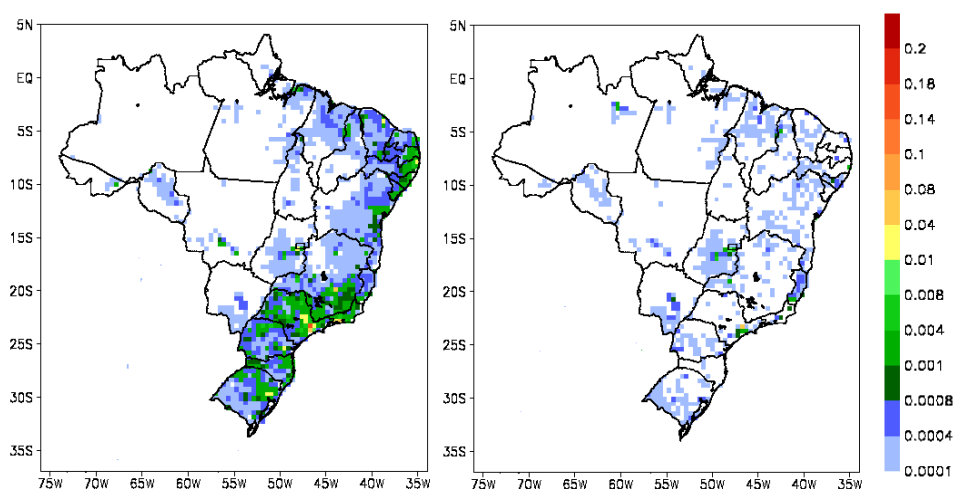


Figura 6.12 – Mapas regionais de emissão urbana de COVNM para os anos de 2007 e 2030, respectivamente, em kg/m²ano, para o Brasil.

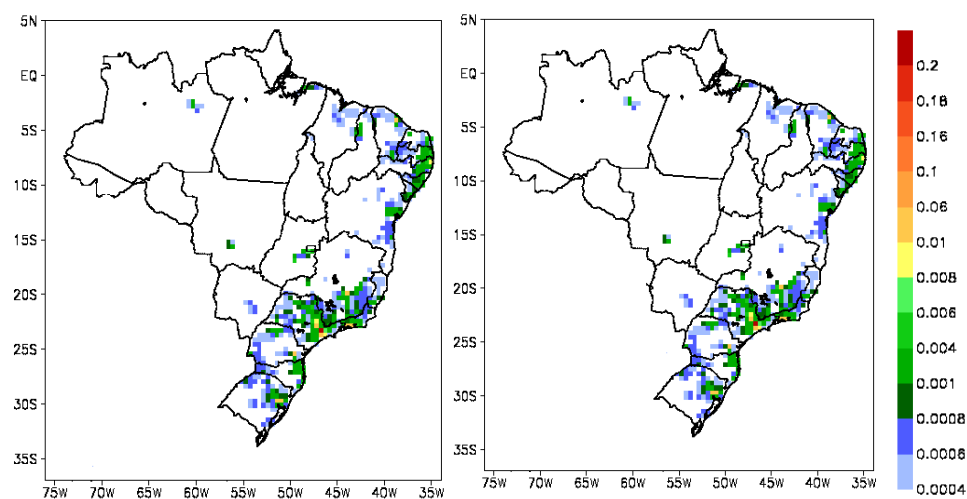


Figura 6.13 – Mapas regionais de emissão urbana de NO_x para os anos de 2007 e 2030, respectivamente, em kg/m²ano, para o Brasil.

6.4 Conclusões parciais

O consumo final de combustíveis para o setor rodoviário até 2035 com o modelo de oferta e demanda MESSAGE, baseado na matriz energética brasileira para o período 2003-2009, sugere um aumento gradativo do consumo de álcool pelo setor, evidenciando a política brasileira de uso do etanol e a expansão crescente do veículo bicomcombustível (FLEX) no mercado brasileiro. No entanto, a oferta e o consumo de diesel pelo setor rodoviário permanecem dominantes.

Para a frota nacional circulante no período até 2035, projeta-se um leve (~20%) aumento dos veículos a diesel na frota nacional e o domínio dos veículos bicomcombustível. Embora a economia sofra oscilações nos preços do etanol que diminuem seu consumo, assume-se que em longo prazo os veículos bicomcombustíveis consomem predominantemente esse tipo de combustível.

Finalmente, as estimativas apontam uma redução da emissão de monóxido de carbono de 54% em 2030 com relação a 2010, causada principalmente pela renovação da idade da frota e pela implantação de programas efetivos de redução das emissões, como o Programa de Controle da Poluição do Ar por Veículos Automotores (PROCONVE). O mesmo aplica-se aos COVNM, cuja redução é estimada em 37% em 2030 com relação a 2010. No entanto, estimou-se um aumento de 7% na emissão de NO_x no período 2010-2030. Esse comportamento pode estar associado com dois fatores: aumento da frota de caminhões e ônibus no mercado e circulação de veículos pesados antigos. Além disso, enquanto os fatores de emissões dos veículos a gasolina sofreram uma redução significativa nos últimos 15 anos, o fator de emissão dos caminhões a diesel sofreu uma redução menor, que não compensou a crescente demanda do setor. Esse resultado é importante, pois sugere que os atuais programas nacionais de controle da emissão de óxidos de nitrogênio, provindos principalmente de veículos pesados a diesel, não serão suficientes para sua redução daqui a 19 anos.

As emissões individuais das principais cidades brasileiras no cenário nacional apresentaram uma proporcionalidade significativa com os valores do inventário regional de emissão urbana permitindo, numa primeira hipótese, a espacialização das emissões do cenário nacional. A razão de emissão entre

COVNM/NO_x sofreu uma redução de aproximadamente 60% comparando os anos de 2007 e 2030, sugerindo mudança nos regimes de formação e destruição do ozônio. No entanto, o autor entende que há necessidade de evoluir na metodologia de desagregação da emissão nacional de forma a considerar as características intrínsecas de diferentes áreas urbanas. Além da necessidade clara da inclusão de dos demais países sul-americanos no cenário.

7 CONCLUSÕES GERAIS E PERSPECTIVAS

A avaliação do impacto das emissões urbanas na formação e destruição do ozônio troposférico nas escalas local e regional não pode ser negligenciada nos continentes economicamente menos desenvolvidos, principalmente considerando o potencial de crescimento de sua contribuição relativa no cenário mundial. No continente Sul Americano esta é uma tendência até então incipiente e que exige a utilização de ferramentas numéricas com alto grau de complexidade e detalhadas informações observacionais, as quais nem sempre estão disponíveis e/ou organizadas. Desta forma, o enfoque na AS imputa dificuldades adicionais em relação a esforços similares para regiões mais desenvolvidas do planeta.

Sob este aspecto, este trabalho contribuiu para a organização e consolidação de uma extensa gama de informações observacionais e para o desenvolvimento de uma importante ferramenta numérica para a previsão de tempo químico na América do Sul. O modelo CCATT-BRAMS, embora operacional no CPTEC e com um massivo esforço de desenvolvimento no INPE, ainda possui um envolvimento um tanto quanto acanhado da comunidade científica Sul Americana no seu desenvolvimento. Isto acontece, principalmente, devido a um, ainda modesto, investimento na formação de pesquisadores para o desenvolvimento de modelos numéricos em relação ao número de usuários. Entretanto, é importante salientar que este trabalho foi desenvolvido no contexto de um projeto de âmbito internacional na América do Sul, resultando na utilização e operacionalização do CCATT-BRAMS também em outros países da AS, como por exemplo, Peru e Chile.

Os modelos de previsão do tempo químico dependem, dentre muitos outros aspectos, de uma boa representação das emissões. Modelos numéricos regionais e globais utilizam geralmente bases de dados globais de emissões, os quais não representam adequadamente os centros urbanos na AS. Na primeira fase do trabalho, investiu-se no desenvolvimento de um inventário regional de emissões veiculares em áreas urbanas da América do Sul, mediante análise e agregação dos inventários locais disponíveis, que possuem uma estimativa mais consistente. Devido ao número reduzido desses

inventários municipais, dado o atual cenário de expansão urbana na América do Sul, extrapolou-se as informações locais aos municípios que não possuem essa informação. As emissões de fontes veiculares de CO e NO_x dos inventários locais disponíveis foram extrapoladas para localidades não inventariadas a partir de suas correlações com os dados de densidade veicular. A comparação entre as emissões veiculares das cidades sul-americanas analisadas dos inventários locais e globais mostra consideráveis diferenças, corroborando o que já foi discutido em outros trabalhos.

A distribuição das emissões nas áreas urbanas através de uma metodologia de detecção e análise das áreas urbanizadas por sensoriamento remoto permitiu o seu detalhamento em vários níveis, possibilitando que o uso consistente em um amplo espectro de resoluções espaciais.

Os resultados da avaliação do inventário regional mostram um ganho significativo na representação numérica da poluição urbana, sugerindo que a atualização dos inventários globais com informações locais é imprescindível para que se obtenha um bom acoplamento entre as escalas local e regional. Como perspectiva, pretende-se ainda expandir a extrapolação para as demais cidades sul-americanas não inventariadas que não foram inclusas nessa primeira versão e incluir fatores de variabilidade mensal e semanal, que sejam representativos em todas as cidades.

O uso do inventário regional de emissões veiculares gerado nesse trabalho é virtualmente aplicável em qualquer resolução espacial, porém, resoluções mais finas que 3 km requerem um melhor detalhamento quanto à distribuição espacial dessas emissões, justamente porque neste caso a melhor representação dos processos de transporte e química dos poluentes depende fortemente da distribuição geográfica das fontes móveis e fixas. O Grupo de Modelagem da Atmosfera e Interfaces está trabalhando na operacionalização do CCATT-BRAMS nessa escala, para o estado de São Paulo. Portanto, houve necessidade de melhorar o nível de detalhe das emissões. Com esta perspectiva, trabalhou-se em duas frentes principais: a representação das emissões linha das principais rodovias do estado e o rearranjo das emissões na RMSP, outrora distribuídas homogeneamente, com a informação de volume de tráfego das vias de trânsito rápido. Esse refinamento propiciou um ganho significativo na distribuição dos poluentes emitidos nas vias intermunicipais,

somando-se à emissão urbana, na representação do padrão de variabilidade espacial dos poluentes na RMSP, fundamental para o prognóstico em alta resolução espacial.

Como perspectiva, pretende-se continuar o esforço de operacionalizar o modelo CCATT-BRAMS para a previsão do tempo químico sobre o estado de São Paulo e estender essa ferramenta para a Região Metropolitana de Belo Horizonte, possibilitando informar previamente à população sobre a qualidade do ar na sua região.

A partir da representação consistente da química atmosférica na escala local com relação às emissões de origem urbana, partiu-se para o estudo da sua influência nos regimes de formação e destruição do ozônio sobre a América do Sul. A razão de mistura do ozônio próximo à superfície apresenta um ciclo sazonal definido pelas fontes predominantes, isto é, com máximos sobre as regiões de maior produto interno bruto durante todo o ano, com ênfase na região sudeste do Brasil e região norte da Colômbia e Venezuela, estendendo-se para a região central e centro-oeste da AS nos meses mais secos, por conta das queimadas (centro e centro-oeste brasileiro, Bolívia e Paraguai). A distribuição do ozônio nos níveis mais altos é sazonalmente dependente da atividade de queimadas, porém, sofre também influência do transporte intercontinental de ozônio e precursores vindos do centro-norte (HN) e sul (HS) do continente africano, nas respectivas estações secas.

As emissões urbanas influenciam significativamente o regime de formação e depreciação do ozônio nas cidades e principalmente nas áreas vizinhas, que apresentam os níveis mais elevados. Os resultados indicam um considerável regime de depreciação do ozônio médio mensal próximo às fontes emissoras, associado às altas concentrações dos precursores NO_x e COVNM que desempenham um papel importante na destruição noturna de ozônio. Este regime de depreciação apresenta um nítido comportamento sazonal nos extratropicais de fraca-moderada (JFM e OND) a forte (abril a setembro). Por outro lado, o impacto dos grandes aglomerados urbanos nos trópicos, não apresenta uma variabilidade significativa, isto é, contribuem positivamente para a formação do ozônio durante todo o ano sem um regime intenso de depreciação local.

Finalmente, considerou-se a perspectiva da necessidade de uma avaliação dos impactos das emissões urbanas no contexto de cenários futuros de consumo de combustíveis e expansão da frota veicular nacional.

Neste contexto, o inventário regional de emissões urbanas foi estendido para o período até 2035, através da geração de cenários de consumo final de combustível e expansão da frota veicular para o Brasil. Estimou-se um aumento gradativo do consumo de álcool pelo setor de transporte, em concordância com a política brasileira de uso do etanol e a expansão crescente do veículo bicomcombustível (FLEX) no mercado nacional, entretanto o diesel ainda permanece dominante. Embora a economia sofra oscilações nos preços do etanol que diminuem seu consumo, assumiu-se que os veículos FLEX, predominantemente, consomem etanol ao longo do período. A projeção da frota nacional circulante, por categoria de automóvel e tipo de combustível, além de utilizar os dados de veículos licenciados da ANFAVEA, considera uma curva de sucateamento da frota para o período de 2011-2030 e a hipótese da gradativa inclusão dos veículos bicomcombustíveis no mercado brasileiro.

O cenário resultante de emissões dos precursores do ozônio (NO_x e COVM e CO) aponta uma tendência de redução da emissão de CO de 54% em 2030 com relação a 2010, resultado, principalmente, da renovação da idade da frota e implantação de programas efetivos de redução das emissões, como o PROCONVE. O mesmo aplica-se aos COVM, cuja redução é estimada em 37%. No entanto, estimou-se um aumento de 7% na emissão de NO_x no mesmo período. Estes resultados indicam uma alteração considerável no regime de formação e destruição de ozônio nas áreas urbanas, com uma redução da razão COVM/ NO_x de aproximadamente 60% no período 2010-2030.

A alteração nesta razão e aumento da emissão de óxidos de nitrogênio no período sugere que os atuais programas nacionais de controle da emissão de óxidos de nitrogênio não serão suficientes para a mitigação do ozônio nas próximas duas décadas. A razoável proporcionalidade entre as emissões urbanas calculadas com a metodologia do inventário nacional e os valores do inventário regional para as principais cidades no ano de 2005 permitiu assumir, numa primeira hipótese, que a variação da emissão nacional no período analisado pode ser aplicada na espacialização das emissões de fontes móveis

no Brasil para o período de 2011 – 2030. No entanto, ainda trabalha-se numa melhor metodologia de desagregação da emissão nacional em nível local.

Pretende-se, em um futuro próximo, utilizar os cenários de emissão gerados nesse trabalho no estudo dos impactos relativos das mudanças climáticas e expansão urbano-econômica nos padrões de concentração de O₃, avaliando as inter-relações entre a qualidade do ar, através desse poluente, mudanças climáticas e os cenários de expansão urbana e modificações de uso e ocupação do solo no Brasil.

Neste contexto, os inventários de emissões gerados nesse trabalho representam uma base de dados importante para dar suporte na geração de cenários de impactos da expansão urbana para as próximas décadas.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

ABELSHON, A.; STIED, D.; SANBORN M.D.; WEIR E. Identifying and managing adverse environmental health effects: 2. Outdoor air pollution. **Canadian Medical Association Journal**, v. 166, n. 9, 1161-1167, 2002.

ADRIO. **Matriz energética do estado do Rio de Janeiro 2008-2020**. Rio de Janeiro: Agência de desenvolvimento econômico e social do estado do Rio de Janeiro. Disponível em:

<<http://www.adrio.org.br/site/admin/uploads/projetos/1290085778.pdf>>

Acessado em: 26/05/2011.

AKIMOTO, H. Global air quality and pollution. **Science**, v. 302, 1716–1719, 2003.

ALVES, H.P.F; ALVES, C.D.P.; MADALENA N.; MONTEIRO, M.V. Dinâmicas de urbanização na hiperperiferia da metrópole de São Paulo: análise dos processos de expansão urbana e das situações de vulnerabilidade socioambiental em escala intraurbana. **Revista Brasileira de estudos populacionais**, São Paulo, v. 27, n. 1, Junho, 2010.

ALVIN, C.F.; FERREIRA, O.C; EIDELMAN, F.; GOLDEMBERG J. Frota de veículos diesel no transporte rodoviário. São Paulo. **Economia & Energia**, n. 16, 1999. Disponível em: <<http://ecen.com>>. Acesso em 11/11/2010.

ALVIN, C.F.; FERREIRA, O.C; EIDELMAN, F.; GOLDEMBERG J. Frota e consumo de veículos leves no Brasil. São Paulo. **Economia & Energia**, n. 21, 2000. Disponível em: <<http://ecen.com>>. Acessado em 11/11/2010.

ANDREAE, M. O. Biomass burning: Its history, use and distribution and its impact on environmental quality and global climate. In: J. S. Levine Global (ed.) **Biomass burning**: atmospheric, climatic and biospheric implications. Cambridge: MIT Press, 1991. p.3-21.

ANDREAE, M.; MERLET, P. Emission of trace gases and aerosols from biomass burning, **Global Biogeochemical Cycles**, v. 15, n. 4, 955–966, 2001.

AGÊNCIA NACIONAL DE ENERGIA ELÉTRICA (ANEEL). **Atlas da energia elétrica do Brasil**. Brasília, 2002. Disponível em: <http://www.aneel.gov.br/arquivos/PDF/livro_atlas.pdf> Acessado em: 15/12/2010.

ASSOCIAÇÃO NACIONAL DE FABRICANTES DE VEÍCULOS AUTOMOTORES (ANFAVEA). **Anuário ANFAVEA 2010**. Brasília, 2010. Disponível em: <<http://www.anfavea.com.br>>. Acessado em: 10/02/2011.

AGÊNCIA NACIONAL DE TRANSPORTE TERRESTRE (ANTT). **Relatório anual de 2008**. Brasília, 2008. Disponível em: <<http://www.antt.gov.br/relatorioanual/relatorioanual.asp>>. Acessado em: 20/01/2011.

ARBILLA, G.; MARTINS, E.M.; MOREIRA, A; MOREIRA, L. F. R. Ozone air quality modeling a case study: a heavily vehicle impacted urban avenue. **Journal of the Brazilian Chemical Society**, São Paulo, v. 13, n. 3, 308 – 317, 2002.

BERKOWICZ, R.; WINTHER, M.; KETZEL, M. Traffic pollution modeling and emission data. **Environmental Modelling & Software**, v. 21, 454–460, 2006.

BOGO, H.; GÓMEZ, D. R.; REICH, S. L.; NEGRI, R. M.; SAN ROMÁN, E. Traffic pollution in downtown of Buenos Aires City. **Atmospheric Environment**, Vol. 35, 1717-1727, 2001.

BOLETIM CLIMANÁLISE. Boletim de monitoramento e análise climática. Cachoeira Paulista: Instituto Nacional de Pesquisas Espaciais, v. 22, n. 1-12, 2007.

BOLETIM CLIMANÁLISE: Boletim de monitoramento e análise climática. Cachoeira Paulista: Instituto Nacional de Pesquisas Espaciais, v. 23, n. 1-12, 2008.

BRASSEUR, G. P. **Atmospheric chemistry and global change**. Oxford: National Center for Atmosphere, Oxford University Press, 1999. 654 p.

BUTLER, T.M.; LAWRENCE, M.G.; GURJAR B.R.; VAN AARDENNE J.; SCHULTZ M.; LELIEVELD J. The representation of emissions from megacities in global emission inventories. **Atmospheric Environment**, v.42, 703 – 719, 2008.

BUTLER, T.M.; LAWRENCE, M.G. The influence of megacities on global atmospheric chemistry: a modelling study. **Environment Chemistry**, v. 6, 219 – 225, 2009.

CARTER, W.P.L. A detailed mechanism for the gas-phase atmospheric reactions of organic compounds, **Atmospheric Environment**, v. 24A, 481–518, 1990.

COMPANHIA DE ENGENHARIA DE TRÁFEGO (CET). **Relatório anual de tráfego 2006**. São Paulo, 2006. Disponível em: <<http://www.cetsp.com.br/>>. Acessado em: 13/08/2010.

COMPANHIA DE TECNOLOGIA DE SANEAMENTO AMBIENTAL (CETESB). **Estudo do comportamento do ozônio na Região Metropolitana de São Paulo**. São Paulo, 2000. Disponível em: <<http://www.cetesb.sp.gov.br/ar/qualidade-do-ar/31-publicacoes-e-relatorios>>. Acessado em 03/03/2011.

COMPANHIA DE TECNOLOGIA DE SANEAMENTO AMBIENTAL (CETESB). **Qualidade do ar no Estado de São Paulo**. São Paulo, 2005. Disponível em: <<http://www.cetesb.sp.gov.br/ar/qualidade-do-ar/31-publicacoes-e-relatorios>>. Acessado 20 dez 2010.

COMPANHIA DE TECNOLOGIA DE SANEAMENTO AMBIENTAL (CETESB). **Qualidade do ar no Estado de São Paulo**. São Paulo, 2006. Disponível em: <<http://www.cetesb.sp.gov.br/ar/qualidade-do-ar/31-publicacoes-e-relatorios>>. Acessado em 03/03/2011.

COMPANHIA DE TECNOLOGIA DE SANEAMENTO AMBIENTAL (CETESB). **Qualidade do ar no Estado de São Paulo**. São Paulo, 2008. Disponível em: <<http://www.cetesb.sp.gov.br/ar/qualidade-do-ar/31-publicacoes-e-relatorios>>. Acessado em 03/03/2011.

CHAMEIDES et al.; W.L. CHAMEIDES; P.S. KASIBHATLA. Growth of continental scale metro-agro-plexes, regional ozone pollution and world food production. **Science**, v. 264, 74–75, 1994.

CHAPMAN, E. G.; GUSTAFSON, W. I.; EASTER, Jr., R. C.; BBARNARD, J. C. ; GHAN, S. J.; PEKOUR, M. S.; FAST, J. D.. Coupling aerosol-cloud-radiative processes in the WRF-Chem model: investigating the radiative impact of elevated point sources. **Atmospheric Chemistry and Physics Discussions**, v. 8, 14765–14817, 2008. Disponível em: <<http://www.atmos-chem-phys-discuss.net/8/14765/2008/acpd-8-14765-2008.pdf>>. Acesso em: 13/05/2010.

CHIN, M.; ROOD, R. B.; LIN, S. J.; MULLER, J. F.; THOMPSON, A. M. Atmospheric sulfur cycle simulated in the global model GOCART: Model description and global properties, **Journal of Geophysical Research**, 105, 24671–24687, 2000.

CONSELHO NACIONAL DO MEIO AMBIENTE (CONAMA). **Inventario de emisiones de la región metropolitana de Santiago**. Santiago do Chile, 2000. Disponível em: <<http://www.conama.cl/rm/568/article-1104.html>>. Acesso em 05/12/2010.

CORVALÁN, R.; OSSES, M.; URRUTIA, C. Hot emission model for mobile sources: application to the Metropolitan Region of the city of Santiago, Chile. **Journal of the Air and Waste Management Association**, v. 52, n. 2, 167-174, 2002.

COTTON, W. R.; PIELKE, R. A.; WALKO, R. L.; LISTON, G. E.; TREMBACK, C. J.; JIANG, H.; MCANELLY, R. L.; HARRINGTON, J. Y.; NICHOLLS, M. E.; CARRIO, G. G.; MCFADDEN, J. P. RAMS 2001: Current status and future directions. **Meteorology and Atmospheric Physics**, v. 82, Issue 1-4, 5-29, 2003.

CRASSIER, V.; SYHRE, K.; TULET, P.; ROSSET, R. Development of a reduced chemical scheme for use in mesoscale meteorological models, **Atmospheric Environment**, v. 34, 2633–2644, 2000.

DALVI, M.; GRELL G.; PECKMAN S. Development of an offline WRF/Chemistry model. In: WRF USERS WORKSHOP, 8. 2007. **Abstracts...** Disponível em: <http://www.mmm.ucar.edu/wrf/users/workshops/WS2007/abstracts/8-3_Dalvi.pdf> Acesso em: 15/01/2011.

D'ANGIOLA A.; DAWIDOWSKI L.; GOMEZ D. R.; OSSES M. On-road traffic emissions in a megacity. **Atmospheric Environment**, v. 44, n. 4, 483 - 493, 2009.

DE CEA J.; FERNÁNDEZ E.; DEKICK V.; SOTO A; FRIERZ T. ESTRAUS. **A Computer package for solving supply-demand equilibrium problems on multimodal urban transportation networks with multiple user classes**. Santiago de Chile: MCT. Avaliado em: (2003) <http://www.sectra.cl>. Acessado em 10/10/2010.

DENTENER F.; STEVENSON D.; COFALA J.; MECHLER R.; AMANN M.; BERGAMASHI P.; RAES F.; DERWENT R. The impact of air pollutant and methane emission controls on tropospheric ozone and radiative forcing: CTM calculations for the period 1990–2030, **Atmospheric Chemistry and Physics**, v. 5, pp. 1731–1755, 2005.

DICTUC. **Actualización del inventario de emisiones de contaminantes atmosféricos en la RM 2005**. Santiago de Chile: Informe Final Comisión Nacional del Medio Ambiente.

Avaliado em:

<http://www.conama.cl/rm/568/articles-41184_Dictuc0ActualizalforFinal.pdf>. Acesso em 10/07/2010.

DJOUAD R.; SPORTISSE B.; AUDIFFEN N. Numerical simulation of aqueous-phase atmospheric models: use of a non-autonomous Rosenbrock method. **Atmospheric Environment**, v. 36, n. 5, 873-879, 2002.

DODGE MC. **Effect of selected parameters on predictions of a photochemical model**. Research Triangle Park , NC: US Environment Protection Agency, 1977. (Rep. EPA-60013-77- 048).

ELETROBRÁS. **Plano 2010**: relatório geral. Plano nacional de energia elétrica 1987/2010 . Brasília: Centrais Elétricas do Brasil (ELETROBRÁS), 1987. 269 p

ENDRESEN O.; SORGARD E.; SUNDET J.K.; DALSOREN S.B.; ISAKSEN I.S.A.; BERGLEN T.F.; GRAVIR G. Emissions from international sea transport and environmental impact, **Journal of Geophysics Research**. v. 108, n. D17, ACH14.1-ACH14.22, 2003.

ENVIRONMENTAL PROTECTION AGENCY (EPA). **Compilation of Air Pollutant Emission Factors**. 5 ed. Washington, 1999. AP-42, v. 1

EMPRESA DE PESQUISA ENERGÉTICA (EPE). **Balanço energético nacional, 2007**. Brasília, 2007. Disponível em: <<http://ben.epe.gov.br/>>. Acessado em: 16/12/2010.

EMPRESA DE PESQUISA ENERGÉTICA (EPE). **Plano nacional de energia 2030**. Brasília, 2010. Disponível em: <http://www.epe.gov.br/PNE/20070626_2.pdf>. Acessado em: 16/12/2010.

FUNDAÇÃO ESTADUAL DE ENGENHARIA DO MEIO AMBIENTE (FEEMA). **Inventário de fontes emissoras de poluentes atmosféricos na região metropolitana do Rio de Janeiro**. Rio de Janeiro, 2004. 83 p.

FREITAS, S. R.; LONGO, K. M.; SILVA DIAS, M.; SILVA DIAS, P.; CHATFIELD, R.; PRINS, E.; ARTAXO, P.; GRELL, G.; RECUERO, F. Monitoring the transport of biomass burning emissions in South America. **Environmental Fluid Mechanics**, v. 5, n. 1-2, 135-167, 2005.

FREITAS, S. R.; LONGO; K. M.; ANDREAE, M. O. Impact of including the plume rise of vegetation fires in numerical simulations of associated atmospheric pollutants. **Geophysics Research Letters**, v. 33, n. 17, 1-4, 2006.

FREITAS, S. R.; LONGO, K. M.; CHATFIELD, R.; LATHAM, D.; SILVA DIAS, M. A. F.; ANDREAE, M. O.; PRINS, E.; SANTOS, J. C.; GIELOW, R.; Jr., J. A. Including the sub-grid scale plume rise of vegetation fires in low resolution atmospheric transport models, **Atmospheric Chemistry and Physics**, v. 7, 3385–3398, 2007.

FREITAS, S. R.; LONGO, K. M.; SILVA DIAS, M. A. F.; CHATFIELD, R.; SILVA DIAS, P.; ARTAXO, P.; ANDREAE, M. O.; GRELL, G.; RODRIGUES L. F.; FAZENDA, A.; PANETTA, J. The Coupled Aerosol and Tracer Transport model to the Brazilian developments of the Regional Atmospheric Modeling System (CATT-BRAMS). Part 1: Model description and evaluation, **Atmospheric Chemistry and Physics**, v. 9, 2843-2861, 2009a.

FREITAS, S. R.; LONGO, K. M.; RODRIGUES, L. F. Modelagem numérica da composição química da atmosfera e seus impactos no tempo, clima e qualidade do ar, **Revista Brasileira de Meteorologia**, v.24, n.2, 188-207, 2009b.

FREITAS, S. R.; LONGO, K. M.; ALONSO, M. F.; PIRRE, M.; MARECAL, V.; GRELL, G.; STOCKLER, R.; MELLO, R. F.; SÁNCHEZ G., M. A pre-processor of trace gases and aerosols emission fields for regional and global atmospheric chemistry models, **Geoscientific Model Development Discussion**, v. 3, 855-888, 2010a.

FREITAS, S. R.; LONGO, K. M.; TRENTMAN, J.; Latham, D. Technical Note: Sensitivity of 1-D smoke plume rise models to the inclusion of environmental wind drag, **Atmospheric Chemistry and Physics**, v. 10, 585–594, 2010b.

FUNDACIÓN BARILLOCHE. **Inventario nacional de la República Argentina de fuentes de emisiones y absorciones de gases de efecto invernadero no controlados por el Protocolo de Montreal, Inventario correspondiente al año 2000 y revisión de los inventarios 1990, 1994 y 1997**. Buenos Aires, Argentina: Fundación Barilloche, 2005.

GACITA, M.S. Estudos Numéricos de química atmosférica para a região do Caribe e América Central com ênfase em Cuba. Dissertação (mestrado em Meteorologia), Instituto Nacional de Pesquisas Espaciais, 148 p., 2010.

GASNET. **Perfil do GNV no Brasil**. Desenvolvido por GASNET, 2004.
Disponível em: <http://www.gasnet.com.br/novo_gnv/perfil_gnv_brasil.asp>.
Acessado em 03/03/2011.

GERY M. W.; WHITTEN G. Z.; KILLUS J. P. **Development and Testing of the CBM-IV For Urban and Regional Modeling**, Washington, EPA-600/ 3-88-012, January, 1988.

GRAHAM, R.L. An efficient algorithm for determining the convex hull of a finite planar set. **Information Processing Letters**, v. 1, 132 – 133, 1972.

GRELL G.A.; DÉVÉNYI D. A generalized approach to parameterizing convection combining ensemble and data assimilation techniques. **Geophysical Research Letters**, v. 29, n.14, 38.1-38.4, 2002.

GRELL, G. A.; PECKMANN, S.; SCHMITZ, R.; MCKEEN, S. A.; FROST, G.; SKAMAROCK, W. C.; EDER, B. Fully coupled “online” chemistry within the WRF model, **Atmospheric Environment**, v. 39, 6957–6975, 2005.

GROSS, A.; STOCKWELL W.R. Comparison of the EMEP, RADM2 and RACM Mechanisms. **Journal of Atmospheric Chemistry**, v. 44, n. 2, 151-170, 2003.

GILLANI, N.V.; PLEIM, J.E. Subgrid scale features of anthropogenic emissions of NO_x and VOC in the context of regional eulerian models. **Atmospheric Environment**, v. 30, 2043–2059, 1996.

GIOVANI, M.; SZKO, A.; SCHAEFER, R.; BORGHETTI J.; SIMÕES, A.F.; PEREIRA, A.; OLIMPIO, A.; MARIANO, J. Perspectivas de demanda por combustíveis no Brasil. In: CONGRESSO BRASILEIRO DE P&D EM PETRÓLEO E GÁS, 3., 2005. Salvador. **Anais...** Rio de Janeiro: IBP, 2005.

GUARDANI, R.; NASCIMENTO, C. A. O. Neural network-based study for predicting ground-level ozone concentration in large urban areas, applied to the Sao Paulo Metropolitan Area. **International Journal of Environment and Pollution** , v. 22, n. 4, p. 441-459, 2004.

GUENTHER, A.; KARL, T. HARLEY, P.; WIEDINMER, C.; PALMER, P. I.; GERON, C. Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature). **Atmospheric Chemistry and Physics**, v. 6, 3181–3210, 2006.

GURJAR, B.R.; van AARDEENE, J.A.; LELIEVELD J.; MOHAN M. Emissions estimates and trends (1990 – 2000) for megacity Delhi and implications. **Atmospheric Environment**, v. 38, n. 33, 5663 – 5681, 2004.

GUTTIKUNDA, S.K.; CARMICHAEL, G.R.; CALORI, G.; CK, C.; WOO, J.H. The contribution of megacities to regional sulfur pollution in Asia. **Atmospheric Environment**, v. 37, 11 – 32, 2003.

GUTTIKUNDA, S.; TANG, Y.; CARMICHAEL, G.; KURATA, G.; PAN, L.; STREETS, D.; WOO, J.-H.; THONGBOONCHOO, N.; FRIED, A. Impacts of Asian megacity emissions on regional air quality during spring 2001, **Journal of Geophysical Research**, v. 110, D20301, 2005.

HAIRER, E.; WANNER, G. **Solving ordinary differential equations II. stiff and differential-algebraic problems**. Berlin: Springer-Verlag, 1991. 630 p.

HOROWITZ, L. W.; WALTERS, S.; MAUZERALL, D. L.; EMMONS, L. K.; RASCH, P. J.; GRANIER, C.; TIE, X.; LAMARQUE, J. F.; SCHULTZ, M. G.; TYNDALL, G. S.; ORLANDO, J.J.; BRASSEUR G. P. A global simulation of tropospheric ozone and related tracers: Description and evaluation of MOZART, version 2. **Journal of Geophysical Research**, v 108, D24, ACH 16:1 - 18, 2003.

HOUGHTON, J.T. et al. **IPCC 2001. Climate change 2001: the scientific basis**. Contribution of Working Group I to the Second Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Cambridge University Press, Cambridge, 881 p, 2001.

INTERGOVERNMENTAL PANEL ON CLIMATE CHANGE (IPCC). **Climate change 2007: the physical science basis - summary for policymakers**. Quarto relatório do IPCC, 2007a. Disponível em: <<http://www.ipcc.ch/SPM2feb07.pdf>>. Acesso em 02/04/2010.

INTERGOVERNMENTAL PANEL ON CLIMATE CHANGE (IPCC). **Climate change 2007: contribution of working group III to the fourth assessment report of the intergovernmental panel on climate change**. Quarto relatório do IPCC, 2007b. Disponível em: <http://www.ipcc.ch/publications_and_data/ar4/wg3/en/contents.html>. Acesso em 02/04/2010.

JACOB, D.J. Heterogeneous chemistry and tropospheric ozone. **Atmospheric Environment**, v. 34, 2131-2159, 2000.

JACOBSON, M.Z. **Fundamentals of atmospheric modeling**, Cambridge. University Press, 828 p., 1999.

JENKIN, M.E.; CLEMITSCHAW, K.C. Ozone and other secondary photochemical pollutants: chemical processes governing their formation in the planetary boundary layer. **Atmospheric Environment**, v. 34, 2499-2527, 2000.

JOSSE, B. ; SIMON, P.; PEUCH, V-H. Radon global simulations with the multiscale chemistry and transport model MOCAGE. **Tellus**, v. B 56, 339-356, 2004.

KNOWLTON, K.; ROSENTHAL, J. E.; HOGREFE, Ch.; LYNN, B.; GAFFIN, S.; GOLDBERG, R.; ROSENZBEIG, C.; CIVEROLO, K.; KU, J.-Y.; KINNEY, P. L.. Assessing Ozone-Related Health Impacts under a Changing Climate, **Environment Health Perspective**, v. 112, n. 15, 1557–1563, 2004.

KUHN, M. ; BUILTJES, P.J.H. ; POPPE, D. ; SIMPSON, D. ; STOCKWELL, W.R.; ANDERSON-SKOLD, Y. ; BAART, A. ; DAS M. ; FIEDLER, F. ; HOV, O. ; KIRCHNER, F. ; MAKAR, P.A. ; MILFORD, J.B. ; ROEMER, M.G.M. ; RUHNKE, R. ; STRAND, A. ; VOGEL, B. ;VOGEL, H. Intercomparison of the

gasphase chemistry in several chemistry and transport models. **Atmospheric Environment**, v. 32, 693-709, 1998.

LAWRENCE, M. G. ; JÖCKEL, P. J. ; VON KUHLMANN, R. What does the global mean OH concentration tell us? **Atmospheric Chemistry and Physics**, v. 1, 37-49, 2001.

LAWRENCE, M.G. ; ØYSTEIN, H. ; MATTHIAS, B. ; JØRGEN, B. ; HENDRIK E. ; HENK E. ; HANS F. ; MASAYUKI T. The Chemical Weather. **Environmental Chemistry**, v. 2, n. 1, 6 – 8, 2005.

LAWRENCE, M.G.; BUTLER, T.M.; STEINKAMP, J.; GURJAR, B.R.; LELIEVELD, J. Regional pollution potentials of megacities and other major population centers, **Atmospheric Chemistry and Physics**, v. 7, 3969 – 3987, 2007.

LIN, C. A; PEREIRA, L.A.A; BRAGA, A.L.F; CONCEIÇÃO, G.M.S; KISHI, H.S; MILANI, R. Association Between Air Pollution and Ischemic Cardiovascular Emergency Room Visits. **Environmental Research**; v. 92, n. 1, 53-63, 2003.

LONGO, K.; THOMPSON, A.M. ; KIRCHOFF, V.W.J.H. ; REMER, L.A. ; FREITAS, S.R. ; SILVA DIAS, M.A.F. ; ARTAXO, P. ; HART, W. ; SPINHIRNE, J.D. ; YAMASOE, M. A. Correlation between smoke and tropospheric ozone concentration in Cuiabá during SCAR-B, **Journal of Geophysical Research**, v. 104, 12113-12129, 1999.

LONGO, K. M.; FREITAS, S. R.; SETZER, A.; PRINS, E.; ARTAXO, P.; ANDREAE, M. O. The Coupled Aerosol and Tracer Transport model to the Brazilian developments on the Regional Atmospheric Modeling System (CATT-BRAMS) – Part 2: Model sensitivity to the biomass burning inventories, **Atmospheric Chemistry and Physics**, v. 9, 2843–2861, 2009a.

LONGO, K M.; FREITAS, S. R.; ANDREAE, M. O., YOKELSON, R.; ARTAXO, P.: Biomass burning, long-range transport of products, and regional and remote impacts. **American Geophysical Union**, v. 186, 207–232, 2009b.

LONGO, K. M. ; FREITAS, S. R. ; PIRRE, M. O. ; MARÉCAL, V. ; RODRIGUES, L. F. ; ALONSO, M. F.; FONSECA, R. M., SANCHEZ Gácita, M., STOCKLER R. The Chemistry CATT-BRAMS model: a new tool for local and regional atmospheric chemistry modeling studies. **Geoscience Model Developing**, 2011. Em submissão.

LOSEKANN, L.; VILEILA T. Estimação da frota brasileira de automóveis flex e a nova dinâmica do consumo de etanol no Brasil a partir de 2003. **Infopetro**, 2010. Disponível em: <<http://infopetro.wordpress.com/2010/07/26/estimacao-da-frota-brasileira-de-automoveis-flex-e-a-nova-dinamica-do-consumo-de-etanol-no-brasil-a-partir-de-2003/>>. Acesso em: 20/02/2011.

MAZZEO, N.A. ; VENEGAS, L.E. Some aspects of air pollution in Buenos Aires City (Argentina). **International Journal of Environment and Pollution**, v. 22, n. 4, 365-378, 2004.

MESSNER, S.; STRUBEGGER, M. **User's guide for MESSAGE III**. Laxemburg, Austria: International Institute for Applied Systems Analysis, 1995, Avaliado em: <<http://www.iiasa.ac.at/Admin/PUB/Documents/WP-95-069.pdf>>. Acessado em: 15/12/2010.

MELLOR G.L.; YAMADA T. Development of a turbulence closure model for geophysical fluid problems. **Reviews of Geophysics and Space Physics**, v. 20: 851-875, 1982.

MINISTÉRIO DA CIÊNCIA E ENERGIA – ECONOMIA E ENERGIA (MCT; E&E). **Relatório final, projeto: balanço de carbono**. Brasília, 2003. n. 010065.00.

MINISTÉRIO DA CIÊNCIA E ENERGIA (MCT). **Comunicação nacional inicial do Brasil à Convenção-Quadro das Nações Unidas sobre mudança do clima**. Brasília: Coordenação Geral de Mudanças Globais de Clima, Ministério da Ciência e Tecnologia (MCT), 2004. 271 p.

MINISTÉRIO DA CIÊNCIA E ENERGIA (MCT). **Emissões de dióxido de carbono por queima de combustíveis: abordagem top-Down – primeiro**

inventário brasileiro de emissões antrópicas de gases de efeito estufa. Brasília, 2006. Relatório de Referência do Ministério da Ciência e Tecnologia.

MINISTÉRIO DA CIÊNCIA E ENERGIA (MCT). **Inventário brasileiro das emissões e remoções antrópicas de gases de efeito estufa** – informações gerais e valores preliminares. Brasília, 2009. 16 p.

MINISTÉRIO DA CIÊNCIA E ENERGIA (MCT). **Segundo inventário brasileiro de emissões antrópicas de gases do efeito estufa**. Brasília: Ministério da Ciência e Tecnologia, 2010. 43 p.

MICHALAKES, J.; CHEN, S.; DUDHIA, J.; HART, L.; KLEMP, J.; MIDDLECOFF, J.; SKAMAROCK, W. Development of a next generation regional weather research and forecast model, in developments in teracomputing. In: ECMWF WORKSHOP ON THE USE OF HIGH PERFORMANCE COMPUTING IN METEOROLOGY, 9., 2001, Singapore. **Proceedings...** Singapore: World Scientific, 2001. P. 269–276.

MOLINA, M. J.; MOLINA, L. T. Megacities and atmospheric pollution. **Journal of Air & Waste Management Association**, v. 54, 644–680, 2004.

MURAMOTO, C. A.; LOPES, C. F. F.; LACAVA, C. I. V. Study of Tropospheric Ozone in São Paulo Metropolitan Region. ANNUAL CONFERENCE & EXHIBITION ENERGY, ECONOMIC AND GLOBAL CHALLENGES, A&WMA'S, 96., 2003, San Diego, EUA. **Abstracts...** San Diego, 2003.

NTZIACHRISTOS, L.; SAMARAS, Z. **COPERT III computer programme to calculate emissions from road transport, methodology and emission factors (Version 2.1)**. European Environment Agency ETC/AEM, 2000. Technical report n. 49.

OLIVIER, J.G.J.; BERDOWSKI, J.J.M. Global emissions sources and sinks. In: BERDOWSKI, J.; GUICHERIT, R.; B.J. HEIJ (EDS.) **The climate system**, Lisse, The Netherlands. Balkema Publishers/Swets & Zeitlinger Publishers, 2001. p. 33-78. A.A. ISBN 90 5809 255 0.

PIELKE, R.A. A comparison of three-dimensional and two-dimensional numerical predictions of sea breezes. **Journal of the Atmospheric Sciences**, 31, 1577-1585, 1974.

PIELKE, R.A.; COTTON, W.R.; WALKO, R.L.; TREMBACK, C.J. ; LYONS, W.A. ; GRASSO, L.D. ; NICHOLLS, M.E. ; MORAN, M.D.; WESLEY, D.A. ; LEE T.J. ; COPELAND, J.H. A comprehensive meteorological modeling system -RAMS, **Meteorology and Atmospheric Physics.**, 49, 69-91, 1992.

PIMENTEL, D.; COOPERSTEIN, S.; RANDELL, H.; FILIBERTO, D.; SORRENTINO, S.; KAYE, B.; NICKLIN, C.; YAGI, J.; BRIAN, J.; O'HERN, J.; HABAS, A.; WEINSTEIN, C. Ecology of Increasing Diseases: Population Growth and Environmental Degradation. **Human Ecology**, v. 35, 653 – 668, 2007.

PIRES, D.O. **Inventário de emissões atmosféricas de fontes estacionárias e sua contribuição para a poluição do ar na Região Metropolitana do Rio de Janeiro**. Tese (doutorado em Planejamento Energético), Universidade Federal do Rio de Janeiro, COPPE, 180 p., 2005.

PONCHE J.L.; VINUESA, J.F. Emission scenarios for air quality management and applications at local and regional scales including the effects of the future European emission regulation (2015) for the upper Rhine valley, **Atmospheric Chemistry and Physics Discussion**, v. 4, 8539–8577, 2004.

REYNOLDS, A.W.; BRODERICK, B.M. Development of an emissions inventory model for mobile sources, **Transportation Research Part D: Transport and Environment**, v. 5, n. 2, 77–101, 2000.

RODRIGUEZ, P.; BENHETZ, E. **Actualización del inventario de emisiones de fuentes móviles para la ciudad de Bogotá a través de mediciones directas**. Dissertação (Mestrado em Engenharia Ambiental) - Universidad de Los Andes, 2009.

SALDIVA, P.H.N.; LICHTENFELS, A.J.F.C.; PAIVA, P.S.O.; BARONE, I.A.; MARTINS, M.A.; MASSAD, E; PEREIRA, J.C.R.; XAVIER, V.P.; SINGER, J.M.;

BOHM, G.M. Association between air pollution and mortality due to respiratory diseases in children in São Paulo, Brazil: a preliminary report. **Environment Research**, v. 65, 218-225, 1994.

SALDIVA, P.H.N.; POPE, C.A.; SCHWARTZ, J.; DOCKERY, D.W.; LICHTENFELS, A.J.; SALGE, J.M.; BARONE, I.; BOHM, G.M. Air pollution and mortality in elderly People: a time-series study in São Paulo, Brazil. **Archives of Environmental Health**, v. 50, n. 2, 159-163, 1995.

SCHMITZ, R. Modelling of air pollution dispersion in Santiago de Chile, **Atmospheric Environment**, v. 39, 2035–2047, 2005.

SCHNEIDER, C.H.; KESSLER, C.H.; MOUSSIOPOULOS, N. Influence of emission input data on ozone level predictions for the Upper Rhine valley, **Atmospheric Environment**, v. 31, 3187–3205, 1997.

SCHULTZ, M.G.; BACKMAN, L.; BALKANSKI, Y.;BJOERNDALSAETER, S.; BRAND, R.; BURROWS, J.P.; DALSOEREN, S.; VASCONCELOS, M. DE; GRODTMANN, B.; HAUGLUSTAINE, D.A.; HEIL, A.; HOELZEMANN, J.J.; ISAKSEN, I.S.A.; KAUIROLA, J.; KNORR, W.; LADSTAETTER-WEIßENMAYER, A.; MOTA, B.; OOM, D.; PACYNA, J.; PANASIUK, D.; PEREIRA, J.M.C.; PULLES, T.; PYLE, J.; RAST, S. , RICHTER, A.; SAVAGE, N.; SCHULZ, M.; SPESSA, A.; STAEHELIN, J.; SUNDET, J.K.; SZOPA, S., THONICKE, K.; VAN HET BOLSCHER, M.; VAN NOIJE, T.; VAN VELTHOVEN, P.; VIK, A.F.; WITTROCK, F. **REanalysis of the TROpospheric chemical composition over the past 40 years (RETRO)** — a long-term global modeling study of tropospheric chemistry. Hamburg: Institute for Meteorology, 2007. Final Report. Report no. 48/2007 in the series Reports on Earth System Science, Max Planck.

SEINFELD, J.; PANDIS, S. **Atmospheric chemistry and physics**. Nova York, EUA: John Wiley & Sons Inc., 1998. 1232 p.

SHAEFFER, R.; SZKLO, A.; MACHADO, G. **Matriz energética brasileira 2003-2023**. Rio de Janeiro: PPE/COPPE/UFRJ, 2004. Relatório Técnico.

SILLMAN, S.; LOGAN, J. A.; WOFSY, S. C. The sensitivity of ozone to nitrogen oxides and hydrocarbons in regional ozone episodes. **Journal of Geophysics Research**, v. 95, n. D2, 1837– 1851, 1990.

SILLMAN, S. The relation between ozone, NO_x and hydrocarbons in urban and polluted rural environments. Millenial Review series, **Atmospheric Environment**, v. 33, n. 12, 1821-1845, 1999.

SILLMAN, S.; HE D. Some theoretical results concerning O₃-NO_x-VOC chemistry and NO_x-VOC indicators. **Journal of Geophysics Research**, v. 107, D22, ACH 26-1, 2002.

SILLMAN, S. Tropospheric ozone and photochemical smog. In: LOLLAR, B. S. (ed.). **Environmental geochemistry: treatise on geochemistry**. [S.l.] Elsevier, 2003. v. 9:, Ch. 11.

SIMPSON, D.; OLENDRZYNSKI, K.; SEMB, A.; STØREN, E.; UNGER, S. **Photochemical oxidant modelling in Europe: multi-annual modelling and source-receptor relationships**. Oslo, Noruega: Norwegian Meteorological Institute, 1997. EMEP MSCW Report 3/97.

STOCKWELL, W. R. A homogeneous gas phase mechanism for use in a regional acid deposition model. **Atmospheric Environment**, v. 20, 1615–1632, 1986

STOCKWELL, W. R.; MIDDLETON, P.; CHANG, J. S.; TANG, X. The second generation regional acid deposition model chemical mechanism for regional air quality modeling. **Journal of Geophysical Research**, v. 95, n. D10, 16343–16367, 1990.

STOCKWELL, W. R.; KIRCHNER, F.; KUHN, M.; SEEFELD, S. A new mechanism for regional atmospheric chemistry modeling, **Journal of Geophysical Research**, v. 102, n. D22, 25847–25879, 1997.

SUDO, K.; AKIMOTO H. Global source attribution of tropospheric ozone: Long-range transport from various source regions. **Journal of Geophysical Research**, v. 112, D12302, 1 -21, 2007.

SUPAN, P.; SCHÄDLER, G. The impact of highway emissions on ozone and nitrogen oxide levels during specific meteorological conditions. **Science of The Total Environment**, v. 334-335, 215-222, 2004.

TAGHAVI, M.; CAUTENET, S.; ARTETA, J. Impact of a high resolution emission inventory on modeling accuracy, **Atmospheric Research** (Special Issue ESCOMPTE) 74, 65 – 88, 2005.

TEIXEIRA, E.C.; FELTES, S.; SANTANA, E.R.R. Estudo das emissões de fontes móveis na região metropolitana de Porto Alegre, Rio Grande do Sul. **Química Nova**, v. 31, n. 2, 244 – 248, 2008.

TEYSSÈDRE, H.; MICHOU, M.; CLARK, H. L.; JOSSE, B.; KARCHER, F.; OLIVIÉ, D.; PEUCH, V.-H.; SAINT-MARTIN, D.; CARIOLLE, D.; ATTIE, J.-L.; NÉDÉLEC, P.; RICAUD, P.; THOURET, V.; VAN DER, A R. J.; VOLZ-THOMAS, A.; CHÉROUX F. A new tropospheric and stratospheric Chemistry and Transport Model MOCAGE-Climat for multi-year studies: evaluation of the present-day climatology and sensitivity to surface processes. **Atmospheric Chemistry and Physics**, v. 7, 5815-5860, 2007.

TIE, X.; MADRONICH, S.; WALTERS, S.; ZHANG, R.; RASCH, P.; COLLINS, W. Effect of clouds on photolysis and oxidants in the troposphere. **Journal of Geophysical Research**, v. 108, n. D20, 4642-4664, 2003.

TIE, X.; MADRONICH, S.; LI, G.H.; YING, Z.M.; ZHANG, R. ; GARCIA, A. ; LEE-TAYLOR, J.;LIU, Y. Characterizations of Chemical Oxidants in Mexico City: A Regional Chemical/dynamical Model (WRF-Chem) Study, **Atmospheric Environment**, v. 41, 1989-2008, 2007

TIE, X.; MADRONICH, S. ; LI, G.H.; YING, Z.M. ; WEINHEIMER, A. ; APEL, E. ; CAMPOS, T. Simulation of Mexico City Plumes during the MIRAGE-Mex Field Campaign Using the WRF-Chem Model. **Atmospheric Chemistry and Physics** , v. 9, 4621-4638, 2009.

TIE, X.; BRASSEUR, G.; YING Z. Impact of model resolution on chemical ozone formation in Mexico City: application of the WRF-Chem model. **Atmospheric Chemistry and Physics**, v. 10, 8983–8995, 2010.

TREMBACK, C.; POWELL, J.; COTTON, W.R.; PIELKE, R. The forward in time upstream advection scheme: Extension to higher orders, **Monthly Weather Review**, v. 115, 540-555, 1987.

TRIPOLI, G.J.; COTTON, W.R. The Colorado State University three-dimensional cloud/mesoscale model -- 1982. Part I: General theoretical framework and sensitivity experiments. **Journal de Recherches Atmospheriques**, v. 16, 185-220, 1982.

TUCCI, C.E.M.; BERTONI, J. C. **Inundações urbanas na América do Sul**. Porto Alegre: Associação Brasileira de Recursos Hídricos., 2003. 197 p. ISBN: 85-88686-07-4.

UNFPA. **Situação da população mundial 2007**: desencadeando o potencial do crescimento urbano. São Paulo: Fundo de População das Nações Unidas, 2007. 180 p.

UNO, I.; CARMICHAEL, G. R.; STREETS, D. G.; SATAKE, S.; TAKEMURA, T.; WOO, JUNG-HUN; UEMATSU, M.; OHTA, S. Analysis of Surface Black Carbon Distributions during ACE Asia using a Regional Scale Aerosol Model. **Journal of Geophysical Research**, n. 108, D23, 1-11, 2003a.

UNO, I.; CARMICHAEL, G. R.; STREETS, D. G.; TANG, Y.; YIENGER, J. J.; SATAKE, S.; WANG, Z.; WOO, JUNG-HUN; GUTTIKUNDA, S.; UEMATSU, M.; MATSUMOTO, K.; TANIMOTO, H.; YOSHIOKA, K.; IIDA, T. Regional chemical weather forecasting system CFORS: Model descriptions and analysis of surface observations at Japanese island stations during the ACE-Asia experiment. **Journal of Geophysical Research**, 108, D23, 8668, 2003b.

VALE, A. R. **Expansão urbana e plurifuncionalidade no espaço periurbano do município de Araraquara (SP)**. Tese (Doutorado em Geografia). Universidade Estadual Paulista, Instituto de Geociências e Ciências Exatas, Rio Claro, 2005.

VENEGAS, L.E.; MAZZEO, N.A. Influence of surrounding areas and wind on air quality of Buenos Aires City. Proceedings of 11th International conference on Harmonisation within Atmospheric Dispersion Modelling for Regulatory

Purposes - **International Journal of Environment and Pollution**, v. 44 - Issue 1/2/3/4, 2011.

WESELY, M. L., Parameterization of surface resistance to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models, **Atmospheric Environment**, 23, 1293-1304, 1989.

WILD, O.; AKIMOTO, H. Intercontinental transport ozone and its precursors in a three-dimensional global CTM. **Journal of Geophysical Research**, v. 106, 27729–27744, 2001.

YING, Z.M.; TIE, X.; LI, G.H. Sensitivity of ozone concentrations to diurnal variations of surface emissions in Mexico City: A WRF/Chem modeling study, **Atmospheric Environment**, v. 43, 851-859, 2009.

YOKELSON, R. J.; KARL, T. ; ARTAXO, P. ; BLAKE, D. R. ; CHRISTIAN, T. J. ; GRIFFITH, D. W. T. ; GUENTHER, A. HAO, W. M. The Tropical Forest and fire emissions experiment: overview and airborne fire emission factor measurements. **Atmospheric Chemistry and Physics**, v. 7, 6903-6958, 2007.

YOKELSON, R. J.; CHRISTIAN, T. J.; KARL, T. G.; GUENTHER, A. The tropical forest and fire emissions experiment: Laboratory fire measurements and synthesis of campaign data. **Atmospheric Chemistry and Physics**, v. 8, 3509-3527, 2008.

ZÁRATE E.;BELALCÁZAR L. C.; CLAPPIER A.; MANZI V.; BERGH H.V.D. Air quality modelling over Bogotá, Colombia: Combined techniques to estimate and evaluate emission inventories, **Atmospheric Environment**, v. 41, 6302 – 6318, 2007.

ANEXO A – TRABALHOS PUBLICADOS

Alonso, M.F., Longo, K.M., Freitas, S.R., da Fonseca, R.M., Marécal, V., Pirre, M., Klenner, L.G. An urban emissions inventory for South America and its application in numerical modeling of atmospheric chemical composition at local and regional scales, *Atmospheric Environment* (2010), doi: 10.1016/j.atmosenv.2010.09.013

Freitas, S. R., Longo, K. M., Alonso, M. F., Pirre, M., Marécal, V., Grell, G., Stockler, R., da Fonseca, R.M., and Sánchez Gácita, M.: A pre-processor of trace gases and aerosols emission fields for regional and global atmospheric chemistry models, *Geosci. Model Dev.*, 4, 419-433, doi:10.5194/gmd-4-419-2011, 2011.

Longo, K. M., Freitas, S. R., Alonso, M. F., Rodrigues, L.F., da Fonseca, R.M. Stockler, R., Moreira, D. New air quality product at CPTEC/INPE: forecasting troposphere ozone and its precursors from biomass burning and urban emissions. *Boletim da Sociedade Brasileira de Meteorologia*, v. 33, p. 39-48, 2010.



An urban emissions inventory for South America and its application in numerical modeling of atmospheric chemical composition at local and regional scales

Marcelo Felix Alonso^{a,*}, Karla Maria Longo^b, Saulo R. Freitas^a, Rafael Mello da Fonseca^a,
Virginie Marécal^c, Michel Pirre^d, Laura Gallardo Klenner^e

^a Centro de Previsão de Tempo e Estudos Climáticos (CPTEC), INPE, Rodovia Presidente Dutra, km 40, SP-RJ, 12630-000 Cachoeira Paulista, SP, Brazil

^b Centro de Ciências do Sistema Terrestre (CCST), INPE, Brazil

^c CNRM-GAME, Météo-France and CNRS, URA 1357, Toulouse, France

^d Laboratoire de Physique et Chimie de l'Environnement et de l'Espace, CNRS and Université d'Orléans, France

^e Departamento de Geofísica, Universidad de Chile, Chile

ARTICLE INFO

Article history:

Received 16 March 2010

Received in revised form

3 September 2010

Accepted 3 September 2010

Keywords:

South American megacities

Urban emissions

Chemical weather forecasting

CCAT-BRAMS

ABSTRACT

This work describes the development of an urban vehicle emissions inventory for South America, based on the analysis and aggregation of available inventories for major cities, with emphasis on its application in regional atmospheric chemistry modeling. Due to the limited number of available local inventories, urban emissions were extrapolated based on the correlation between city vehicle density and mobile source emissions of carbon monoxide (CO) and nitrogen oxides (NO_x). Emissions were geographically distributed using a methodology that delimits urban areas using high spatial resolution remote sensing products. This numerical algorithm enabled a more precise representation of urban centers. The derived regional inventory was evaluated by analyzing the performance of a chemical weather forecast model in relation to observations of CO, NO_x and O₃ in two different urban areas, São Paulo and Belo Horizonte. The gas mixing ratios simulated using the proposed regional inventory show good agreement with observations, consistently representing their hourly and daily variability. These results show that the integration of municipal inventories in a regional emissions map and their precise distribution in fine scale resolutions are important tools in regional atmospheric chemistry modeling.

© 2010 Elsevier Ltd. All rights reserved.

1. Introduction

Urbanization has been one of the most significant trends in human activity throughout history. In the mid-19th century, only 1.7% of the global population lived in cities, but the urban population fraction grew to 50% by 2007. In South America, the data are even more striking: 82% of the population resides in urban areas, with an annual growth rate of 1.7% (UNFPA, 2007).

Population growth in large cities leads to air quality degradation at the local and regional scale, among other problems. Toxic trace gases emitted to the troposphere and their oxidation products represent a direct human health risk. In developing countries, this problem is generally aggravated by the age of the vehicle fleet, as

well as intensive use of fossil fuels rather than low emission energy sources in both industry and the transport sector.

The local air quality effects of urban emissions and the regional impact of extensive remote urban areas have been the subjects of observational and modeling studies. The production of elevated near-surface levels of ozone is particularly worrisome. Clinical studies have related high ozone concentrations with reduced lung function (Abelsohn et al., 2002), and its phytotoxicity can compromise agricultural productivity and affect forest areas.

The air quality at a given city is driven by a combination of meteorological conditions and local emissions. To apply strategies for air quality improvement, it is necessary to quantify their impacts at local or regional scales. Some studies showed that regional and local air quality may also strongly depend on emissions at these scales (Schneider et al., 1997; Ponche and Vinuesa, 2004), therefore, the fine scale emissions inventories are very useful for air pollution prediction. It was shown, for the Expérience sur Site pour Contraindre les Modèles de Pollution atmosphérique et de Transport d'Emissions (ESCOMPTE) campaign over Marseilles city (France), that the use of an inventory with a higher resolution

* Corresponding author. Tel.: +55 12 31868502.

E-mail addresses: marcelo.alonso@cptec.inpe.br (M.F. Alonso), karla.longo@inpe.br (K.M. Longo), saulo.freitas@cptec.inpe.br (S.R. Freitas), rafael.mello@cptec.inpe.br (R. Mello da Fonseca), Virginie.Marecal@meteo.fr (V. Marécal), mpirre@cnrs-orleans.fr (M. Pirre), laura@dgf.uchile.cl (L.G. Klenner).

in space and time improve the primary and secondary pollutants estimation (Taghavi et al., 2005).

Characterizing and predicting local air quality and regional effects resulting from emissions in a large city requires a detailed survey of emissions sources. For example, for mobile sources, information about the vehicle fleet, traffic patterns, and street configuration must be considered. In addition, emission factors depend strongly on vehicle driving patterns, which can vary by location (Berkowicz et al., 2006). The methodology generally utilized to estimate mobile source emissions in large cities involves estimating the vehicular flux by counting vehicles or using transport models (Reynolds and Broderick, 2000). The difference between the development of municipal and national inventories lies in the level of detail of the input data, hypotheses, and analyzed parameters. National inventories require a broader approach for emissions estimation, as they encompass sources with larger geographic scales, including air and marine transport and the national energy grid. In South America, several efforts exist to survey these sources; particularly notable are the activities of countries such as Argentina (Fundación Bariloche, 2005) and Brazil (<http://www.mct.gov.br/index.php/content/view/full/17341.html>) to construct national greenhouse gas inventories. However, these efforts are still preliminary, and the results have not been integrated.

With the increasing use of numerical atmospheric chemistry modeling on local, regional and global scales, the creation of inventories with wider coverage and analysis of the interaction among the various scales have become essential. In the past decade, various programs of international cooperation have emerged with the objective of providing integrated emission information on continental or global scales. Of note are the EMEP (Co-operative Programme for Monitoring and Evaluation of the Long-Range Transmission of Air Pollutants in Europe – <http://www.ceip.at/>) in Europe, and the Global Emissions Inventory Activity (GEIA) from the International Global Atmospheric Chemistry Programme (<http://www.geiacenter.org/>).

The spatial and temporal resolution of the global inventories is normally low, and therefore does not capture the specific characteristics of each region, principally with respect to the representation of urban centers (Gurjar et al., 2004). Through comparison of individual emissions estimates for the major megacities in the global inventories RETRO (REanalysis of TROpospheric chemical composition over the past 40 years – <http://retro.enes.org/>), EDGAR (Emissions Database for Global Atmospheric Research – <http://www.mnp.nl/edgar/>) and IPCC-AR4 (Intergovernmental Panel on Climate Change – Fourth Assessment Report, Dentener et al., 2005), it was shown that large differences exist among these databases, principally due to methodological differences in the geographic distribution or the emissions aggregation. In certain cases, such as the city of Tokyo, the different inventories vary by a factor of two (Butler et al., 2008).

Even with the current initiative to construct finer resolution global emissions inventories, such as EDGAR 4.0 (<http://edgar.jrc.ec.europa.eu/index.php>), which has a spatial resolution of 10 km, it is necessary to develop methodologies to integrate local inventories into global emissions databases. This type of approach is even more necessary in regions which are typically poorly represented in global inventories due to scarcity of national inventories and measurement campaigns, such as is the case in the vast majority of countries in South America.

In 2006, the project SAEMC (South American Emissions, Megacities and Climate), financed by the Inter-American Institute for Global Change Research (IAI), established a collaboration network among Argentina, Brazil, Chile and Colombia, with the aims of creating updated emissions inventories, generating

climate change scenarios for the South American continent with emphasis on the impact of megacities, and establishing a scientific basis for regional chemical weather forecasting. In this context, this work presents the consolidation of a regional urban emissions inventory for South America. This database integrates information from local inventories of vehicle emissions into existing global databases for the South American continent. The analysis procedures are described, including use of socio-economic data, extrapolation of emissions to cities lacking local inventories, and the geographic distribution of emissions at different spatial resolutions. Simulations were conducted with the operational chemistry model CCATT-BRAMS (Coupled Chemistry Aerosol and Tracer Transport model to the Brazilian developments on the Regional Atmospheric Modeling System, Freitas et al., 2009; Longo et al., in preparation) in order to evaluate the applicability of the regional urban emissions inventory to local and regional chemistry modeling.

2. Regional mobile source urban emissions inventory for South America

Although other anthropogenic sources of urban emissions exist, the focus of this work is vehicle emissions. In the metropolitan region of São Paulo, mobile sources are responsible for 95% of total carbon monoxide (CO) emissions and for 98% of total nitrogen oxides (NO_x) emissions (CETESB, 2005). A similar relative contribution is found in other South American cities, such as Santiago–Chile (DICTUC, 2007) and Bogotá–Colombia (Zárate et al., 2007).

The regional scale mobile source urban emissions inventory presented here was developed in the CCATT-BRAMS emissions preprocessor (Freitas et al., 2010) by combining available local inventories, extrapolated values for cities without inventories, and the global inventories RETRO and EDGAR. The resulting inventory was then evaluated as described in Section 4.2. The RETRO inventory is a global emissions database with temporal resolution of 40 years (1960–2000), with monthly means evaluated on a global grid with resolution of $0.5^\circ \times 0.5^\circ$. The anthropogenic sources include emissions from burning of fossil fuels and biofuels developed by the TNO (Netherlands Organization for Applied Research), combined with data on international maritime traffic from the VERITAS inventory (Endresen et al., 2003) and air traffic from the project ANCAT (<http://www.mdcr.cz/en/Air+Transport/Environment/ecac.htm>). The EDGAR inventory provides annual global emissions of greenhouse gases and precursors for the year 2000 on a $1^\circ \times 1^\circ$ grid (Olivier and Berdowski, 2001). Both use national data from organizations such as the IEA (International Energy Agency), and thus are not completely independent (Butler et al., 2008). Their differences originate in estimates of emissions factors, the aggregation and spatial distribution methodologies, and the classification criteria for emissions sources.

2.1. Local vehicle emissions inventories

In order to evaluate the individual contribution of vehicle fleet emissions in large South American cities, information was used from local inventories for a few cities in the states of São Paulo and Rio de Janeiro in the Southeast Region of Brazil, the Metropolitan Region of Porto Alegre in the south of Brazil, the Metropolitan Region of Buenos Aires (Argentina), Santiago (Chile), and Bogotá (Colombia). The locations of the cities considered are shown in the map in Fig. 2, and the main characteristics of each inventory are shown in Table 1.

This study considers emission data from major South American cities with available inventories. For Brazil, the local inventories

Table 1

Local inventories used in the regional database.

Inventory	Year	Reference	Methodology summary
São Paulo, São José dos Campos, Campinas and Sorocaba	2005	CETESB (2005)	Bottom-up methodology. Some emission factors (EF) used are from the US Environmental Protection Agency (EPA) Compilation of Emission Factors (EPA, 1995), while the rest were obtained from laboratory analyses.
Porto Alegre	2004	Teixeira et al. (2008)	Bottom-up methodology. The EF were obtained from CETESB reports, which include EPA and laboratory data.
Rio de Janeiro	2004	FEEMA (2004)	Bottom-up methodology. The EF used are from the EPA.
Buenos Aires	2006	D'Angiola et al. (2009)	Bottom-up European COPERT methodology (Ntziachristos and Samaras, 2000). The EF were selected from different sources considering availability of data. Most were estimated using the COPERT IV model.
Santiago	2005	DICTUC (2007)	Bottom-up methodology (Corvalán et al., 2002). The EF used are from the COPERT III model (Ntziachristos and Samaras, 2000) and local measurements.
Bogotá	2006	Behrentz et al. (2009)	Bottom-up methodology. The EF were obtained from field campaign data, following the IVE project protocol.

used are: the Metropolitan Region of São Paulo and neighboring cities (CETESB, 2005), which include Sorocaba, located 60 km to the west, São José dos Campos, with a population of about 540,000 inhabitants, approximately 70 km to the northeast, and the Metropolitan Region of Campinas, with approximately 970,000 inhabitants; the State of Rio de Janeiro (FEEMA, 2004), where the densest urbanized area of the Metropolitan Region of Rio de Janeiro encompasses approximately 700 km²; and Metropolitan Region of Porto Alegre (Teixeira et al., 2008), located in the south of Brazil (Rio Grande do Sul state), which comprises 31 cities spread over an area of 9825 km².

Inventories were used from other South American cities, including the Metropolitan Area of Buenos Aires (MABA), comprised of the city itself and 24 surrounding districts that are part of the province of Buenos Aires, Argentina (D'Angiola et al., 2009); Santiago de Chile, located in the Chilean central valley, alongside the Andes (DICTUC, 2007); and Bogotá, Colombia's

capital and one of the largest urban centers in Latin America with approximately 8 million inhabitants (Behrentz et al., 2009).

3. Methodology

The construction of the regional mobile source urban emissions inventory consisted of three main steps: analysis of local inventories and correlation with socio-economic indexes, extrapolation of local information to other Brazilian cities without inventories and the spatial distribution of these emissions. The last two steps work automatically in the CCATT-BRAMS emissions preprocessor (see Fig. 1).

3.1. Extrapolation of local information

Since vehicle emissions inventories exist for only a small fraction of medium and large South American cities, existing

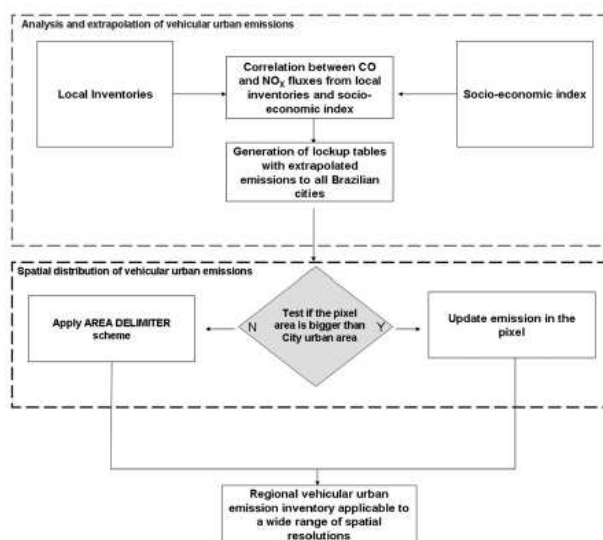


Fig. 1. Flow chart illustrating the regional mobile source urban emissions inventory construction methodology.

inventories were extrapolated to other cities by identifying a correlation between socio-economic data and mobile source emissions of CO and NO_x. Analyzed municipal data included the Human Development Index (HDI), Gross Domestic Product (GDP), urban population, and vehicle density, as well as other socio-economic indexes.

3.2. Spatial distribution of urban emissions

The high resolution spatial representation of the regional database was improved, including both available inventories updated with vehicle emissions information and the extrapolated emissions for other cities. The objective of this representation was to generate a consistent inventory for local and regional scales, as well as to enable evaluation of the impact of this representation on the regional scale.

In the original version of the CCATT-BRAMS emissions preprocessor, data from the global RETRO/EDGAR inventories are interpolated to the model grid using a “nearest neighbor” scheme, and the urban boundary is not represented with detail. In this work, a new scheme is proposed in which urban areas are identified with a numerical algorithm based on Graham (1972), which identifies points pertaining to a pre-defined range of values, making a sweep from a central point generally defined as the center of the urban area. This algorithm was adapted to read the soil cover map derived by the GLCF (Global Land Cover Facility – <http://glcf.umd.edu/data/landcover>) from images from the AVHRR (Advanced Very High Resolution Radiometer) instrument onboard the NOAA satellite, identifying urban areas using Band 13 (urban and construction). The algorithm developed by Graham (1972) is applied as a numerical solution for obtaining a convex polygon. Given a finite set $S = \{S_1, \dots, S_n\}$, a point P in the interior of this plane is identified. Each $S_i \in S$ is expressed in polar coordinates, with origin in P and angle θ , and compared with its nearest neighbors, which are determined by their angle with relation to the point P . Depending on the resolution, distinct but extremely close cities can appear to be merged, and thus are represented as a single urban area. This can be resolved by applying a radius of influence which limits the application of the algorithm to the effective urban area of the municipality. Afterwards, the Ray Casting (Snyder and Barr, 1987) algorithm is applied to verify which grid points are located inside the obtained reference polygon, and emissions are then distributed within this area. This methodology, from now on refers as AREA DELIMITER scheme, also permits the distribution of emissions on areas defined by other geo-referencing processes, and thus is applicable at various resolutions.

3.3. Evaluation of the inventory

In order to evaluate the process of integration and distribution of mobile source emissions in the regional inventory, its implementation in a regional atmospheric chemistry model is analyzed. Numerical experiments were conducted using the modeling system CCATT-BRAMS (Longo et al., in preparation). CCATT is an Eulerian atmospheric transport model that predicts trace gas mixing ratios by solving the mass conservation equation, which includes terms for advection, turbulence in the Planetary Boundary Layer (PBL), wet and dry deposition, plume rise, and shallow and deep convection. In addition, the model includes chemical reactions and interaction of aerosols with solar and long wave radiation. The CCATT-BRAMS system can be configured with virtually any chemical mechanism using a modified version of the SPACK (Simplified Preprocessor for Atmospheric Chemical Kinetics, Djouad et al., 2002) preprocessor. The Regional Atmospheric Chemistry Mechanism (RACM, Stockwell et al., 1997), with 70

species and 237 kinetic and photolysis reactions, was used for this run. The numerical integrator of the chemical mechanism is based on the Rosenbrock method (Hairer and Wanner, 1991); this simulation used the third order version RODAS 3, with four iterations. Photolysis rates were calculated on-line using the FAST-TUV (Tie et al., 2003) model. Dry deposition follows the resistance formulation and accounts for aerodynamic, quasi-laminar layer and canopy resistances (Wesely, 1989; Seinfeld and Pandis, 1998). In addition to anthropogenic emissions, the CCATT-BRAMS emissions preprocessor includes emissions from biogenic or natural sources according to GEIA/ACCENT Activity on Emission Databases (<http://www.aero.jussieu.fr/projet/ACCENT/description.php>), and from biomass burning as estimated by the Brazilian Biomass Burning Emissions Model (3BEM) (Freitas et al., 2005; Longo et al., 2007).

The numerical experiments are representative of the summer (month of January), winter (month of July) and spring (month of October) seasons in the Southern Hemisphere, for the year 2005. Two simulations were conducted per period, the first with anthropogenic emissions based on the RETRO/EDGAR inventories, called CONTROL, and the second using the regional vehicle emissions inventory generated in this work, called SA-INV. Three grids with 80, 20 and 5 km horizontal spacing were used in a nested configuration with 2-way interaction. The 80 km grid covers an extensive area of South America, between latitudes 14S and 32S and longitudes 37W and 55W. The 20 km grid covers primarily the Southeast and Center-West regions of Brazil. The finest grid covers the states of Minas Gerais and São Paulo, including their respective capitals, Belo Horizonte and the Metropolitan Region of São Paulo. The experiments were conducted with 35 vertical grid levels. The thickness of the first level was 100 m, increasing in the above levels in a geometric progression with a rate of 1.1. Both simulations use initial and boundary conditions from the global model T126L28 (CPTEC/INPE). An average vertical profile for CO, NO, NO₂, Ozone, HNO₃ and PAN was used as the chemistry initial condition, based on a climatological analysis of the global model MOCAGE (Multi-scale Chemistry and Transport Model – Josse et al., 2004; Teyssède et al., 2007) for the South American continent.

For evaluation of simulation results, observations of O₃, CO and NO_x from the Metropolitan Regions of São Paulo (CETESB Air Quality Information System – http://www.cetesb.sp.gov.br/Ar/ar_qualar.asp) and Belo Horizonte (Minas Gerais State Environment Foundation – <http://www.feam.br>) were used.

4. Results and discussion

4.1. Urban emissions inventory for South America

Among the various socio-economic indexes that were analyzed (Table 2), the CO and NO_x emission fluxes correlate best with vehicle density,¹ with Pearson correlation indexes of 0.92 and 0.93 and determination coefficients of 0.88 and 0.95, respectively. Thus, emissions for other Brazilian cities were extrapolated as a function of vehicle density according to the correlation curve shown in Fig. 2. CO and NO_x are present in all the local inventories and could be analyzed in more detail. Although some cities with inventories made available total hydrocarbon emissions, there is not sufficient information about how these species were grouped, making it

¹ Data on the 2004 vehicle fleet for Brazilian cities were obtained from the municipal database of the IBGE (Brazilian Institute of Geography and Statistics – <http://www.ibge.gov.br>). For the Metropolitan Region of Buenos Aires, the total vehicle fleet was estimated with the database of D'Angiola et al. (2009). For the city of Santiago, the information is from the INE (National Institute of Statistics – <http://www.ine.cl>) and for Bogotá, the information estimated by Behrentz et al. (2009) was used.

Table 2
Relation between CO/NOx emissions and socio-economic index (determination coefficients).

INDEX	Emissions	
	CO ($\text{kg m}^{-2} \text{s}^{-1}$)	NOx ($\text{kg m}^{-2} \text{s}^{-1}$)
Human Development Index	0.42	0.34
Gross Domestic Product (dollars)	0.64	0.74
Urban population (millions inhabitants)	0.62	0.58
Population density (inhabitants km^{-2})	0.83	0.89
Vehicle density (vehicles km^{-2})	0.88	0.95

difficult to compare them and extrapolate to the other cities. Also, the RETRO and EDGAR global inventories use different treatments for non-methane hydrocarbons (NMHC); while the EDGAR database aggregates them in a single group, RETRO divides them into 22 distinct species categories. Therefore, for hydrocarbons and other chemical species, correction factors were applied for each grid point based on the ratio between the original and updated CO emissions. The ratios of emission of non-methane volatile organic compounds (NMVOC) with relation to those of NOx from the original global inventories presented a difference on the order of 15% with relation to the local emissions. Thus, the values of NMVOC were adjusted by 1.15 factor in the regional database proposed in this work.

The impact of the inclusion of information from local inventories in the regional map and extrapolation to Brazilian cities without inventories is more evident in medium and large urban

areas in the Central, South and Southeast regions of Brazil, which contribute the most to GDP and thus have a higher vehicle density (Fig. 3). Another factor that contributes to this difference, principally in the Southeast region, is the discrepancy between the local inventory information and the global RETRO and EDGAR databases (Table 3). For example, NOx emissions for São Paulo in the CETESB inventory and the global databases vary by a factor of 2. Total CO emissions for Buenos Aires and Bogotá do not differ much among the inventories, but present a very distinct spatial distribution in the two cities. Due to their size of their urban areas, the urban area detection methodology can be applied at horizontal resolutions of 20 km. In finer grids, the spatial distribution methodology based on the urban area analysis results in a more realistic representation of the urban contribution. Fig. 4 shows the updated pre-processed emissions on the 5 km grid and the satellite image with a resolution of 1 km. The level of detail of the representation of the urban area will depend on the spatial resolution of the grid and the number of points used in the construction of the convex polygon over which the emissions will be distributed.

4.2. Evaluation of the regional inventory

Large quantities of chemical compounds are emitted to the atmosphere by anthropogenic and biogenic processes. In the atmosphere, these trace gases are subject to various transport mechanisms and complex physical–chemical transformations, the latter being responsible for the formation of secondary pollutants. Therefore, it is important to evaluate the dynamics and

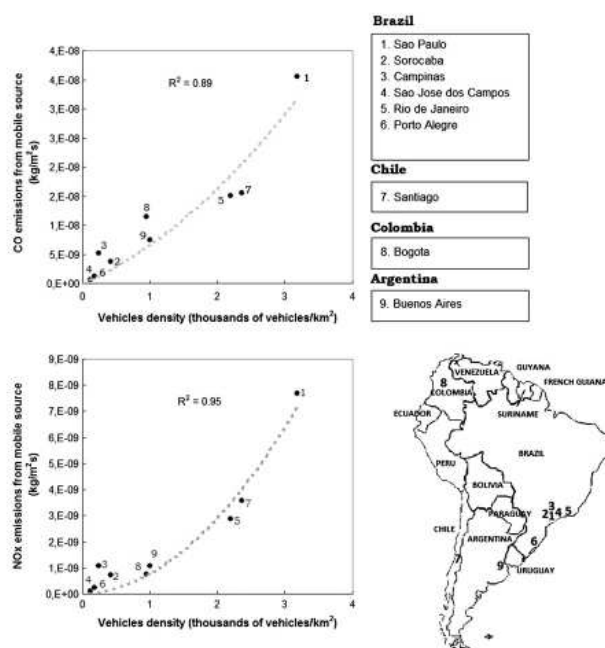


Fig. 2. Mobile source emissions of CO and NOx ($\text{kg m}^{-2} \text{s}^{-1}$) $\times$ vehicle density (thousands of vehicles km^{-2}) for the analyzed cities (locations indicated on map).

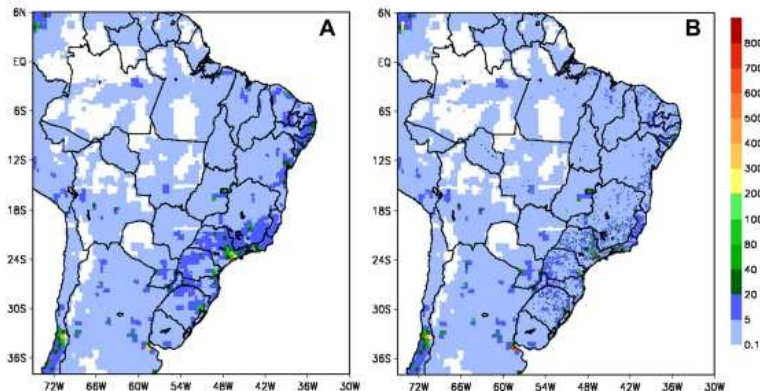


Fig. 3. Emissions of CO ($\times 10^{-6} \text{ kg km}^{-2} \text{ day}^{-1}$) from original (A) and extrapolated (B) inventories on a 20 km grid covering South America.

thermodynamics of the model, through its representation of micro- and meso-scale meteorological phenomena. The resulting emissions in the updated inventory are evaluated by comparison of the mixing ratios of CO, NOx and O₃ simulated by the model with direct observations.

4.2.1. Meteorological conditions and evaluation of model performance in the simulation of general atmospheric conditions

January 2005 was marked by three active episodes of the South Atlantic Convergence Zone (SCAZ), triggering an increase in precipitation in some states, including São Paulo and southern Minas Gerais. In July, the average monthly precipitation was low in Southeast Brazil, particularly in the North and Center-West of the state of Minas Gerais. Values slightly above the mean were observed in the north of São Paulo, due to the approach of cold fronts originating in the South Pole. The month of October was marked by above average precipitation in the state of São Paulo, but precipitation was below historical values in the states of Rio de Janeiro and Minas Gerais (CPTEC – <http://climanalise.cptec.inpe.br/%7erclimanl/boletim>). In general, the experiments coherently represented the spatial distribution of precipitation, but overestimated its intensity. The monthly total precipitation simulated for the month of January (Fig. 5B), principally in the Center-South of Brazil, showed good agreement with the observed total (Fig. 5A).

The experiments also show good performance in simulating maximum and minimum temperatures. Fig. 6 shows daily minimum and maximum temperatures for January 2005 as observed at the Campo de Marte airport (SBMT) in the city of São Paulo and simulated in the experiment AS-INV. Since pollutant removal and dispersion processes are strongly affected by the behavior of the Planetary Boundary Layer (PBL), the PBL height simulated on the finest spatial resolution grid is also evaluated. The PBL height was estimated from potential temperature and humidity radio-sounding profiles conducted every 12 h at the SBMT station. In general, the simulations represented well the daily variability of the PBL. The average height simulated for the month of January was on the order of 950 m, while observed values varied between 800 and 1500 m, with an average of 1087 m.

4.2.2. Comparison of simulated CO, NOx and O₃ mixing ratios with observations in urban areas

CO and NOx mixing ratios simulated by the model were compared with observed values. In general, CO and total NOx = NO + NO₂ are little influenced by chemistry on a time scale of a few hours and are therefore good indicators for evaluation of emissions (Zárte et al., 2007). The new regional inventory clearly affected the simulated CO and NOx mixing ratios, and resulted in a significant improvement in model performance in relation to the observations (Figs. 7 and 8). In Figs. 7 and 8 the error bars represent the standard deviations of the mean observed and simulated values, which were calculated differently for each of the analyzed cities. For São Paulo the standard deviation measures the spatial variability, that is, represents the average values of all the stations in the metropolitan area. For the city of Belo Horizonte, which has only one surface station, the standard deviation represents the variability of the average hourly values.

The diurnal cycle of CO and NOx is also well represented, with maximum concentrations corresponding to the hours of most intense traffic, both in the Metropolitan Region of São Paulo and the city of Belo Horizonte. However, the removal of these species during the daytime, which is the period of maximum convective activity, was overestimated, principally during the month of October. The experiments using the original emissions showed low agreement with the observations for two primary reasons: the poor spatial representation of emissions at finer resolutions, and

Table 3
CO and NOx emission from RETRO and EDGAR global inventories and the South American local inventories (LI).

Cities	CO (Gg year ⁻¹)			NOx (Gg year ⁻¹)			
	LI	RETRO	EDGAR	LI	RETRO	EDGAR	
São Paulo	1464	1039	1215	316	112	101	Brazil
São José dos Campos	43	25	69	8	6	4	
Campinas	282	151	114	59	33	7	
Porto Alegre	196	158	82	34	32	20	
Sorocaba	53	40	46	10	4	6	
Rio de Janeiro	314	536	670	60	66	72	
Buenos Aires	569	693	459	82	83	88	Argentina
Santiago	205	463	570	47	58	50	Chile
Bogotá	459	457	351	30	32	41	Colombia

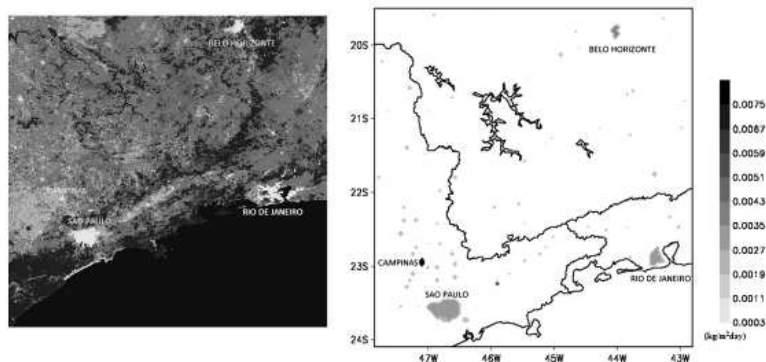


Fig. 4. Image from the sensor AVHRR/NOAA with 1 km spatial resolution, and extrapolated CO emissions ($\text{kg m}^{-2} \text{ day}^{-1}$) on the 5 km grid.

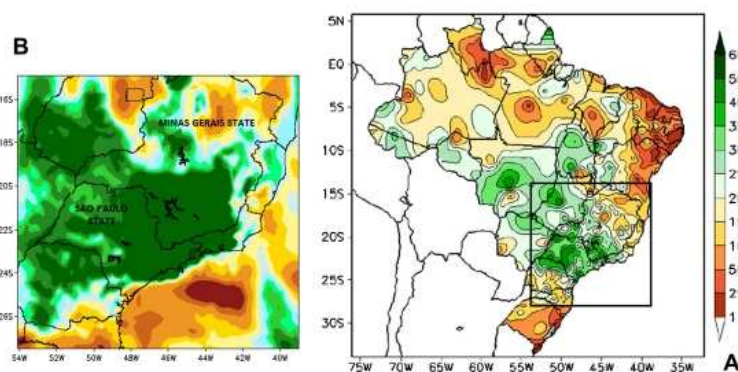


Fig. 5. Accumulated precipitation (mm) observed (Instituto Nacional de Meteorologia – INMET) [A] and simulated on the 80 km grid [B], for the month of January 2005.

underestimated emissions values. The diurnal cycle of ozone was well represented in both experiments, with maximums around 14:00 local time in the two analyzed cities. Although CO and NO_x mixing ratios are systematically underestimated in the CONTROL experiment, O₃ values are in general well represented, except for slight overestimation during the nighttime (Fig. 9).

The O₃ mixing ratios in both experiment are of the same order because of the non-linearity of the impact of NO_x on the ozone

concentration. Ambient NO_x and NMHC mixing ratios are directly related to the instantaneous rate of production of O₃, but its exact dependence varies with the assumptions and conditions used in generating the isopleth plot. With the increasing of NO_x mixing ratio above a threshold, which depends on the NMHC mixing ratio, ozone production decreases.

The comparison of observed maximums and minimums with values simulated by the experiment SA-INV, shown in Figs. 10–12,

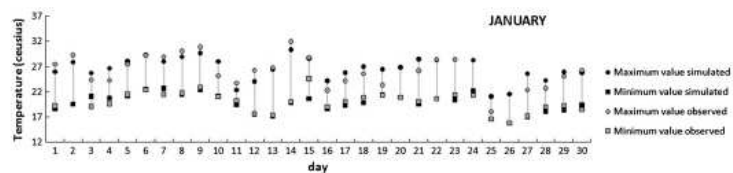


Fig. 6. Maximum and minimum observed and simulated temperatures for the month of January 2005 at the SBMT station located in the city of São Paulo.

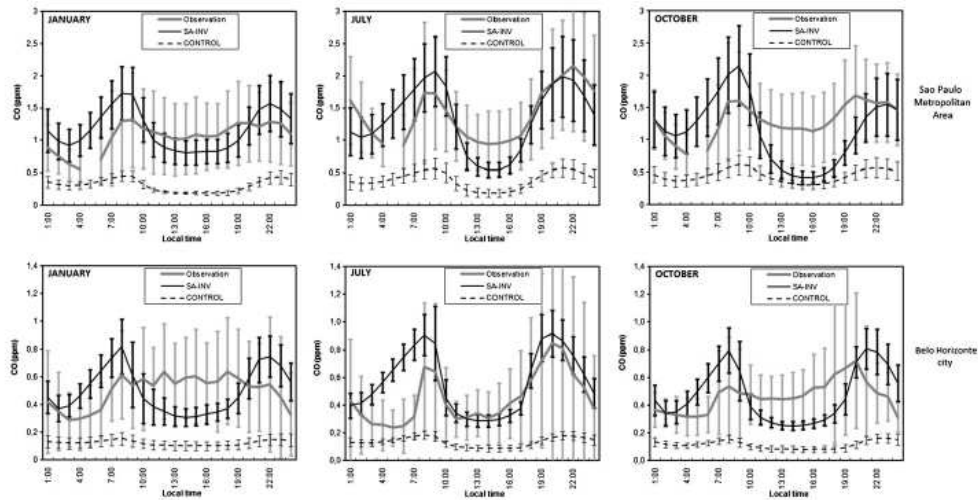


Fig. 7. Hourly average CO mixing ratios observed and simulated in the experiments CONTROL and SA-INV in the Metropolitan Region of São Paulo and in the city of Belo Horizonte.

demonstrates that the model consistently represented the daily variability of concentrations in the Metropolitan Region of São Paulo.

4.2.3. Impact of the inclusion of local emissions on the regional distribution of CO, NOx and Ozone

The addition of vehicle emissions from local South American inventories in the global database caused a significant impact on

the simulated spatial distribution of CO and NOx emissions from large urban centers and on the ozone generated from chemical reactions. The regional and global scales impact of megacities has been much discussed recently (ex. Guttikunda et al., 2003; Lawrence et al., 2007; Butler and Lawrence, 2009) and a good spatial representation of emissions is of extreme importance in the study of these impacts. Fig. 13 shows the percentage difference in

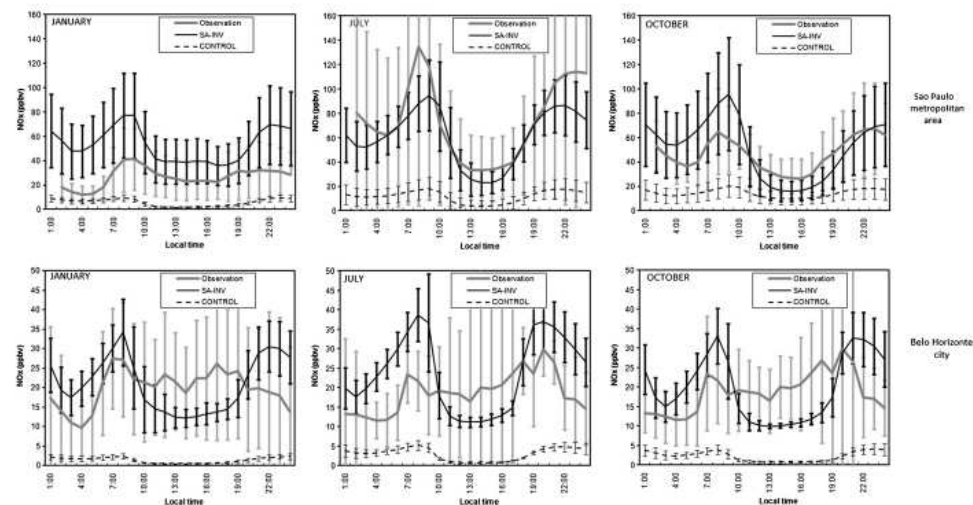


Fig. 8. Hourly average NOx mixing ratios observed and simulated in the experiments CONTROL and SA-INV in the Metropolitan Region of São Paulo and in the city of Belo Horizonte.

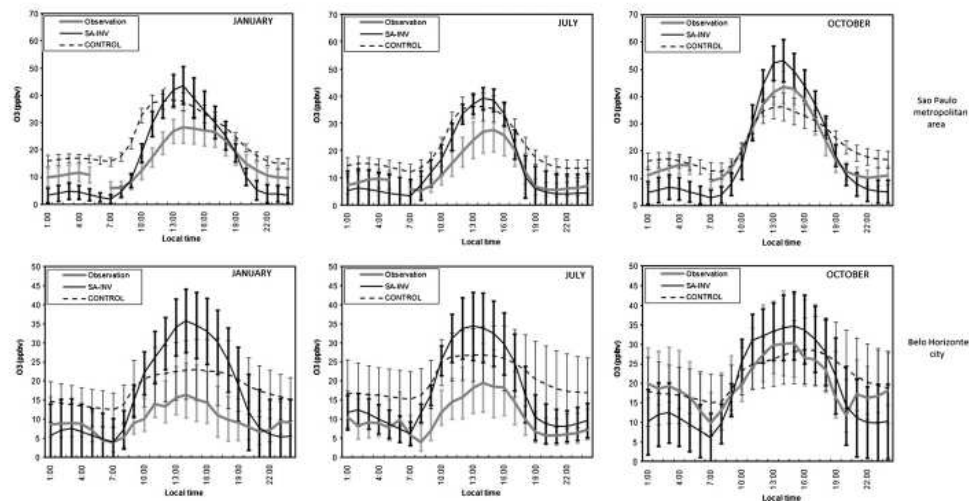


Fig. 9. Hourly average O_3 mixing ratios observed and simulated in the experiments CONTROL and SA-INV in the Metropolitan Region of São Paulo and in the city of Belo Horizonte.

the monthly average maximum concentration of CO, NO_x and ozone during peak hours for the month of October, as simulated by the experiments CONTROL and SA-INV on the 80 km grid, superimposed on the average monthly wind field. The percentage difference is more evident near the major cities of the Central,

South, and Southeast regions. The inclusion of local inventories and extrapolation to other Brazilian cities impacted the spatial distribution of CO and NO_x concentrations by more than 25% in extensive areas around the large urban centers. For O_3 , the percentage difference was most evident in the Southeast region of Brazil,

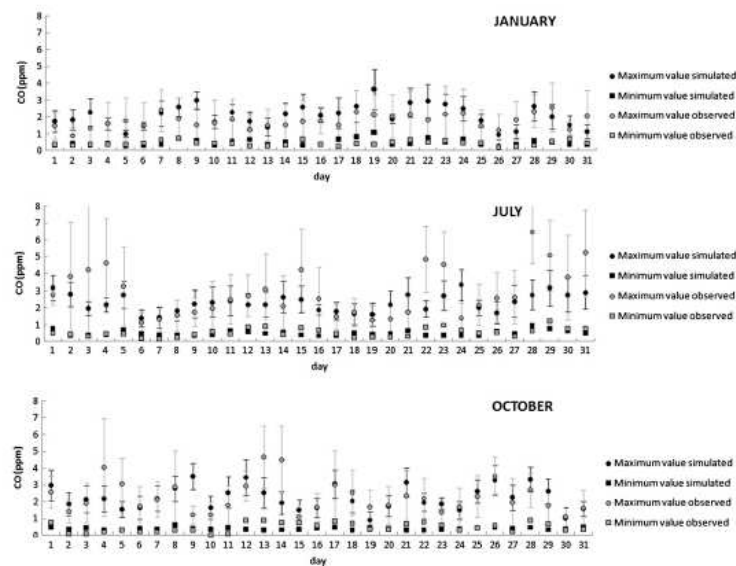


Fig. 10. Maximum and minimum daily average CO mixing ratios observed and simulated in the experiment SA-INV in the Metropolitan Region of São Paulo.

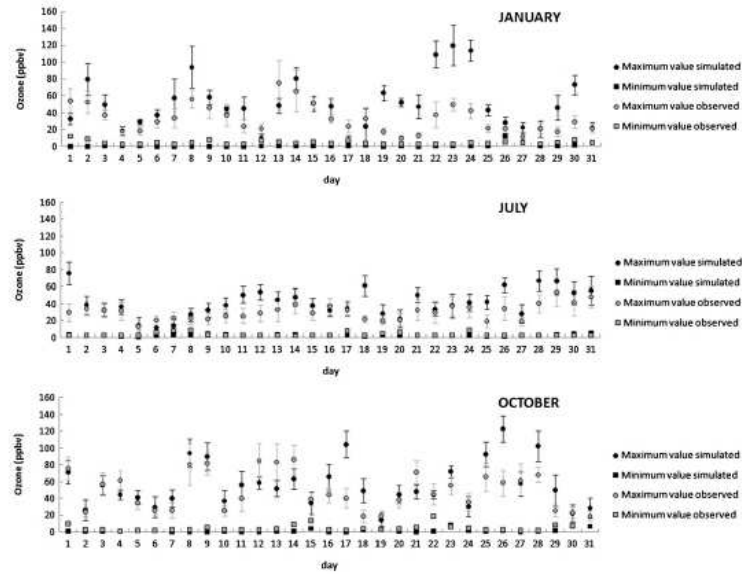


Fig. 11. Maximum and minimum daily average O_3 mixing ratios observed and simulated in the experiment SA-INV in the Metropolitan Region of São Paulo.

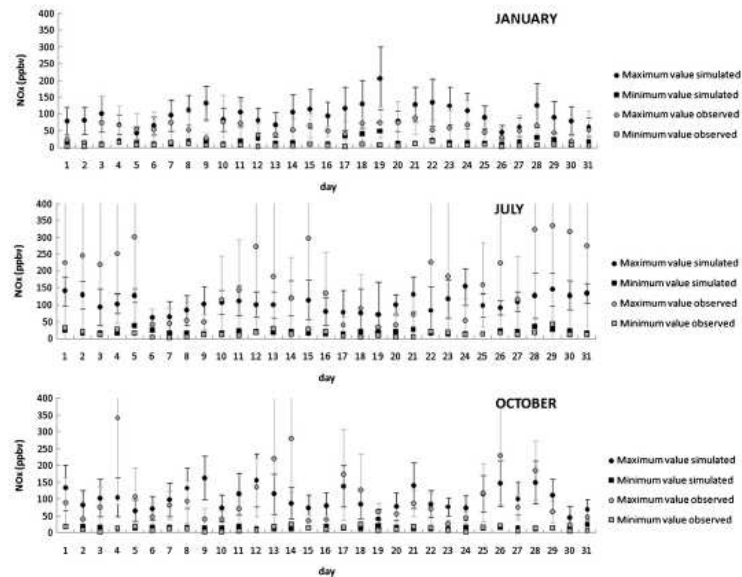


Fig. 12. Maximum and minimum daily average NO_x mixing ratios observed and simulated in the experiment SA-INV in the Metropolitan Region of São Paulo.

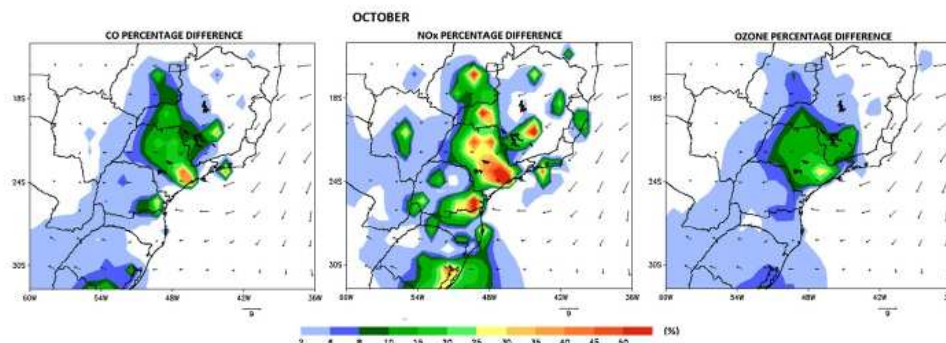


Fig. 13. Percentage difference among monthly average CO, NOx and O₃ mixing ratios in peak hours for the month of October, simulated by the experiments CONTROL and SA-INV on the 80 km grid, and the average monthly near-surface wind field in m s⁻¹.

where emissions of ozone precursors in the new inventory are significantly higher than in the RETRO and EDGAR global inventories. The patterns of percentage differences for the months of July and January were similar to those of the month of October.

5. Conclusions

In general, the global scale emissions inventories are lacking in detailed representation of local scale emissions, primarily in regions with little available data, as is the case in South America. It is therefore an important task to incorporate local inventories and data into the global databases. In the present study, a methodology is discussed for the construction of a regional inventory for the South American continent, with the aim of incorporating information from the municipal inventories in the global RETRO/EDGAR emissions maps. The first challenge lies in the low number of municipal inventories, due to the rapid urban expansion in South America. This problem was resolved by extrapolating the available information to municipalities without inventories, with the aim of constructing a more complete and consistent regional database. Vehicle emissions of CO and NOx from available local inventories were extrapolated to locations without inventories based on correlations with vehicle densities.

Nevertheless emission inventory at national level also depends upon many factors such as vehicle technology, socio-economic characteristics, transport policy etc... This information is intrinsically included in each respective local inventory. Therefore, the fitting function of the local inventories points should contain this information at least in a first approach. Also, at this stage, the extrapolation was performed only for the Brazilian cities, because of the easier data accessibility and since a reasonable homogeneity of the local characteristics is expected. Meanwhile, this work has been extended to extrapolate these data to other South American cities without inventories, and maybe some factors will have to be added in order to better represent the local characteristics for different countries.

A comparison between vehicle emissions from local and global inventories in the analyzed South American cities showed considerable differences, confirming what has been discussed in other studies.

A method for detection and analysis of the urbanized area of a city was proposed and incorporated in the emissions preprocessor of the CCATT-BRAMS model, which allowed a more precise distribution of emissions at fine resolutions. An algorithm was

applied to obtain a convex polygon based on an analysis of the urban class of a soil coverage remote sensing product, which was then used to distribute vehicle emissions. This tool is automatic and applicable at any resolution. The radius of influence prevents neighboring cities from being represented as a single area, which is extremely important in densely populated areas. This method permits the consistent use of the same emissions inventory from the local to large scale.

The results of the evaluation of the regional inventory, through analysis of CO, NOx and O₃ mixing ratios in the cities of São Paulo and Belo Horizonte, showed a significant gain in the numerical representation of the local atmospheric chemistry composition, suggesting that the updating of the global database with local inventories is essential in order to obtain a good coupling between local and regional scales. The overestimation of simulated NOx and O₃ values for January (which are summer holidays with reduced vehicle traffic in São Paulo) in the experiment AS-INV suggest the need to include monthly and weekly variability factors, influenced primarily by the patterns of urban traffic on these time scales. It is noted that for Belo Horizonte, the emissions values in the regional inventory are extrapolated, because no local inventory is available for this city. The good performance of the experiment suggests a good effectiveness of the extrapolation technique.

Regional modeling is an important tool in the analysis and prediction of the chemical composition of the atmosphere. The use of emissions databases that integrate specific information about urban centers into broader databases is shown to be relevant for a good representation of emissions in chemical weather forecasting models on local and regional scales. It is demonstrated that the inventory proposed in this work improves the performance of atmospheric chemistry simulations on the local scale and significantly affects the regional spatial distribution of tropospheric O₃ and its precursors. The tool proposed in this work enables a good distribution of emissions at various levels of detail, and can be consistently applied to a wide range of spatial resolutions. In the future, the extrapolation will be expanded to additional South American cities without inventories that were not included in this first version.

Acknowledgments

We would like to thank CETESB, FEEMA, CONAMA, FEAM and research groups at the University of Buenos Aires (A. D'Angiola and L. Dawidowski) and the University of the Andes (P. Rodriguez and E. Benhetz) for providing local emissions inventories and

observational databases. This work has been carried out with the AID of a Grant from the Inter-American Institute for Global Change Research (IAI) CNR II 2017, which is supported by the US National Science Foundation (Grant GEO-0452325). We also acknowledge partial support of this work by CNPq (485562/2007-3, 309922/2007-0 and 305059/2005-0).

References

- Abelsohn, A., Stieb, D., Sanborn, M.D., Weir, E., 2002. Identifying and managing adverse environmental health effects: 2. Outdoor air pollution. *Can. Med. Assoc. J.* 166, 1161–1167.
- Behrentz, Eduardo, Nancy, Sánchez, Magdalena, Fandiño, Paula, Rodríguez, 2009. Inventario de emisiones provenientes de fuentes fijas y móviles. Proyecto contratado por la Secretaría Distrital de Ambiente de Bogotá y Desarrollado por el Grupo de Estudios en Sostenibilidad Urbana y Regional de la Universidad de los Andes (Contrato de Ciencia y Tecnología # 347 de 2006). ISBN: 978-958-695-442-6.
- Berkowicz, R., Winther, M., Ketzel, M., 2006. Traffic pollution modelling and emission data. *Environ. Model. Software* 21, 454–460.
- Butler, T.M., Lawrence, M.G., Gurjar, B.R., Van Aardenne, J., Schultz, M., Lelieveld, J., 2008. The representation of emissions from megacities in global emission inventories. *Atmos. Environ.* 42, 703–719.
- Butler, T.M., Lawrence, M.G., 2009. The influence of megacities on global atmospheric chemistry: a modeling study. *Environ. Chem.* 6, 219–225. doi:10.1071/ENR110.
- Companhia Ambiental do Estado de São Paulo (CETESB), 2005. Relatório de Qualidade do ar no Estado de São Paulo. Report Series/Secretaria de Estado do Meio Ambiente, ISSN 0103-4103, 140 pp. <http://www.cetesb.sp.gov.br>.
- Corvalán, R., Osses, M., Urrutia, C., 2002. Hot emission model for mobile sources: application to the metropolitan region of the city of Santiago, Chile. *J. Air Waste Manage. Assoc.* ISSN: 1047-3289 52 (2), ISSN: 1047-3289, 167–174.
- D'Angiola, A., Dawidowski, L., Gomez, D.R., Osses, M., 2009. On-road traffic emissions in a megacity. *Atmos. Environ.* doi:10.1016/j.atmosenv.2009.11.004.
- Dentener, F., Stevenson, D., Cofala, J., Mechler, R., Amann, M., Bergamaschi, P., Raes, F., Derwent, R., 2005. The impact of air pollutant and methane emission controls on tropospheric ozone and radiative forcing: CTM calculations for the period 1990–2030. *Atmos. Chem. Phys.* 5, 1731–1755.
- DICTUC, 2007. Actualización del inventario de emisiones de contaminantes atmosféricos en la RM 2005. Informe Final Comisión Nacional del Medio Ambiente. Available at: http://www.conama.cl/inv/568/articles-41184_Dictuc0ActualizaforFinal.pdf (in Spanish) (accessed July 2010).
- Djouad, R., Sportisse, B., Audiffren, N., 2002. Numerical simulation of aqueous-phase atmospheric models: use of a non-autonomous Rosenbrock method. *Atmos. Environ.* 36 (5), 873–879.
- Endresen, O., Sørgård, E., Sundet, J.K., Dalsøren, S.B., Isaksen, I.S.A., Berglen, T.F., Grønvik, G., 2003. Emissions from international sea transport and environmental impact. *J. Geophys. Res.* 108 (D17), 4560. doi:10.1029/2002JD002898.
- EPA (The United States Environmental Protection Agency), 1995. Compilation of air pollutant emission factors, AP-42. In: Stationary Point and Area Sources, fifth ed., vol. 1. United States Environment Protection Agency, Office of Air Quality Planning and Standards, Research Triangle Park, NC.
- Fundação Estadual de Engenharia do Meio Ambiente (FEEMA), 2004. Inventario de fontes emissoras de poluentes atmosféricos na região metropolitana do Rio de Janeiro.
- Freitas, S.R., Longo, K.M., Silva Dias, M., Silva Dias, P., Chatfield, R., Prins, E., Artaxo, P., Grell, G., Recuero, F., 2005. Monitoring the transport of biomass burning emissions in South America. *Environ. Fluid Mechanics* 5 (1–2), 135–167. doi:10.1007/s10652-005-0243-7.
- Freitas, S.R., Longo, K.M., Silva Dias, M.A.F., Chatfield, R., Silva Dias, P., Artaxo, P., Andreae, M.O., Grell, G., Rodrigues, L.F., Fazenda, A., Panetta, J., 2009. The coupled aerosol and tracer transport model to the Brazilian developments on the regional atmospheric modeling system (CATT-BRAMS) – part 1: model description and evaluation. *Atmos. Chem. Phys.* 9, 2843–2861.
- Freitas, S.R., Longo, K.M., Alonso, M.F., Pirre, M., Marecal, V., Grell, G., Stockler, R., Mello, R.F., Sánchez Gácita, M., 2010. A preprocessor of trace gases and aerosols emission fields for regional and global atmospheric chemistry models. *Geosci. Model. Dev. Discuss.* 3, 855–888. doi:10.5194/gmdd-3-855-2010.
- Fundación Bariloche, 2005. Inventario Nacional de la República Argentina de fuentes de emisiones y absorciones de gases de efecto invernadero no controlados por el Protocolo de Montreal, Inventario correspondiente al año 2000 y revisión de los inventarios 1990, 1994 y 1997. Buenos Aires, Argentina.
- Graham, R.L., 1972. An efficient algorithm for determining the convex hull of a finite planar set. *Inf. Process. Lett.* 1, 132–133.
- Gurjar, B.R., van Aardenne, J.A., Lelieveld, J., Mohan, M., 2004. Emissions estimates and trends (1990–2000) for megacity Delhi and implications. *Atmos. Environ.* 38, 5663–5681.
- Guttikunda, S.K., Carmichael, G.R., Calori, G., Eck, C., Woo, J.H., 2003. The contribution of megacities to regional sulfur pollution in Asia. *Atmos. Environ.* 37, 11–32.
- Hairer, E., Wanner, G., 1991. Solving Ordinary Differential Equations II. Stiff and Differential-Algebraic Problems. Springer-Verlag, Berlin.
- Josse, B., Simon, P., Peuch, V.-H., 2004. Radon global simulations with the multiscale chemistry and transport model MOCAGE. *Tellus B* 56, 339–356.
- Lawrence, M.G., Butler, T.M., Steinkamp, J., Gurjar, B.R., Lelieveld, J., 2007. Regional pollution potentials of megacities and other major population centers. *Atmos. Chem. Phys.* 7, 3969–3987.
- Longo, K.M., Freitas, S.R., Setzer, A., Prins, E., Artaxo, P., Andreae, M., 2007. The coupled aerosol and tracer transport model to the Brazilian developments on the regional atmospheric modeling system (CATT-BRAMS). Part 2: model sensitivity to the biomass burning inventories. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* 8, 8571–8595.
- Longo, K.M., Freitas, S.R., Pirre, M., Marecal, V., Rodrigues, L.F., Alonso, M., Mello, R., 2008. The Chemistry-CATT-BRAMS model: a new efficient tool for atmospheric chemistry studies at local and regional scales. *Geosci. Model. Dev.*, in preparation.
- Ntziachristos, L., Samaras, Z., 2000. COPERT III Computer Programme to Calculate Emissions from Road Transport, Methodology and Emission Factors (Version 2.1). European Environment Agency ETC/AEM Technical report No 49.
- Olivier, J.G.J., Berdowski, J.J.M., 2001. Global emissions sources and sinks. In: Berdowski, J., Guicherit, R., Heij, B.J. (Eds.), *The Climate System*. A.A. Balkema Publishers/Swets & Zeitlinger Publishers, Lisse, The Netherlands, ISBN 90 5809 255 0, pp. 33–78.
- Ponche, J.L., Vinuesa, J.F., 2004. Emission scenarios for air quality management and applications at local and regional scales including the effects of the future European emission regulation (2015) for the upper Rhine valley. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* 4, 8539–8577.
- Reynolds, A.W., Broderick, B.M., 2000. Development of an emissions inventory model for mobile sources. *Transp. Res. Part D* 5, 77–101.
- Schneider, C.H., Kessler, C.H., Moussiopoulos, N., 1997. Influence of emission input data on ozone level predictions for the upper Rhine valley. *Atmos. Environ.* 31, 3187–3205.
- Seinfeld, J., Pandis, S., 1998. *Atmospheric Chemistry and Physics*. John Wiley & Sons Inc., New York.
- Snyder, J.M., Barr, A.H., 1987. Ray tracing complex models containing surface tessellations. *Comput. Graphics* 21 (4), 119–126.
- Stockwell, W.R., Kirchner, F., Kuhn, M., Seefeld, S., 1997. A new mechanism for regional atmospheric chemistry modeling. *J. Geophys. Res.* 102 (D22), 25847–25879.
- Taghavi, M., Cautenet, S., Arteta, J., 2005. Impact of a high resolution emission inventory on modeling accuracy. *Atmos. Res. (Special Issue ESCOMPTE)* 74, 65–88.
- Teixeira, E.C., Feltes, S., Santana, E.R., 2008. Estudo das emissões de fontes móveis na região metropolitana de Porto Alegre, Rio Grande do Sul. *Quim. Nova* 31 (2), 244–248.
- Teyssède, H., Michou, M., Clark, H.L., Josse, B., Karcher, F., Olivie, D., Peuch, V.-H., Saint-Martin, D., Cariolle, D., Attié, J.-L., Nédélec, P., Ricaud, P., Thourlet, V., van der, A.R.J., Volz-Thomas, A., Chéroux, F., 2007. A new tropospheric and stratospheric chemistry and transport model MOCAGE-Climat for multi-year studies: evaluation of the present-day climatology and sensitivity to surface processes. *Atmos. Chem. Phys.* 7, 5815–5860.
- Tie, X., Madronich, S., Walters, S., Zhang, R., Rasch, P., Collins, W., 2003. Effect of clouds on photolysis and oxidants in the troposphere. *J. Geophys. Res.* 108 (D20), 4642.
- United Nations Population Fund (UNFPA), 2007. Situação da População Mundial 2007: Desencadeando o Potencial do crescimento Urbano. Fundo de População das Nações Unidas, 180 pp.
- Wesely, M.L., 1989. Parameterizations of surface resistance to gaseous dry deposition in regional scale numerical models. *Atmos. Environ.* 23, 1293–1304.
- Zárate, E., Belalcázar, L.C., Clappier, A., Manzi, V., Bergh, H.V.D., 2007. Air quality modelling over Bogotá, Colombia: combined techniques to estimate and evaluate emission inventories. *Atmos. Environ.* 41, 6302–6318.

PREP-CHEM-SRC - 1.0: a preprocessor of trace gas and aerosol emission fields for regional and global atmospheric chemistry models

S. R. Freitas¹, K. M. Longo², M. F. Alonso¹, M. Pirre³, V. Marecal⁴, G. Grell⁵, R. Stockler¹, R. F. Mello¹, and M. Sánchez Gacita¹

¹Center for Weather Forecasting and Climate Studies, INPE, Cachoeira Paulista, Brazil

²Earth System Science Center, INPE, São José dos Campos, Brazil

³Laboratoire de Physique et Chimie de l'Environnement et de l'Espace, CNRS-Université d'Orléans, Orléans, France

⁴Centre National de Recherches Météorologique/Groupe d'étude de l'Atmosphère Météorologique, Météo-France and CNRS, Toulouse, France

⁵Cooperative Institute for Research in Environmental Sciences (CIRES) and NOAA Earth Systems Research Laboratory (ESRL), USA

Received: 24 May 2010 – Published in Geosci. Model Dev. Discuss.: 23 June 2010

Revised: 12 April 2011 – Accepted: 5 May 2011 – Published: 10 May 2011

Abstract. The preprocessor PREP-CHEM-SRC presented in the paper is a comprehensive tool aiming at preparing emission fields of trace gases and aerosols for use in atmospheric chemistry transport models. The considered emissions are from the most recent databases of urban/industrial, biogenic, biomass burning, volcanic, biofuel use and burning from agricultural waste sources. For biomass burning, emissions can be also estimated directly from satellite fire detections using a fire emission model included in the tool. The preprocessor provides emission fields interpolated onto the transport model grid. Several map projections can be chosen. The inclusion of these emissions in transport models is also presented. The preprocessor is coded using Fortran90 and C and is driven by a *namelist* allowing the user to choose the type of emissions and the databases.

1 Introduction

Atmospheric chemistry composition studies with numerical simulations are widely conducted due to the increasing availability of atmospheric chemistry transport models and computational resources. Emission inventories of trace gases and aerosols provide surface as well as upper level mass fluxes

for the mass continuity equation (MCE), which are crucial needed information for these numerical studies. To provide this information, several international programs and groups have been developing emission inventories of the most relevant primary atmospheric trace gases and aerosols. For example, we can cite the Global Fire Emissions Database (GFED, van der Werf et al., 2006) for biomass burning and the "REanalysis of the TROpospheric chemical composition over the past 40 yr" (RETRO, <http://retro.enes.org>) for urban emissions. The numerical simulation of atmospheric chemistry composition is done with advanced models where the MCE is solved on- or off-line (Zhang, 2008) with several spatial resolutions and geographical projections, on either regional or global scales. In this paper, we introduce a software tool, named PREP-CHEM-SRC, version 1.0, developed to provide gridded emissions of trace gases and aerosols with a flexible spatial resolution, several projections and suitable for regional and global models. Emission fields generated by this system have been used with CCATT-BRAMS (Freitas et al., 2009; Longo et al., 2011), WRF-CHEM (Grell et al., 2006), and the Flow-following finite-volume Icosahedral Model (FIM, Bleck et al., 2010). The emission preprocessor was also implemented for use with the Brazilian Center for Weather Forecasting and Climate Studies (CPTEC) global circulation model.

This paper is organized as follows. Section 2 covers all available inventories of emissions from anthropogenic and biogenic sources as well as the chemical species available in



Correspondence to: S. R. Freitas
(sauro.freitas@cpetc.inpe.br)

the database of this software tool. In Sect. 3, we briefly describe a possible way to introduce the emission contribution in the MCE. Section 4 describes the system and its functionalities. Our conclusions are discussed in Sect. 5.

2 Emission inventories

This section is devoted to describe all types of emissions currently available within the PREP-CHEM-SRC system. This covers emissions of gases and aerosols from urban/industrial, biogenic, biomass burning, volcanic sources and from biofuel use and burning of agricultural waste. For urban/industrial and biogenic emissions from several databases are available and may be chosen by the user. For biomass burning, it is possible to use the Global Fire Emissions Database with a 8 days or a one month resolution or the Brazilian biomass burning emission model tool (Longo et al., 2010). This model provides emissions with very high temporal and spatial resolutions from satellite fire detection. Volcanic emissions include ashes for erupting periods and SO_2 degassing for both eruptive and non-eruptive periods.

Depending on the modeling system the user may select all emission options (anthropogenic, biogenic, biomass burning, etc) or select only part of the entire available set. WRF-CHEM, for example, has several other emission preprocessors, depending on the location of the domain in which the model will be run. The user may choose to combine his or her own anthropogenic emission preprocessor with only the biomass burning emissions from our system.

2.1 Urban-industrial emissions

For the urban/industrial emissions, three alternative emission datasets are available, which include different time horizons, resolutions and set of species.

One of the anthropogenic emission inventories used within the PREP-CHEM-SRC system is provided by the "REanalysis of the Tropospheric chemical composition over the past 40yr" (RETRO, <http://retro.enes.org>), a long-term global modeling study of tropospheric chemistry funded by the 5th European Commission Framework Programme. The emission data has a $0.5^\circ \times 0.5^\circ$ spatial resolution and global coverage, with monthly temporal resolution, and is based on the year 2000. The emission units are $\text{kg}[\text{species}] \text{m}^{-2} \text{dy}^{-1}$. The Table 1 provides a list of chemical species available in the anthropogenic inventory.

The second database proposed for anthropogenic emissions is provided by the "Emission Database for Global Atmospheric Research" (EDGAR, <http://edgar.jrc.ec.europa.eu>, Olivier et al., 1996, 1999). This program provides past and present global anthropogenic emissions of greenhouse gases and air pollutants. The available species are N_2O , CO_2 , CO , CH_4 , SO_2 , SF_6 , NO_x and NMVOC with a $1^\circ \times 1^\circ$ spatial resolution. The emissions do not vary in time and are

based on the year 2000. A recently released new version of EDGAR, version 4, will be included in the database of the PREP-CHEM-SRC system in an upcoming version.

Additionally, for the South American continent, a regional urban emission inventory suitable either for local and regional scale applications is also available. This database integrates information from local vehicle emission inventories using socio-economic data, extrapolation of emissions for cities lacking local inventories, and the geographic distribution of emissions at different spatial resolutions (Alonso et al., 2010).

For aerosols, emissions of organic carbon (OC), black carbon (BC), SO_2 and DMS at a $1^\circ \times 1^\circ$ resolution on a monthly basis from the Goddard Chemistry Aerosol Radiation and Transport (GOCART) model database are provided.

2.2 Biogenic emissions

2.2.1 Biogenic emissions from GEIA Activity

The first database proposed for biogenic or natural emissions is the GEIA/ACCENT Activity on Emission Databases, <http://www.aero.jussieu.fr/projet/ACCENT/description.php>. Emission sources from land, vegetation and oceans are provided with a $1^\circ \times 1^\circ$ spatial resolution and monthly temporal resolution. Emissions for Acetone, C_2H_4 , C_2H_6 , C_3H_8 , CO , CH_3OH , DMS, NO , Isoprene, Terpenes and NMVOC are available. The emission units are $\text{kg}[\text{species}] \text{m}^{-2} \text{dy}^{-1}$.

2.2.2 Biogenic emissions from MEGAN

The alternative biogenic emission database is derived by the Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature (MEGAN, Guenther et al., 2006). MEGAN is a modeling system for estimating the net emission of gases and aerosols from terrestrial ecosystems into the atmosphere. Driving variables used by MEGAN to calculate the fluxes include land cover, weather, and atmospheric chemical composition. The data was provided by the GEIA/ACCENT Activity on Emission Databases, <http://www.aero.jussieu.fr/projet/ACCENT/description.php>. The data covers the entire world with a $0.5^\circ \times 0.5^\circ$ spatial resolution. The temporal coverage is from January to December 2002 with a monthly time resolution. Emission rates are provided for the following species: CO , CH_4 , C_2H_4 , C_2H_6 , C_3H_8 , CH_3OH , Formaldehyde, Acetaldehyde, Acetone, other Ketones, Toluene, Isoprene, Monoterpenes and Sesquiterpenes. The emission units are $\text{kg}[\text{species}] \text{m}^{-2} \text{dy}^{-1}$.

2.3 Biomass burning emissions and the smoke plume rise model

Emissions from wild- or deforestation fires are provided using two methodologies.

Table 1. List of chemical species available in the anthropogenic inventory developed by the RETRO program.

Acids	C ₄ H ₁₀	Ethene	Other Aromatics
Alcohols	C ₅ H ₁₂	Ethers	Other VOC
Benzene	C ₆ H ₁₄ .plus.higher.alkanes	Ethyne	Toluene
C ₂ H ₂	Chlorinated Hydrocarbons	Ketones	Trimethylbenzene
C ₂ H ₄	CO	Methanal	Xylene
C ₂ H ₆	Esters	NO _x	
C ₃ H ₈	Ethane	Other Alkanals	

2.3.1 Brazilian biomass burning emission model

The first option is based on the Brazilian Biomass Burning Emission Model (SBEM, Longo et al., 2010) which is included in this software tool. In this methodology, for each fire pixel detected by remote sensing, the mass of the emitted tracer is calculated by the following expression, which takes into consideration the estimated values for the amount of above-ground biomass available for burning (α), the combustion factor (β), the emission factor (EF) for a certain species (η) from the appropriate vegetation type, and the burning area (a_{fire}) for each burning event.

$$M^{(\eta)} = \alpha_{\text{veg}} \cdot \beta_{\text{veg}} \cdot \text{EF}_{\text{veg}}^{(\eta)} \cdot a_{\text{fire}} \quad (1)$$

In this model, a hybrid remote-sensing fire product is used to minimize missing remote sensing observations. The fire database actually used is a combination of the Geostationary Operational Environmental Satellite - Wildfire Automated Biomass Burning Algorithm (GOES WFABBA) product (cimss.ssec.wisc.edu/goes/burn/wfabba.html; Prins et al., 1998), the Brazilian National Institute for Space Research (INPE) fire product, which is based on the Advanced Very High Resolution Radiometer (AVHRR) aboard the NOAA polar orbiting satellites series (www.cptec.inpe.br/queimadas; Setzer and Pereira, 1987), and the Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS) fire product (modis-fire.umd.edu; Giglio et al., 2003). The three fire product databases are combined using a filter algorithm to avoid double counting of the same fire, by eliminating additional fires within a circle with a radius of 1 km. The burnt area of fires detected in the GOES WFABBA product is estimated from the instantaneous fire size for each non-saturated and non-cloudy fire pixel, from which it is possible to retrieve sub-pixel fire characteristics. For GOES WFABBA detected fires that have no information about the instantaneous fire size, a mean instantaneous fire size of 0.14 km² (calculated from the GOES ABBA database of the previous years) is used. For fires detected by the MODIS and AVHRR systems, a mean value of 0.22 km² of burnt area is used (Longo et al., 2010).

The fire detection maps with latitude and longitude are merged with 1 km resolution land cover data (Belward, 1996,

Sestini et al., 2003) to provide the associated emission (EF) and combustion (β) factors through a look-up table. The corresponding aboveground carbon density (α) is defined from the carbon in live vegetation data, estimated using Olson et al. (2000) and updated by Gibbs (2006) and Gibbs et al. (2007) using the Global Land Cover Database (GLC2000). For the Amazon basin and neighboring areas, the estimation of aboveground carbon density done by Saatchi et al. (2007) with 1 km spatial resolution is used. The land cover map for the Amazon basin was updated with data provided by the PROVEG project (Sestini et al., 2003) and it is based on the year 2000.

The emission and combustion factors for each biome are based on Andreae and Merlet (2001) and Longo et al. (2009). In particular, Andreae and Merlet (2001) provides emission factors for 110 chemical species emitted during burning of tropical forest, extratropical forest, savanna, pasture, charcoal production and agricultural waste, as well as emission factors measured in controlled laboratory experiments. The mean combustion factor for each biome cited above is also provided. See Table 2 for a complete list of species available within the PREP-CHEM-SRC system.

The total emitted mass of each chemical species per grid box is calculated by summing the individual mass (given by Eq. 1) over all fires in that grid box. The emission units are kg[species] m⁻² dy⁻¹.

2.3.2 The Global Fire Emissions Database

The second methodology available for biomass burning emissions is based on Giglio et al. (2006) and van der Werf et al. (2006). These authors use burnt-area estimates from remote sensing, a biogeochemical model, and emission factors from the literature to estimate fire emissions during the 8-yr period from 1997 to 2004. This dataset, called the Global Fire Emissions Database (GFEDv2), has a 1° × 1° spatial resolution and a 8-day or one-month temporal resolution. In this case, the GFEDv2 emissions are interpolated to the model grid and the same list of species described in the Table 2 is available. The emission units are kg[species] m⁻² dy⁻¹.

Figure 1 illustrates the typical output of the PREP-CHEM-SRC system for biomass burning. It shows the spatial

Table 2. List of species available within the PREP-CHEM-SRC system for biomass burning emissions.

CO ₂	<i>n</i> _butane	<i>n</i> _hexane	Butanols
CO	<i>i</i> -butane	isohexanes	cyclopentanol
CH ₄	1_pentene	heptane	phenol
NHMC	2_pentene	octenes	Formaldehyde
C ₂ H ₂	<i>n</i> _pentane	terpenes	Acetald
C ₂ H ₄	2_Me_Butene	benzene	Hydroxyacetaldehyde
C ₂ H ₆	2_Me_butane	toluene	Acrolein
C ₃ H ₄	pentadienes	xylene	Propanal
C ₃ H ₆	Isoprene	ethylbenzene	Butanals
C ₃ H ₈	cyclopentene	styrene	Hexanals
1_butene	cyclopentadiene	PAH (polycyclic aromatic hydrocarbons)	Heptanals
<i>i</i> -butene	4_me_1_pentene	Methanol	Acetone
tr_2_butene	2_me_1_pentene	Ethanol	2_Butanone
cis_2_butene	1_hexene	1_Propanol	2_3_Butanedione
butadiene	hexadienes	2_propanol	Pentanones
Hexanones	Acrylonitrile	NH ₃	Heptanones
Heptanones	Propionitrile	HCN	Octanones
Octanones	pyrrole	cyanogen	Benzaldehyde
Benzaldehyde	trimethylpyrazole	SO ₂	Furan
Furan	methylamine	DMS	H ₂
2_Me_Furan	dimethylamine	COS	NO _x
3_Me_Furan	ethylamine	CH ₃ Cl	NO _y
2_ethylfuran	trimethylamine	CH ₃ Br	N ₂ O
2,4_dime_furan	<i>n</i> _pentylamine	CH ₃ I	benzofuran
2,5_Dime_furan	2_me_1_butylamine	Hg	Propanoic
Tetrahydrofuran	PM _{2.5} (particulate matter < 2.5 mm diameter)	TC (total carbon)	OC (organic carbon)
2,3_dihydrofuran	BC (black carbon)	TPM (total particulate matter)	

biomass burning CO emission estimation ($\text{mg m}^{-2} \text{dy}^{-1}$) generated using this emission tool averaged over 3 months (August–September–October 2002) at a 35 km horizontal spatial resolution. Panel (a) shows the estimation obtained by 3BEM, and in panel (b) GFEDv2 is shown. These two biomass burning emission inventories show general agreement, with most of the emissions being located in the area around latitude 10° S between longitude 67° W and 50° W, on the border between the Amazon forest and the main area of intense land use and land cover change for cropland and pasture. Nevertheless, there are strong disagreements in some places (especially in the west side of SA). The choice of the database really depends on the application. For example, 3BEM is more suitable for chemical weather studies, since its spatial resolution can be as fine as the pixel size of

the satellite sensor used for the fire detection, has a temporal resolution of one day or less, and also due to the fact that the emissions are placed only in regions where fires were in fact observed (Longo et al., 2010).

PREP-CHEM-SRC also provides the data needed to drive the smoke plume rise model described in Freitas et al. (2006, 2007, 2010). This plume rise parameterization has been incorporated in the CCATT-BRAMS, WRF-CHEM and FIM models, and is used to interactively determine the effective injection height of vegetation fires emissions during the flaming phase. The information comprises the mean fire size per biome type and per grid box as well as the partition of trace gases and aerosol mass emitted during the flaming and smoldering phases.

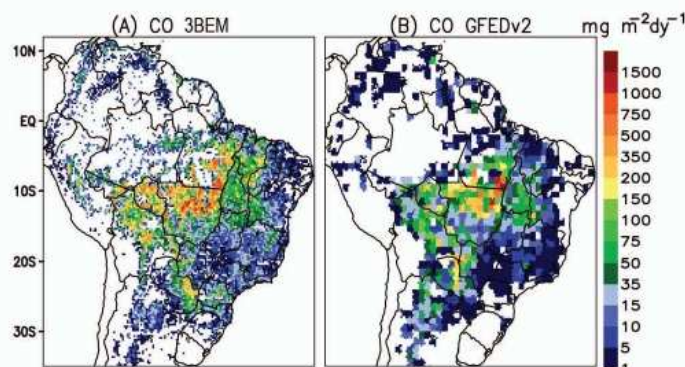


Fig. 1. Spatial distribution of the CO emission estimations in $\text{mg m}^{-2} \text{dy}^{-1}$ averaged over 3 months (August–September–October 2002) from the two biomass burning inventories available within the PREP-CHEM-SRC system: (A) 3BEM, (B) GFEDv2. (Figure adapted from Longo et al., 2009).

2.4 Volcanic emissions

2.4.1 Volcanic eruption

During volcanic eruption, volcanic ash transport and dispersion models are used to forecast the location and movement of ash clouds over hours to days. To determine ash emission fields during these events, the PREP-CHEM-SRC system uses the database developed by Mastin et al. (2009). This database provides a set of parameters to model volcanic ash cloud transport and dispersion during eruptions. There is information on 1535 volcanoes around the world comprising location (latitude, longitude and height) and the corresponding parameters plume height, mass eruption rate, volume rate, duration of eruption and the mass fraction of erupted debris finer than about $63 \mu\text{m}$ are provided. The emission tool provides the place of the volcano in the nearest model grid box and the corresponding emission parameters (mass eruption rate, plume height and time duration). To the user is left the work to implement the vertical distribution of the erupted mass within the atmospheric transport model. Within our modeling transport system, 75 % of the erupted mass is detrained in the umbrella cloud and 25 % beneath. The base of the umbrella cloud is roughly located at 73 % of the plume height (P. Webley, personal communication, 2009).

2.4.2 Volcanic SO_2 degassing emissions

The data provided by the AEROCOM program (http://www-lscedods.cea.fr/aerocom/AEROCOM_HC/volc/, Diehl, 2009; Diehl et al., 2011) contains volcanic SO_2 emissions and other variables for all days from 1 January 1979 to 31 December 2007 for all volcanoes with historic eruptions

listed in the Global Volcanism Program database provided by the Smithsonian Institution. There is one file for each year which contains the number of events for each day of that year over the entire world. For each event the volcano name, date, height above the mean sea level, cloud column height, longitude, latitude and daily emission rate of SO_2 are provided. There is also a separation between eruptive and non-eruptive volcanic emissions.

PREP-CHEM-SRC places the emission from each volcano in the grid box which surrounds its geographical location. The total emission is calculated by summing the emissions of all volcanoes within the grid cell. Next, the total emission and the minimum and maximum column heights of the set of volcanoes within the grid cell are provided. The units are $\text{kg}[\text{SO}_2] \text{m}^{-2} \text{dy}^{-1}$.

2.5 Emissions from biofuel use and burning of agricultural waste

In addition to biomass burning emissions, biofuel use and agricultural waste burning inventories developed by Yevich and Logan (2003) are also available. This inventory covers the developing world with a $1^\circ \times 1^\circ$ spatial resolution, and provides the amount of biomass burned annually per grid box in units of Tg dry matter. This information is uniformly converted to daily biomass burned and then used to calculate emissions of chemical species using the Andreae and Merlet (2001) emission factors.

3 Including emissions in a transport model

In this section we discuss how to include emissions in atmospheric chemistry transport models.

The advective form of the mass continuity equation, after Reynolds decomposition and neglecting molecular diffusion, reads (e.g., Seinfeld and Pandis, 1998)

$$\frac{\partial \bar{s}_\eta}{\partial t} + \underbrace{\bar{u}_i \frac{\partial \bar{s}_\eta}{\partial x_i}}_{\text{I}} + \underbrace{\frac{1}{\bar{\rho}} \frac{\partial (\bar{\rho} s''_\eta u''_i)}{\partial x_i}}_{\text{II}} = \underbrace{\bar{Q}_\eta}_{\text{III}}, \quad (2)$$

where $\bar{s}_\eta$ is the grid box mean tracer mass mixing ratio of species η , term (I) represents the 3-D resolved transport term (advection by the mean wind, given by $\bar{u}_i$), term (II) is the subgrid scale transport by the unresolved flows ($s''_\eta u''_i$ are the turbulent fluxes) and (III) is the forcing, respectively. The quantity $\bar{\rho}$ is the grid box mean of the dry air density. The forcing is normally split in sink (R), emission (E) and the net production or loss by additional physical and/or chemical processes (PL):

$$\bar{Q}_\eta = R + E + \text{PL}, \quad (3)$$

Here our focus is how to determine the emission (E) in terms of the mass fluxes described in Sect. 2.

3.1 Cold/low buoyancy emissions

Most of the emissions from urban processes, transportation (over the land and ocean), charcoal production, waste agricultural burning, biogenic, and others, typically have low buoyancy compared with the environment, since they are released into the atmosphere near the surface. For this kind of emission, with a prescribed flux (F_η , with units $\text{kg}[\eta] \text{m}^{-2} \text{dy}^{-1}$) given by the corresponding inventories, the contribution to the mixing ratio tendency ($\text{kg}[\eta] \text{kg}[\text{air}]^{-1} \text{dy}^{-1}$) for a tracer η can be expressed as

$$\bar{E}_\eta(k) = \begin{cases} \frac{F_\eta}{\bar{\rho}(k_1) \Delta z_1}, & k = 1 \text{ (surface)} \\ 0, & k > 1 \text{ (above)} \end{cases}, \quad (4)$$

where Δz_1 is the vertical thickness of the first physical model layer where the tracer η will be released and k denotes the vertical layer. If the emission source is located above the first model vertical layer, as would be the case for tall chimneys with a height greater than the thickness of this layer, Eq. (4) must be changed accordingly. The unit of the emission rate $\bar{E}_\eta$ in Eq. (4) is $\text{kg}[\eta] (\text{kg}[\text{air}] \text{dy})^{-1}$. To express the emission rate per second instead of per day, the user has two choices. If the diurnal cycle of the process that is emitting the tracer is constant, Eq. (4) must be divided by 86400 s dy^{-1} . However, several processes release tracers at non-homogenous rates during the day. Consequently, the user should develop a diurnal cycle function $r(t)$ which obeys the following constraint

$$\int_0^{86400} r(t) dt = 1, \quad (5)$$

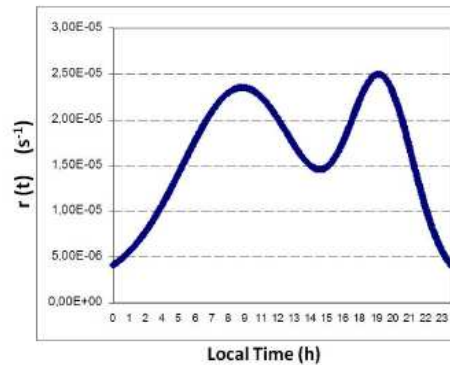


Fig. 2. A double Gaussian function used to determine the diurnal cycle of urban emission.

In this case, the instantaneous emission rate will be given by

$$\bar{E}_\eta(k, t) = \begin{cases} \frac{F_\eta}{\bar{\rho}(k_1) \Delta z_1} r(t), & k = 1 \text{ (surface)} \\ 0, & k > 1 \text{ (above)} \end{cases}, \quad (6)$$

with units of $\text{kg}[\eta] (\text{kg}[\text{air}] \text{s})^{-1}$. For emissions from mobile sources in urban areas, $r(t)$ could, for example, be represented by a double Gaussian function with one peak in the morning and another one in the late afternoon, representing the typical rush hours in the cities, as illustrated in Fig. 2. In case of a constant daily emission, $r(t)$ is simply given by $1/86400$.

3.2 Hot/high buoyancy emissions

One important example of hot and high buoyancy emissions are those from vegetation fires. This process emits hot gases and particles which are quickly transported upward due to the positive buoyancy produced by the combustion. The entire fire process can be split in two main phases:

- smoldering with most of the emission released just above the surface,
- flaming with most of the emission directed injected in the PBL, free troposphere or even stratosphere.

In the methodology proposed by Freitas et al. (2006, 2007, 2010), a 1-D plume rise model is embedded in each column of the 3-D low resolution atmospheric chemistry-transport models (the hosts) to interactively provide the smoke injection height, the actual region where the trace gases and aerosols emitted during the flaming phase of vegetation fires are released in the atmosphere.

Following this approach, the total emission flux (F_η , in units of $\text{kg}[\eta] \text{m}^{-2} \text{dy}^{-1}$) is first determined, followed by

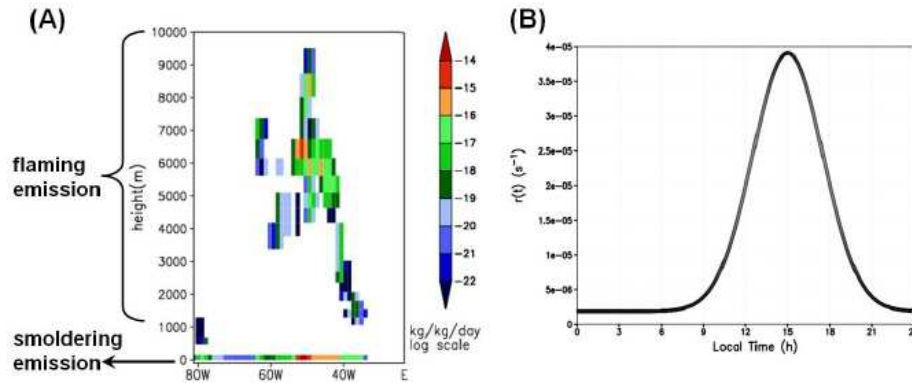


Fig. 3. (A) An example of a simulated vertical cross section of biomass burning CO source emission on 18:00 UTC 02 September 2002 at latitude 5.4° S (adapted from Freitas et al., 2007). It shows the surface emission associated to the smoldering phase as well as elevated emission layers associated to the flaming phase. The panel (B) depicts a Gaussian function centered at 15:00 LT used to determine the diurnal cycle of biomass burning emissions on South America.

the partitioning of mass emitted during the smoldering and flaming phases. Finally, the plume rise model determines the smoke injection layer of the flaming phase. From the above, the emission term of Eq. (2) can be expressed as

$$\tilde{E}_q(k) = \begin{cases} \lambda \frac{F_q}{\rho(k_1) \Delta z_1}, & k = 1 \\ (1 - \lambda) \frac{F_q}{\rho(k) \Delta z_k}, & h - \frac{\Delta z_h}{2} < z(k) < h + \frac{\Delta z_h}{2} \end{cases} \quad (7)$$

where Δz_h is the vertical thickness of the smoke layer, $\left[h - \frac{\Delta z_h}{2}, h + \frac{\Delta z_h}{2}\right]$ is the vertical domain of the injection layer prescribed by the smoke plume rise model and λ is the fraction (between 0 and 1) of the total mass released to the atmosphere during the smoldering phase. An example of the spatial distribution of biomass burning CO source emissions is given by Fig. 3a. It shows a vertical cross section of CO emissions at 18:00 UTC on 2 September 2002 along latitude 5.4° S (see Freitas et al., 2007 for more details), with surface emission associated with smoldering phase as well as elevated emission layers associated with flaming phase.

To convert the time unit of emission to seconds, it is convenient to introduce a diurnal cycle for the biomass burning emissions. The burning diurnal cycle typically shows a peak between approximately 13:00 and 18:30 local time, with the fire activity peaking earlier for heavily forested regions. The diurnal fire cycle is dictated primarily by the diurnal cycle of human activity; however, for high fractional tree cover, the diurnal meteorological conditions limit ignition to a relatively brief period of the day (Giglio, 2007). For South American fires, a single Gaussian function centered at ~18:00 UTC is normally used. This curve is based on the typical diurnal cycle of fire occurrence over South America

as reported by Prins et al. (1998). Figure 3b shows the diurnal cycle function $r(t)$ as used by the CCATT-BRAMS model. For other tropical areas of the world, Giglio (2007) reports the diurnal fire cycles for 15 regions which can be used to describe the corresponding diurnal cycle functions $r(t)$.

4 System description and functionalities

4.1 Chemical mechanisms available, grid projection and interpolation methods

PREP-CHEM-SRC is ready to provide emissions for the chemical mechanisms RADM2 (Chang et al., 1989), RACM (Stockwell et al., 1997), CB07 (Yarwood et al., 2005) and RELACS (Crassier et al., 2000). The chemical mechanism is determined during the code compilation by providing the corresponding chem1_list.f90 file (see the README file for further instructions).

Several options of map projection types (Polar-Stereographic, Gaussian, Lambert Conformal, Rectangular, FIM model Icosahedral horizontal grid) for regional and global grids are available with flexible spatial resolution.

The interpolation routines to create the emission fields on the model grid box can use either nearest-neighbor interpolation (when the model grid spacing is finer than the database grid spacing) or box averaging (when the model resolution is coarser). Both methods are approximately mass conservative.

The code is modular, user friendly, and self-explanatory on how each kind of emission source is treated. A regular user should be able to easily include new emission databases,

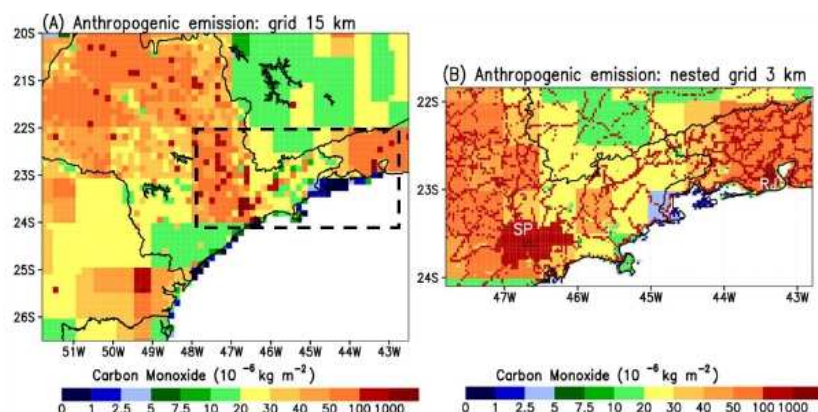


Fig. 4. Carbon monoxide anthropogenic emission field generated by the PREP-CHEM-SRC program: Panel (A) for a regional grid with 15 km horizontal resolution, Panel (B) for a nested grid with 3 km. The black box on Panel (A) represents the location of the nested grid in the coarse domain.

such as aircraft emissions, for example. Feedback to the developers is welcome.

4.2 The software

The PREP-CHEM-SRC emissions tool is coded using Fortran90 and C and requires HDF and NetCDF libraries. The code package is comprised of Fortran90 and C routines and a README file for further instructions. We make intensive use of derived type data and modules, functionalities of Fortran90, to provide clear, safe and easy understanding of the data structure. The desired grid configuration and emission inventories to provide trace gases and aerosol fluxes are defined in a Fortran *namelist* file called “prep-chem-src.inp”. The Appendix A provides a description of the parameters in the *namelist*. The software has been tested with Intel and Portland Fortran compilers under the UNIX/LINUX operating system.

4.3 Some examples of regional and global emissions

For regional models with nested grid capability, emissions for both coarse and fine grids are provided. Local updates for megacities or inclusion of point and line sources can easily be implemented. The product of this tool is a set of files with gridded daily emission fluxes ($\text{kg m}^{-2} \text{ dy}^{-1}$) and emission related information fields.

Figure 4 introduces the first example of the model output. In this case it is related to the anthropogenic emission of CO (described at Sect. 2.1) in the southeast region of Brazil. The system was configured with 2 grids, the coarse one (showed in panel a) with a 15 km horizontal resolution

covering mostly of São Paulo State with Paraná State in the south and Rio de Janeiro and Minas Gerais states in the north. The second and nested grid (panel b) has a 3 km horizontal resolution and covers the more densely urbanized areas of the Brazil, São Paulo and Rio de Janeiro Metropolitan Areas (MA), indicated by the letters SP and RJ on the panel. At this resolution, the shape of the emission field resembles much better the real urban islands of these Metropolitan Areas. Another remarkable feature at this resolution is the emission related to the main highways and roads of this area depicted by the red lines connecting SP and RJ and others urbanized locations. See Alonso et al. (2010) for more details.

As an example of model output for a regional grid covering South America, Figs. 5 and 6 show SO_2 and NO emission estimates for a specific day, respectively. Figure 5 shows sources of SO_2 estimated for 27 August 2002 on a rectangular projection grid with a spatial resolution of $0.2^\circ \times 0.2^\circ$. Panel a shows volcanic SO_2 emissions (in units $10^{-9} \text{ kg m}^{-2} \text{ dy}^{-1}$, see Sect. 2.4) along the Andes Mountains on the east side of South America. Panel b shows the emission associated with biomass burning as estimated using the 3BEM methodology; in this case fire counts from MODIS and the WFABBA fire product were used (Sect. 2.3). Finally, Panel (c) illustrates the SO_2 emissions from urban and industrial processes as prescribed by the EDGAR inventory (Sect. 2.1). For NO, Fig. 6 shows the biogenic emission (A) from GEIA (Sect. 2.2), from biomass burning (B) from 3BEM (Sect. 2.3) and anthropogenic (C) from RETRO revised with local sources of information according to Alonso et al. (2010, Sect. 2.1).

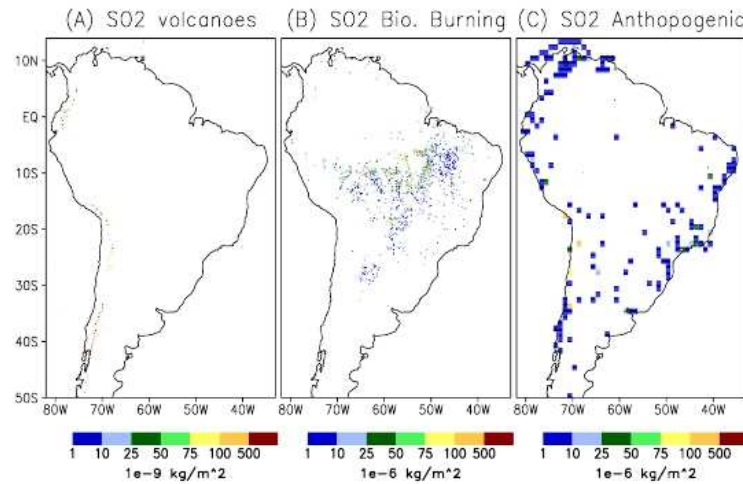


Fig. 5. Different sources of SO₂ estimated for 27 August 2002 on a rectangular projection grid with spatial resolution of 0.2° × 0.2°. Panel (A) represents volcanic emission following Diehl, 2009 inventory, (B) biomass burning from 3BEM and (C) anthropogenic SO₂ using EDGAR.

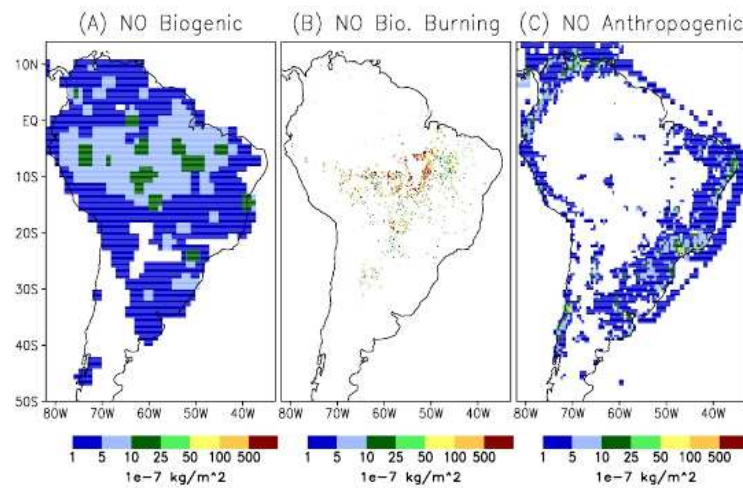


Fig. 6. Different sources of NO estimated for 27 August 2002 on a rectangular projection grid with spatial resolution of 0.2° × 0.2°. Panel (A) represents biogenic emission following GEIA inventory, (B) biomass burning NO emission from 3BEM and (C) anthropogenic NO using RETRO data but updated with local sources of information for the South American main cities.

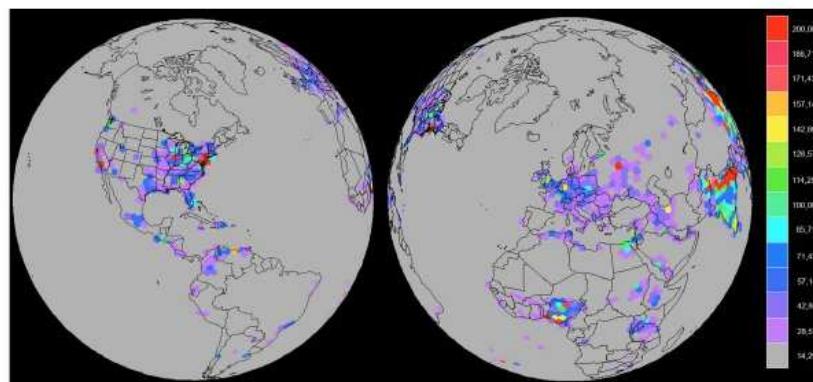


Fig. 7. Carbon monoxide emission field generated by the PREP-CHEM-SRC program for the icosahedral grid (level G5, resolution around 250 km) of FIM Model.

Emissions processed on the global scale for the FIM global model icosahedral grid is shown in Fig. 7. In this case, anthropogenic (Sect. 2.1) and biomass burning emissions (Sect. 2.3, using the MODIS fire product) of carbon monoxide are processed on a G5 grid resolution, approximately 250 km. Most emissions displayed in the left panel of Fig. 7 are associated with dense industrial and urban areas. On the right, urban emissions over Europe and biomass burning emissions associated with deforestation activities in north-western Africa are presented.

5 Conclusions

In this paper we have described the functionalities of the new PREP-CHEM-SRC chemical species preprocessor. PREP-CHEM-SRC was designed to prepare emission fields from a large set of source types and databases to be used in global and regional transport models. To interpolate the emission fields to the model grids, the user can choose between several map projections and determine the spatial resolution in a flexible way. The types of emissions considered are: urban/industrial, biogenic, biomass burning, volcanic, biofuel use and burning from agricultural waste sources from most recent databases or determined from satellite fire detections for biomass burning. For urban/industrial emissions, the RETRO, EDGAR and GOCART databases can be used. Biogenic emissions are from the GEIA and/or MEGAN databases. Biomass burning emissions can be provided by the GFEDv2 database or by the 3BEM model using satellite fire detection products. PREP-CHEM-SRC also provides the data needed to drive the plume rise parameterization used in the CCATT-BRAMS, WRF-CHEM and FIM

models. For volcanoes, ash and SO_2 degassing are considered. The way to include both the low and the high buoyancy emission fluxes calculated by PREP-CHEM-SRC is also discussed. The main accomplishments of this new preprocessor are:

- the easy use and grid configuration of the emission fields on regional or global scales,
- the choice between different databases,
- the choice between different chemical mechanisms.

The code and mostly of the emission data base are available upon request to the 1st author, to the email address (gmaicptec.inpe.br) or wrfchemhelp.gsd@noaa.gov.

Appendix A

Description of the parameters of “prep-chem-src.inp” namelist file, version 1.0.

Table A1. Parameters of "prep-chem-src.inp" namelist file, version 1.0.

Parameters and examples	Description and comments
grid_type= "polar",	This parameter (character) defines the grid projection on which the emission fields will be generated. The options are: - "polar" = polar stereographic grid - "gg" = Gaussian grid - "ll" = rectangular projection grid - "lambert" = Lambert conformal grid - "FIM" = FIM model icosahedral grid
ihour=0, iday=12, imom=7, year=2004, use_retro=1, retro_data_dir= './Emission/RETRO/anthro', use_edgar=1, edgar_data_dir= './Emission/EDGAR/anthro', use_gocart=1, gocart_data_dir= './Emission/GOCART/emissions', use_bioge=1, bioge_data_dir= './Emission/biogenic_emissions', use_fwbawb=0, fwbawb_data_dir= './Emission/fwbawb', use_gfedv2=0, gfedv2_data_dir= './Emission/GFEDv2-8days', use_bbem=1, use_bbem_plumerise=1, merge_GFEDv2_bbem=0,	The emission date using GMT time. All parameters are integers. To select the anthropogenic sources datasets to be used (1 = yes, 0 = no) and to provide the directory path where the corresponding input data is located. The parameters are integers and characters. To define if GOCART emissions of OC, BC, SO ₂ and DMS will be used (1) or not (0) and the path where the raw data is located. To select the biogenic sources datasets to be used (0=not, 1=GEIA, 2=MEGAN) and the path where the original data is located. To define if biofuel use and agricultural waste burning emissions will be used (1) or not (0), and the path where the raw data is located. To define if the GFEDv2 biomass burning inventory is to be used (=1) or not (=0) and the path where the raw data is located. To define if the 3BEM biomass burning inventory and smoke plume rise parameters will be used (=1) or not (=0). Defines if the merging of GFEDV2 with 3BEM is desired (integer 1=yes, 0=no). If yes, 3BEM is used over South America instead of GFEDv2.
bbem_wfabba_data_dir= './Emission/fires_data/WFABBA_v6Q/filvf', bbem_modis_data_dir= './Emission/fires_data/MODIS/Fires', bbem_inpe_data_dir= './Emission/fires_data/DSA/Focos', bbem_extra_data_dir= './Emission/fires_data/xx',	Fire products for 3BEM/3BEM-plumerise emission models: - Path of WFABBA fire product. The filtered fire product is recommended. The last letter 'f' is the prefix of the file name. - Path of MODIS fire product and the prefix of the file name ("Fires"). - Path of INPE/DSA fire product and the prefix of the file name ("Focos"). - A additional fire product provided by the user
veg_type_data_dir= './surface_data/GL_IGBP_MODIS_INPE/MODIS	Only for 3BEM: Land cover data set (dir + prefix)
carbon_density_data_dir= './surface_data/GL_OGE_INPE/OGE',	Only for 3BEM: Carbon density data set (dir + prefix)
fuel_data_dir= './surface_data/fuel/glc2000_fuel_load.nc',	Only for 3BEM: fuel load data provided by the user (dir + full file name).
USE_GOCART_BG=1, GOCART_BG_DATA_DIR= './Emission/GOCART',	GOCART background data for H ₂ O ₂ , OH and NO ₃ (only for WRF-Chem/FIM models with GOCART aerosol module)

Table A1. Continued.

Parameters and examples	Description and comments
<pre>USE_VOLCANOES=1, VOLCANO_INDEX=1450, USE_THESE_VALUES='NONE', BEGIN_ERUPTION='201004161200',</pre>	This section is to control emission of ASH by eruptive volcanoes. The data is based on Mastin et al. (2009). - USE_VOLCANOES: 1=yes, 0=no (integer). - VOLCANO_INDEX: the reference number (integer) of the volcano listed at Mastin et al. (2009) database. This number will provide through a lookup table a set of default parameters for injection height, duration and emission of ash. - USE_THESE_VALUES: (character) if 'none', Mastin et al. (2009) database will be used. If the user want to use a different set of numbers, them must be in text file with inj_height, duration, mass ash (units are meters - seconds - kilograms). As example, a file named 'values.txt' with the text line: 11000 10800 1.5e10 will replace the default values by these numbers by setting USE_THESE_VALUES='./values.txt' - BEGIN_ERUPTION= begin time UTC of eruption YYYYMMDD-HH:mm
<pre>USE_DEGASS_VOLCANOES=0, DEGASS_VOLC_DATA_DIR='Emission/VOLC_SO2',</pre>	This section is to control emission of SO₂ by eruptive and non-eruptive volcanoes. The data is based on Diehl (2009, 2010) papers. - USE_DEGASS_VOLCANOES=1=yes, 0=no (integer). - DEGASS_VOLC_DATA_DIR: character designing the path of the directory where the raw data is.
<pre>GRID_RESOLUCAO_LON=0.1, GRID_RESOLUCAO_LAT=0.1, NLAT=320, LON_BEG = -170, LAT_BEG = 40, DELTA_LON= 90, DELTA_LAT= 40,</pre>	This section is only for grid_type 'll' or 'gg'. The parameter 'nlat' is integer, all others are real. - GRID_RESOLUCAO_LON and GRID_RESOLUCAO_LAT are the grid spacing in degrees. - NLAT is the number of grids on the latitudinal direction for a Gaussian grid. - LON_BEG and LAT_BEG are the longitude and latitude in degrees of the 1st grid box. The ranges are -180 to +180 and -90 to +90, respectively. - DELTA_LON and DELTA_LAT are the total extension of the domain in degrees. Set 360 and 180 degrees for global domains, respectively.
<pre>NGRIDS = 1, NNXP = 275, 50, 86, 46, NNYP = 250, 50, 74, 46, NXTNEST = 0, 1, 1, 1, DELTA_X = 5000, DELTA_Y = 5000, NSTRATX = 1, 2, 3, 4, NSTRATY = 1, 2, 3, 4, NINEST=1, 10, 0, 0, NJNEST=1, 10, 0, 0, POLELAT = 65, POLELON = -150, STDLAT1 = 65, STDLAT2 = 65, CENTLAT = 65, -23, 27.5, 27.5, CENTLON = -150, -46, -80.5, -80.5</pre>	This section is only for regional grids. - NGRIDS (integer) is the number of grids to generate emissions. - NNXP, NNYP (integer) are the number of x,y gridpoints for each desired grid. - NXTNEST (integer) is grid number which is the next coarser grid. - DELTA_X, DELTA_Y (real) are the X and Y grid spacing (meters). - NSTRATX, NSTRATY (integer) are the nest ratios between this grid and the next coarser grid. - NINEST, NJNEST (integer) are the grid point on the next coarser nest where the lower southwest corner of this nest will start. If NINEST or NJNEST =0, use CENTLAT/CENTLON parameters. - POLELAT, POLELON (real) are, if grid type is polar, the latitude (in degrees) of pole point. If lambert, lat/lon of grid origin (x=y=0). - STDLAT1, STDLAT2 (real, only for Lambert-Conformal) are standard latitudes of projection in degrees. - CENTLAT, CENTLON are the center (latitude, longitude, in degrees) of each grid.

Table A1. Continued.

Parameters and examples	Description and comments
PROJ_TO_LL='YES', LATI = -90, -90, -90, LATF = +90, +90, +90, LONI = -180, -180, -180, LONF = 180, 180, 180, CHEM_OUT_PREFIX = 'TEST-RACM', CHEM_OUT_FORMAT='vfm', CONVERT_TO_WRF = 'yes',	This section is only for visualization using GrADS software. - PROJ_TO_LL (character) is to define if a rectangular projection is desired: 'YES' or 'NOT'. - LATI, LATF, LONI, LONF (real, degrees) are the corners of the emission output domain for each grid. - CHEM_OUT_PREFIX: output file prefix (may include directory path) - CHEM_OUT_FORMAT: the format of the output use 'vfm' for CCATT-BRAMS, WRF-CHEM or FIM. Binary is also available by setting 'bin' or 'txt' for a text file. NetCDF is under implementation. - CONVERT_TO_WRF: convert to WRF/CHEM ('yes' or 'not', character).

Acknowledgements. We acknowledge partial support of this work by CNPq (302696/2008-3, 309922/2007-0). This work has been carried out with partial support from the Inter-American Institute for Global Change Research (IAI) CRN II 2017 which is supported by the US National Science Foundation (Grant GEO-0452325).

Edited by: A. Sandu

References

- Alonso, M. F., Longo, K., Freitas, S., Fonseca R., Marécal V., Pirre M., and Klenner, L.: An urban emission inventory for South America and its application in numerical modeling of atmospheric chemical composition at local and regional scales, *Atmos. Environ.*, 44, 5072–5083, 2010.
- Andreae, M. and Merlet, P.: Emission of trace gases and aerosols from biomass burning, *Glob. Biogeochem. Cy.*, 15(4), 955–966, 2001.
- Belward, A.: The IGBP-DIS global 1 km land cover data set (DISCover)-proposal and implementation plans, IGBP-DIS Working Paper No. 13, Toulouse, France, 1996.
- Bleck, R., Benjamin, S., Lee, J., and MacDonald, A. E.: On the Use of an Adaptive, Hybrid-Isentropic Vertical Coordinate in Global Atmospheric Modeling, *Mon. Weather Rev.*, 138, 2188–2210, 2010.
- Chang, J. S., Binkowski, F. S., Seaman, N. L., McHenry, J. N., Samson, P. J., Stockwell, W. R., Walcek, C. J., Madronich, S., Middleton, P. B., Pleim, J. E., and Lansford, H. H.: The regional acid deposition model and engineering model. State-of-Science/Technology, Report 4, National Acid Precipitation Assessment Program, Washington DC, 1989.
- Crassier, V., Suhre, K., Tulet, P., and Rosset, R.: Development of a reduced chemical scheme for use in mesoscale meteorological models, *Atm. Environ.*, 34, 2633–2644, 2000.
- Diehl, T.: A global inventory of volcanic SO₂ emissions for hindcast scenarios, available at: http://www-lscedods.cea.fr/aerocom/AEROCOM_HC/ (last access: 1 May 2011), 2009.
- Diehl, T., et al.: A global inventory of subaerial volcanic SO₂ emissions from 1979 to 2008, in preparation, 2011.
- Freitas, S. R., Longo, K. M., and Andreae, M. O.: Impact of including the plume rise of vegetation fires in numerical simulations of associated atmospheric pollutants, *Geophys. Res. Lett.*, 33, L17808, doi:10.1029/2006GL026608, 2006.
- Freitas, S. R., Longo, K. M., Chatfield, R., Latham, D., Silva Dias, M. A. F., Andreae, M. O., Prins, E., Santos, J. C., Gielow, R., and Carvalho Jr., J. A.: Including the sub-grid scale plume rise of vegetation fires in low resolution atmospheric transport models, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 3385–3398, doi:10.5194/acp-7-3385-2007, 2007.
- Freitas, S. R., Longo, K. M., Silva Dias, M. A. F., Chatfield, R., Silva Dias, P., Artaxo, P., Andreae, M. O., Grell, G., Rodrigues, L. F., Fazenda, A., and Panetta, J.: The Coupled Aerosol and Tracer Transport model to the Brazilian developments on the Regional Atmospheric Modeling System (CATT-BRAMS) - Part 1: Model description and evaluation, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 2843–2861, doi:10.5194/acp-9-2843-2009, 2009.
- Freitas, S. R., Longo, K. M., Trentmann, J., and Latham, D.: Technical Note: Sensitivity of 1-D smoke plume rise models to the inclusion of environmental wind drag, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 585–594, doi:10.5194/acp-10-585-2010, 2010.
- Gibbs, H. K.: Olson's Major World Ecosystem Complexes Ranked by Carbon in Live Vegetation: An Updated Database Using the GLC2000 Land Cover Product, NDP-017b, available at: <http://cdiac.ornl.gov/epubs/ndp/ndp017/ndp017b.html>, Carbon Dioxide Information Center, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee, doi:10.3334/CDIAC/luu.ndp017, 2006.
- Gibbs, H. K., Brown, S., Niles, J. O., and Foley, J. A.: Monitoring and estimating tropical forest carbon stocks: making REDD a reality, *Environ. Res. Lett.*, 2, 045023, doi:10.1088/1748-9326/2/4/045023, 2007.
- Giglio, L.: Characterization of the tropical diurnal fire cycle using VIRS and MODIS observations, *Remote Sens. Environ.*, 108(4), 407–421, doi:10.1016/j.rse.2006.11.018, 2007.
- Giglio, L., Descloitres, J., Justice, C. O., and Kaufman, Y. J.: An enhanced contextual fire detection algorithm for MODIS, *Remote Sens. Environ.*, 87, 273–282, 2003.
- Giglio, L., van der Werf, G. R., Randerson, J. T., Collatz, G. J., and Kasibhatla, P.: Global estimation of burned area using MODIS active fire observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 957–974, doi:10.5194/acp-6-957-2006, 2006.
- Grell, G. A., Peckham, S., Schmitz, R., McKeen, S. A., Frost, G., Skamarock, W. C., Eder, B.: Fully coupled "online" chemistry within the WRF model, *Atmos. Environ.*, 39(37), 6957–6975, 2005.
- Guenther, A., Karl, T., Harley, P., Wiedinmyer, C., Palmer, P. I., and Geron, C.: Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature), *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 3181–3210, doi:10.5194/acp-6-3181-2006, 2006.
- Longo, K. M., Freitas, S. R., Andreae, M. O., Yokelson, R., and Artaxo, P.: Biomass burning, long-range transport of products, and regional and remote impacts, in: *Amazonia and Global Change*, edited by: Keller, M., Bustamante, M., Gash, J., and Silva Dias, P., American Geophysical Union, 186, 207–232, 2009.
- Longo, K. M., Freitas, S. R., Andreae, M. O., Setzer, A., Prins, E., and Artaxo, P.: The Coupled Aerosol and Tracer Transport model to the Brazilian developments on the Regional Atmospheric Modeling System (CATT-BRAMS) - Part 2: Model sensitivity to the biomass burning inventories, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 5785–5795, doi:10.5194/acp-10-5785-2010, 2010.
- Longo, K. M., Freitas, S. R., Pirre, M., Marécal, V., Rodrigues, L. F., Alonso, M. F., and Mello, R.: The Chemistry-CATT BRAMS model: a new efficient tool for atmospheric chemistry studies at local and regional scales, *Geosci. Model Dev. Discuss.*, in preparation, 2011.
- Mastin, L., Guffanti, M., Servranckx, R., Webley, P., Barsotti, S., Dean, K., Durant, A., Ewert, J., Neri, A., and Rose, W.: A multidisciplinary effort to assign realistic source parameters to models of volcanic ash-cloud transport and dispersion during eruptions, *J. Volcanol. Geoth. Res.*, 186(1), 10–21, 2009.
- Olson, J. S., Watts, J. A., and Allison, L. J.: Major World Ecosystem Complexes Ranked by Carbon in Live Vegetation: A Database (revised November 2000), NDP-017, available at: <http://cdiac.esd.ornl.gov/ndps/ndp017.html> (last access: 1 April 2010), Carbon Dioxide Information Analysis Center, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee, USA, 2000.
- Olivier, J., Bouwman, A., van der Maas, C., Berdowski, J., Veldt,

- C., Bloos, J., Visschedijk, A., Zandveld, P., and Haverlag, J.: Description of EDGAR Version 2.0: A Set of Global Emission Inventories of Greenhouse Gases and Ozone-Depleting Substances for All Anthropogenic and Most Natural Sources on a per Country Basis and on a 1×1 Degree Grid, RIVM Report 771060 002/TNO-MEP Report R96/119, National Institute of Public Health and the Environment, Bilthoven, the Netherlands, 1996.
- Olivier, J., Bouwman, A., Berdowski, J., Veldt, C., Bloos, J., Visschedijk, A., van der Maas, C., and Zandveld, P.: Sectoral emission inventories of greenhouse gases for 1990 on a per country basis as well as on 1×1 degree, *Environ. Sci. Policy*, 2, 241–264, 1999.
- Prins, E., Feltz, J., Menzel, W., and Ward, D.: An overview of GOES-8 diurnal fire and smoke results for SCAR-B and 1995 fire season in South America, *J. Geophys. Res.*, 103(D24), 31821–31835, 1998.
- Saatchi, S., Houghton, R., Alvala, R., Yu, Y., and Soares, J.-V.: Spatial Distribution of Live Aboveground Biomass in Amazon Basin, *Glob. Change Biol.*, 13, 816–837, 2007.
- Seinfeld, J. and Pandis, S.: *Atmospheric Chemistry and Physics*, John Wiley & Sons Inc., New York, 1998.
- Sestini, M., Reimer, E., Valeriano, D., Alvalá, R., Mello, E., Chan, C., and Nobre, C.: Mapa de cobertura da terra da Amazônia legal para uso em modelos meteorológicos, *Anais XI Simpósio Brasileiro de Sensoriamento Remoto*, 2901–2906, 2003.
- Setzer, A. and Pereira, M.: Amazonia biomass burnings in 1987 and an estimate of their tropospheric emissions, *Ambio*, 20, 19–22, 1991.
- Stockwell, W. R., Kirchner, F., Kuhn, M., and Seefeld, S.: A New Mechanism for Regional Atmospheric Chemistry Modeling, *J. Geophys. Res.*, 102, 25847–25879, 1997.
- van der Werf, G. R., Randerson, J. T., Giglio, L., Collatz, G. J., Kasibhatla, P. S., and Arellano Jr., A. F.: Interannual variability in global biomass burning emissions from 1997 to 2004, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 3423–3441, doi:10.5194/acp-6-3423-2006, 2006.
- Yevich, R. and Logan, J.: An assessment of biofuel use and burning of agricultural waste in the developing world, *Global Biogeochem. Cy.*, 17(4), 1095, doi:10.1029/2002GB001952, 2003.
- Yarwood, G., Rao, S., Yocke, M., and Whitten, G. Z.: Updates to the Carbon Bond chemical mechanism: CB05, Final Report to the US EPA, RT-0400675, 8 December 2005.
- Zhang, Y.: Online-coupled meteorology and chemistry models: history, current status, and outlook, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 2895–2932, doi:10.5194/acp-8-2895-2008, 2008.

NEW AIR QUALITY PRODUCT AT CPTEC/INPE: FORECASTING TROPOSPHERE OZONE AND ITS PRECURSORS FROM BIOMASS BURNING AND URBAN EMISSIONS

*K. M. Longo¹, S. R. Freitas¹, M. Alonso², L. F. Rodrigues¹,
R. M. Fonseca², R. Stockler² and D. S. Moreira¹*

¹Center for Space and Atmospheric Sciences, INPE, São José dos Campos, Brazil

²Center for Weather Forecasting and Climate Studies, INPE, Cachoeira Paulista, Brazil

Recebido Outubro 2009 - Aceito Dezembro 2009

RESUMO

O nosso principal objetivo aqui é apresentar a evolução do produto de previsão numérica de tempo químico desenvolvido no INPE e operacional no CPTEC/INPE. O novo sistema inclui mecanismo de reatividade química e, assim, faz prognóstico de espécies secundárias formadas por processos cinéticos e fotoquímicos. Para o desenvolvimento deste sistema, o modelo "Coupled Aerosol-Tracer Transport model to the Brazilian developments on the Regional Atmospheric Modeling System" (CATT-BRAMS) foi aperfeiçoado de modo a incluir na equação de continuidade de massa o termo de reatividade química. O novo sistema numérico inclui um pré-processador de mecanismos químicos, capaz de gerar automaticamente rotinas em Fortran 90 que implementam o mecanismo para serem compiladas com o código BRAMS. Integradores numéricos do sistema de equações da química eficientes e no estado-da-arte foram implementados no modelo. Cálculo das taxas de fotólises interativo e on-line baseado no sistema FAST-TUV totalmente acoplado com o modelo de aerossol, a microfísica de nuvens e parametrização convectiva foi também incluído no sistema. Como condição inicial e de contorno, o sistema é capaz de assimilar dados de modelos globais de química atmosférica. Emissões antropogênicas, biogênicas e de queimadas são prescritas utilizando metodologias validadas e/ou inventários publicados na literatura. O sistema operacional foi implementado no CPTEC/INPE produzindo diariamente 72 horas de previsão numérica de monóxido de carbono, ozônio, óxidos nitrosos, material particulado além dos tradicionais produtos de tempo. Discute-se alguns exemplos de eventos de poluição do ar capturados por este sistema durante a estação de queima (Julho-Outubro) de 2009 sobre a América do Sul.

Palavras-chave: qualidade do ar, previsão numérica, queimadas, emissões urbanas, ozônio troposférico.

ABSTRACT

An evolution of the numerical chemical weather forecasting product developed at INPE and operational at CPTEC/INPE is presented here. The new system includes a mechanism for chemical reactivity and thus makes the prognosis of secondary species formed by kinetic and photochemical processes. To develop this system, the model "Coupled Aerosol Tracer Transport model to the Brazilian developments on the Regional Atmospheric Modeling System (CATT-BRAMS) has been improved to include the term of chemical reactivity in the mass continuity equation. The new numeric system includes a preprocessor for the chemical mechanisms, able to automatically generate Fortran 90 routines that implement the mechanism to be compiled with the code BRAMS. Efficient and at the current state-of-art numerical integrators of the chemical equations' system have been implemented in the model. Calculation of photolysis and interactive on-line system based on FAST-TUV fully coupled with the aerosol module, cloud microphysics and convective parameterization was also included in the system. For initial and boundary conditions, the system is able to assimilate data from global atmospheric chemistry models. Anthropogenic, biogenic and biomass burning emissions are prescribed using validated methodologies and/or inventories from the literature. The operational system was implemented at CPTEC/INPE producing daily 72 hours of numerical forecasting of carbon monoxide, ozone, nitrous oxides, particulate matter in addition to the traditional meteorological fields. We present and discuss some examples of air pollution events captured by the operating system during the burning season (July-October) of 2009 in South America.

Keywords: air quality, numerical forecast, biomass burning, vegetation fires

1. INTRODUCTION

Biomass burning (vegetation fires) is a major anthropogenic source of greenhouse gases, aerosols and pollutants to the atmosphere during the dry season (July to October) over South America (Andreae, 1991, Artaxo et al., 2002). In addition, smoke aerosols particles have an impact on the radiative budget and cloud microphysics (Kaufman, 1995, Rosenfeld, 1999, Andreae et al., 2004) affecting the hydrologic cycle and boundary layer properties (Longo et al., 2006). Smoke aerosols as well as ozone and other trace gases associated with biomass burning emission are observed to frequently make the air quality in the smoke affected areas even worst than in the polluted South American Megacities, like São Paulo Metropolitan Region (Ignotti et al., 2009, Brazil Health 2006, Artaxo et al., 2002). The emissions associated with several hundred of fires every day during the burning season and transported by the atmospheric motions, produces

a smoke plume of continental dimension covering large areas around $4-5 \cdot 10^6 \text{ km}^2$ of South America (Prins et al., 1998, Freitas et al., 2005).

Due the high impact the biomass burning and urban pollution might have on air quality and atmospheric dynamics, its numerical monitoring and prediction constitutes relevant information for the society.

2. METHODOLOGY

The operational air quality forecast system implemented at the Brazilian National Institute for Space Research is based on the CCATT-BRAMS model. This model is based on the previous version CATT-BRAMS (Freitas et al., 2005, 2009, Longo et al., 2006) and includes gas-phase chemistry. The CCATT-BRAMS system might be virtually configured with

any chemical mechanism using a modified version of SPACK (Simplified Preprocessor for Atmospheric Chemical Kinetics, Djouad et al., 2002) pre-processor. The numerical integrator of the chemical mechanism is an efficient implicit and multi-stage solver based on Rosenbrock's method (Hairer and Wanner, 1991). Currently are implemented the versions ROS 2 (2nd order, 2 stages) and RODAS 3 (3rd order, 4 stages). The time integration may use manual, splitting or dynamic time-step for the chemistry. The operator splitting used to solve the mass continuity equation may be defined as parallel (was used originally by the BRAMS model to integrate the dynamics), sequential and sequential symmetric. The last 2 splitting operators were implemented by the authors. Photolysis rates are calculated on-line using FAST-TUV (Xie et al., 2003) model.

Dry deposition follows the resistance formulation and accounts for the aerodynamic, quasi-laminar layer and canopy resistances (Wesely, 1989, Seinfeld and Pandis, 1998). Sedimentation for aerosols use exactly the same vertical advection scheme of the BRAMS model dynamics. Wet deposition is parameterized following Berge (1993) for PM_{2.5}, Henry's law is used for the in-cloud gaseous and is fully coupled with the convective parameterization.

For the simulations presented below we used the Regional Atmospheric Chemistry Mechanism (RACM, Stockwell et al., 1997) with 70 species and 237 kinetic and photolysis reactions, while for the operational runs the Carbon Bond chemistry (Gery et al., 1989) mechanism (33 species, 81 reactions) is used instead for the sake of computational cost. Boundary condition for chemistry fields are provided by MOCAGE global chemistry forecast model (Peuch et al., 1999). The CPTEC/INPE analysis data provides initial and boundary conditions for the meteorological integration.

CCATT is an Eulerian transport model fully coupled to BRAMS mesoscale model. The tracer transport simulation is made simultaneously ("on-

line") using exactly the same time-step as well as dynamical and physical parameterizations. The general mass continuity equation for tracers solved in the CCATT-BRAMS model is (in a form of tendency equation):

$$\frac{\partial \bar{s}}{\partial t} = \underbrace{\left(\frac{\partial \bar{s}}{\partial t} \right)_{adv}}_I + \underbrace{\left(\frac{\partial \bar{s}}{\partial t} \right)_{PBL}^{PBL}}_{II} + \underbrace{\left(\frac{\partial \bar{s}}{\partial t} \right)_{deep}^{deep}}_{III} + \underbrace{\left(\frac{\partial \bar{s}}{\partial t} \right)_{shallow}^{shallow}}_{IV} + \underbrace{\left(\frac{\partial \bar{s}}{\partial t} \right)_{chem}}_V + \underbrace{W}_{VI} + \underbrace{R}_{VII} + \underbrace{Q}_{VIII} + \underbrace{F}_{IX}$$

where $\bar{s}$ is the grid box mean tracer mixing ratio, term (I) represents the 3-d resolved transport term (advection by the mean wind), term (II) is the sub-grid scale diffusion in the PBL, terms (III) and (IV) are the sub-grid transport by deep and shallow convection, respectively. The term (V) accounts for the gas-phase chemistry. Term (VI) is the wet removal, term (VII) refers to the dry deposition applied to gases and aerosols particles, (VIII) is the source term that includes the plume rise mechanism associated with the vegetation fires (Freitas et al, 2006, 2007) and, finally, (IX) is the source term associated to anthropogenic and biogenic processes relevant for this forecast. Figure 1 illustrates the main sub-grid scale processes involved in the trace gas/aerosol transport, emission, deposition and photochemistry and simulated by this modeling system. Additionally, CCATT-BRAMS includes a radiation scheme that takes into account the interaction between aerosol particles and short and long wave radiation. A consistent description of the smoke and its interaction with short- and long-wave radiation make this model reliable for atmospheric feedback studies of the smoke aerosols (Longo et al., 2006).

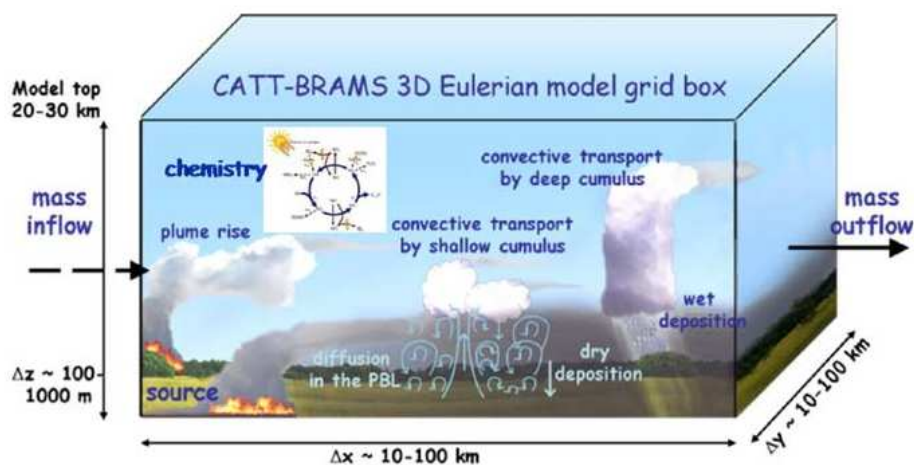


Figure 1 - Several sub-grid processes involved in gases/aerosols transport, emission, deposition and photochemistry and simulated by CATT-BRAMS system.

Emission sources are defined for anthropogenic, biogenic and biomass burning as prescribed by RETRO (www.retro.enes.org), GEIA-POET (www.geiacenter.org) and 3BEM inventories, respectively. The global scale anthropogenic emissions database RETRO and EDGAR has been updated and extrapolated using South American local inventories (Sao Paulo and Rio de Janeiro States, Santiago, Buenos Aires, Bogota and others cities available; Alonso et al., 2009). The mobile source emissions of carbon monoxide and nitrogen oxides, available in inventories, are correlated with some socio-economic data and extrapolated to other cities in Brazil. For higher resolutions, the emissions are distributed on the model grid using a geometrical algorithm that determines the limits of an urban

area through land cover information from sensor AVHRR/NOAA (Global Land Cover Facility glcf.umd.edu/data/landcover) and obtain a convex polygon to distribute the emissions. The figure 2 shows an example of the updated inventory, in a 5 km grid covering the South America and and Southeastern region of Brazil.

The Brazilian Biomass Burning Emissions Model (3BEM) is based on near real-time remote sensing fire products to determine fire emissions and plume rise characteristics (Freitas et al., 2007, Longo et al., 2007). Fire emissions are updated on near real time and are spatially and temporally distributed according to the fire counts locations obtained by remote sensing (mainly from the sensors AVHRR, MODIS and GOES-12).

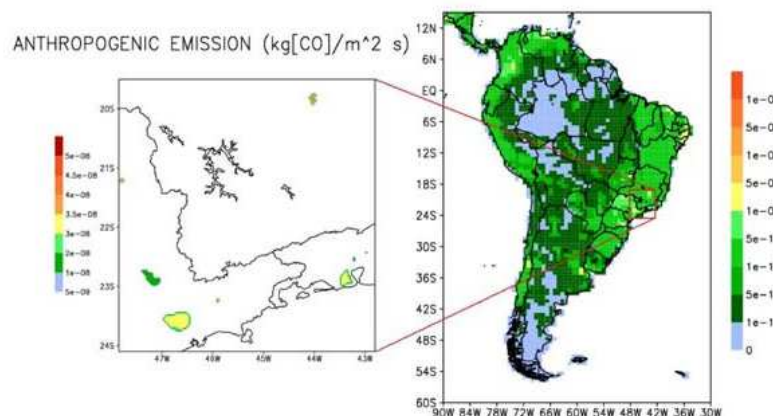


Figure 2 - Carbon Monoxide (CO) from the updated urban emission inventory ($\text{kg [CO]}/\text{m}^2\text{s}$) with emphasis on distribution of emissions on 5 km grid covering the South America and the Southeastern region of Brazil.

The operational system follows the scheme depicted in Figure 3. The fires observed by remote sensing on the previous day and the tracers concentration of the last run provide the source emission and the initial condition for the tracers. The CPTEC (Center for Weather Prediction and Climate Studies-Brazil) atmospheric and MOCAGE chemistry global analysis and forecast provide the initial and boundary conditions for the regional atmospheric model and chemistry fields

using 4DDA technique. The model configuration has 2 grids. The coarse grid has a horizontal resolution of 60 km covering the South and Central American continents. The nested grid has a 30 km horizontal resolution and covers mostly South America. The vertical resolution for both grids is between 100 to 850 m, with the top of the model at 21 km. Each time integration is 96 hours (with of 72 hours forecast).

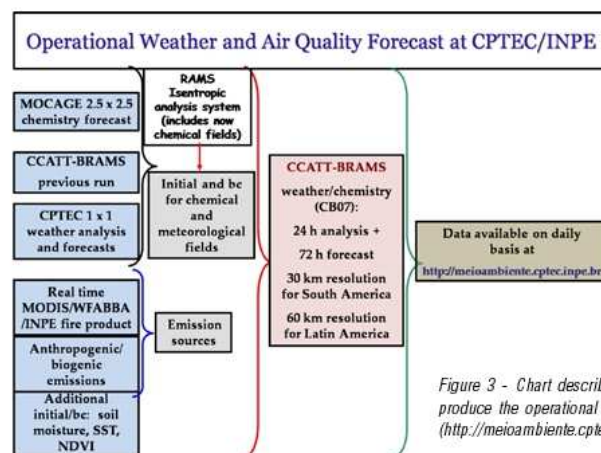


Figure 3 - Chart describing the tools, models and data flux to produce the operational air quality forecast at the CPTEC/INPE (<http://meioambiente.cptec.inpe.br>).

3. INTERESTING CASES

An example of performance of this operational system is showed at Figure 4. On April 2008, farmers of Argentina produced thousands of fires which generated an enormous smoke plume (see Figure 4B, MODIS visible image on 17/04/2008), which strongly affect Buenos Aires air quality and visibility (see Figure 4C). The Figure 4A shows the real time forecast (initialized on 00UTC 16/04/2008) valid for 03UTC 17/04/2008 of the smoke plume invading the metropolitan area of Buenos Aires. This example demonstrates the system dexterousness on simulating the smoke emissions and forecast smoke aerosol and trace gases mixing rates distribution.

We also briefly discuss a more recent case occurred on 04/10/2009. October typically marks the transition from dry to wet season in South America, but still many fire spots were observed. From this figure, one can see fires all over the arc of deforestation, and also fires inside the Amazon basin, mainly on the edge of the main local roads and the Amazon River (Figure

5). Emission rates up to $10^{-8} \text{ kg [CO] m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ are estimated, mainly over dense forest areas. The left side of Figure 6 shows the emission rates of CO at $\sim 6.7 \text{ km}$ height (upper panel) and $\sim 9.3 \text{ km}$ (bottom panel) above local surface. This elevated smoke emission is associated to its initial strong buoyancy provided by the fire heat flux during the flaming phase. The vertical level of the injection mass is determined by the plume rise model embedded in each column of the CCATT-BRAMS model (Freitas et al., 2006). On the right side of Figure 6, appears the forecast for NO_x (ppbv) mixing ratio at level $\sim 6.7 \text{ km}$ and on 22 UTC 04/10/2009. This NO_x was emitted by the fires in the northern and northeastern parts of Brazil. The impact on air quality as well in the mid-troposphere chemistry is demonstrated in Figure 7, where the upper panels show CO and O₃ mixing ratios (ppbv) near surface level. The strongest signals for both trace gases shown are related with biomass burning emissions. The relatively smaller CO and O₃ plume that appears around latitude 23 S and longitude 46 W, near surface level, is associated to Sao Paulo metropolitan area urban pollution.

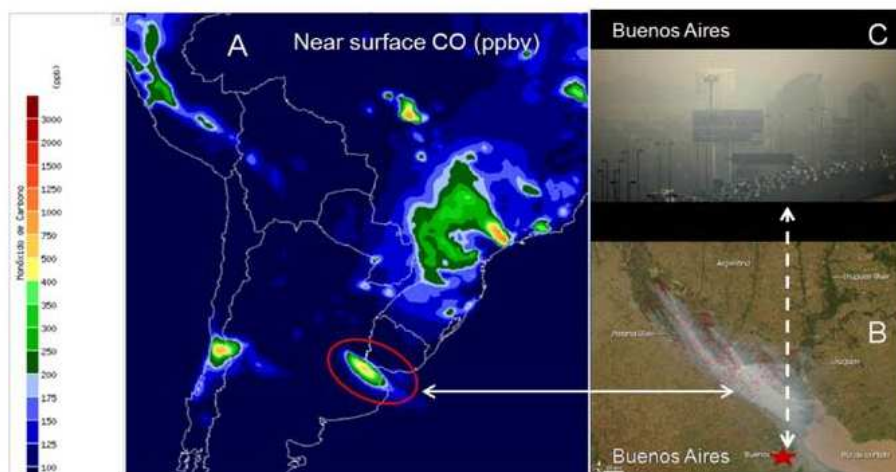


Figure 4 - (A) Real time forecast of carbon monoxide over South America (valid for 03 UTC 17/04/2008) using CCATT-BRAMS at CPTEC/INPE (<http://meioambiente.cptec.inpe.br>). (B) MODIS visible image for 17/04/2008. (C) Photograph of Buenos Aires on 17/04/2008 (picture taken by Natacha Pisarenko/AP via Bloomberg News).



Figure 5 - Real time fire location and carbon monoxide emission estimate ($\text{kg m}^{-2} \text{s}^{-1}$) for 04/10/2009.

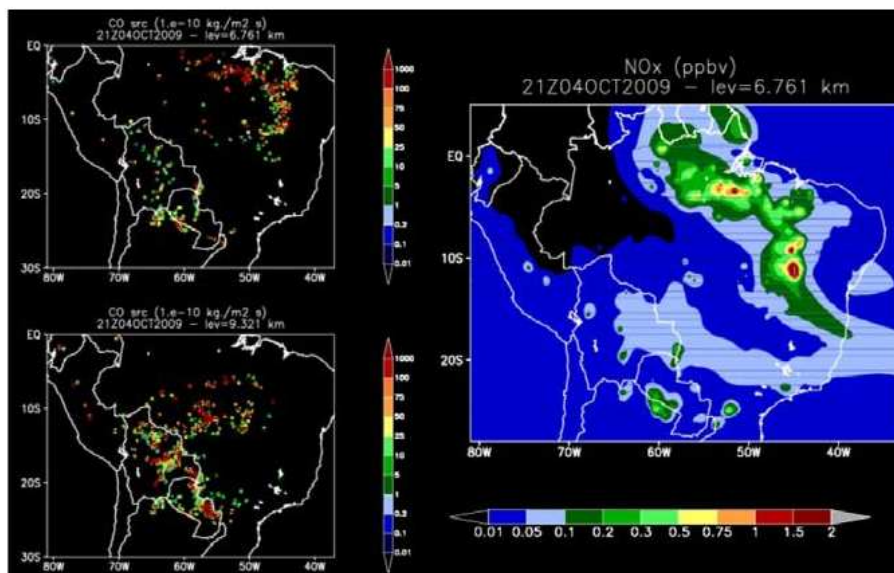


Figure 6 - On the left side, elevated pyrogenic CO emissions estimated by using real time remote sensing fire products and a 1D plume rise model. On the right side, forecast of NOx mixing ratio at level ~ 6.7 km above local surface and on 21UTC 04/10/2009.

Biomass burning emissions typically increases ozone mixing ratios from 10 ppbv background values to up 70 ppbv. At the mean troposphere (~6.7 km above surface, bottom panels), the smoke plume rise injected huge amount of CO and O₃ precursors. Air masses ozone enriched, with maximum of 75 ppbv,

is transported northwestward and southeastward by trade winds. This transport indicates strong implications of biomass burning emissions to the atmospheric chemistry composition both in regional and global scales.

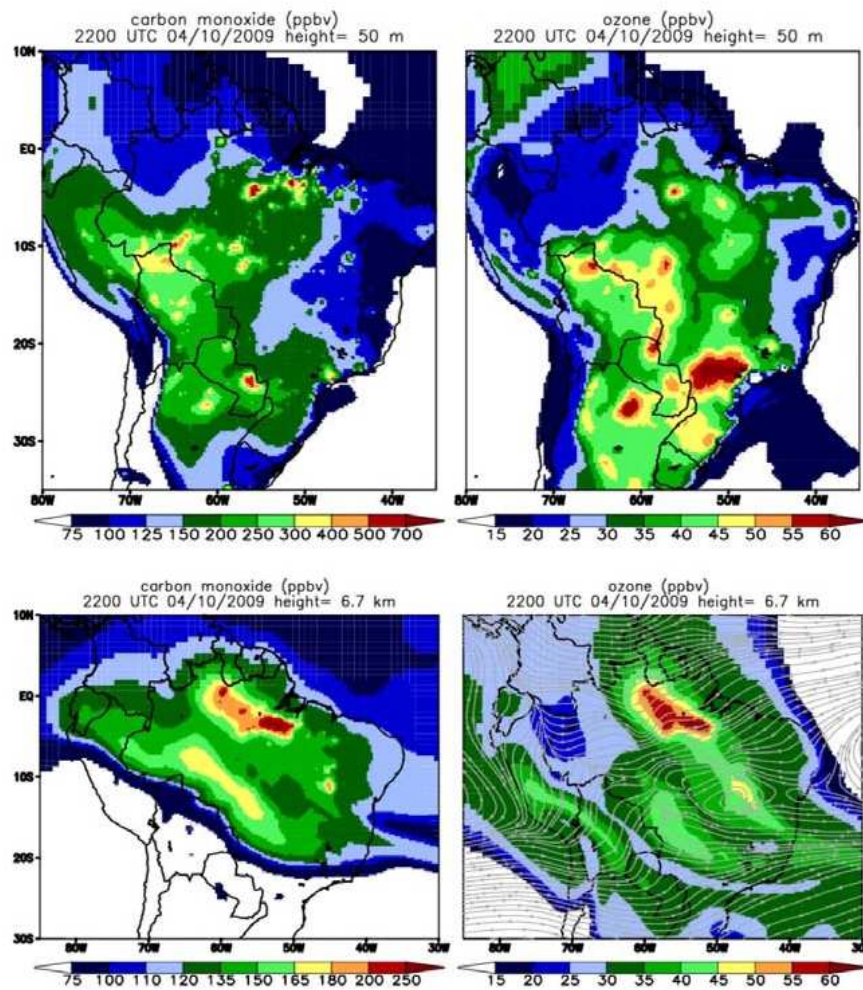


Figure 7 - Upper panels: real time forecast of carbon monoxide (left) and ozone (right) mixing ratio (ppbv) on surface level for 2200 UTC 04/10/2009. Bottom panels: the same but at the mean troposphere (~6.7 km above local surface).

4. CONCLUSIONS

We describe the new weather and air quality forecast system at CPTEC/INPE based on the CCATT-BRAMS system. CCATT-BRAMS is a new model version developed at INPE that includes state-of-the-art gas phase chemistry as well as chemical mechanisms, emissions and boundary condition pre-processor numerical tools.

The new operational forecast started on 2009 at CPTEC/INPE, providing daily chemical weather forecasting information over South America at <www.meioambientel.cptec.inpe.br>. The system performance is under evaluation, but so far it have demonstrated to be a powerful tool in understanding the synoptic controls on the biomass burning and urban plumes transport and has presented good prediction skills.

Current work focus on a new complete aerosol module to include emission, transport and transformation of urban, soil dust, volcanic and sea salt aerosols, as well as its impacts on atmospheric dynamics and air quality. These additional features then will be implemented at the INPE forecast system on 2010.

5. ACKNOWLEDGEMENTS

We acknowledge partial support of this work by CNPq (302696/2008-3, 309922/2007-0), Inter-American Institute for Global Change Research (IAI) CRN II 2017 e US National Science Foundation (Grant GEO-0452325).

6. REFERENCES

Andreae, M. O. Biomass burning: Its history, use and distribution and its impact on environmental quality and global climate. *Global Biomass Burning: Atmospheric, Climatic and Biospheric Implications*, ed. J. S. Levine, pp.

3-21, MIT Press, Cambridge, Mass., 1991.

Andreae, M., Rosenfeld, D., Artaxo, P., Costa, A., Frank, G., Longo, K. M., and Silva Dias, M. A. F. Smoking rain clouds over the Amazon. *Science*, 303, 1342-1345, 2004.

Artaxo, P., Martins, J., Yamasoe, M., Procópio, A., Pauliquevis, T., Andreae, M., Guyon, P., Gatti, L., Cordova, A. Physical and chemical properties of aerosols in the wet and dry season in Rondônia, Amazonia. *J. Geophys. Res.* 107 (D20): 49.1-49.14, 2002.

Berge, E. Coupling of wet scavenging of sulphur to clouds in a numerical weather prediction model. *Tellus*, 45B, 1-22, 1993.

Brazil Health 2006: an analysis of the health situation in Brazil, Secretaria de Vigilância em Saúde, Departamento de Análise de Situação em Saúde. – Brasília : Ministério da Saúde, Brasil, 620 p. : il. – (Série G. Estatística e Informação em Saúde) ISBN 85-334-1223-1, http://portal.saude.gov.br/portal/arquivos/pdf/saude_brasil_2006.pdf, 2006.

Djouad, R., Sportisse, B., Audiffren, N. Numerical simulation of aqueous-phase atmospheric models: use of a non-autonomous Rosenbrock method. *Atmospheric Environment*, vol. 36- 5, 873-879(7), 2002.

Freitas, S. R., Longo, K. M., Silva Dias, M., Silva Dias, P., Chatfield, R., Prins, E., Artaxo, P., Grell, G., and Recuero, F. Monitoring the transport of biomass burning emissions in South America. *Environmental Fluid Mechanics*, doi:10.1007/s10652-005-0243-7, 5 (1-2), 135-167, 2005.

Freitas, S. R., Longo, K. M., and Andreae, M. O. Impact of including the plume rise of vegetation fires in numerical simulations of associated atmospheric pollutants. *Geophys. Res. Lett.*, 33, L17808, doi:10.1029/2006GL026608, 2006.

Freitas, S. R., Longo, K. M., Chatfield, R.,

- Latham, D., Silva Dias, M. A. F., Andreae, M. O., Prins, E., Santos, J. C., Gielow R., and Carvalho Jr., J. A. Including the sub-grid scale plume rise of vegetation fires in low resolution atmospheric transport models. *Atmos. Chem. Phys.*, v. 7, p. 3385-3398, 2007.
- Freitas, S. R., Longo, K. M. Silva Dias, M. A. F., Chatfield, R., Silva Dias, P., Artaxo, P., Andreae, M. O., Grell, G., Rodrigues, L. F., Fazenda, A., and Panetta, J. The Coupled Aerosol and Tracer Transport model to the Brazilian developments on the Regional Atmospheric Modeling System (CATT-BRAMS) – Part 1: Model description and evaluation. *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 2843-2861, 2009.
- Hairer, E. and Wanner, G. Solving Ordinary Differential Equations II. Stiff and Differential-Algebraic Problems. Springer-Verlag, Berlin, 1991.
- Kaufman, Y. J. Remote Sensing of Direct and Indirect Aerosol Forcing. In: *Aerosol Forcing of Climate*. Ed. by R. J. Charlson and J. Heintzenberg, John Wiley & Sons Ltd., 1995.
- Koren I., Kaufman, Y., Remer, L. A., Martins, J. V. Measurement of the Effect of Amazon Smoke on Inhibition of Cloud Formation. *Science*, 303, 1342-1345, 2004.
- Longo, K. M., Freitas, S. R., Setzer, A., Prins, E., Artaxo, P., Andreae, M. O. The Coupled Aerosol and Tracer Transport model to the Brazilian developments on the Regional Atmospheric Modeling System. Part 2: model sensitivity to the biomass burning inventories. *Atmos. Chem. and Phys. Discussion*, 7, 8571-8595, 2007.
- Longo, K. M., Freitas, S. R., Silva Dias, M., Silva Dias, P. Numerical modelling of the biomass-burning aerosol direct radiative effects on the thermodynamics structure of the atmosphere and convective precipitation. In: *International Conference on Southern Hemisphere Meteorology and Oceanography (ICSHMO)*, 8, Foz do Iguaçu. Proceedings. São José dos Campos, INPE, 121-129. CD-ROM. ISBN 85-17-00023-4, 2006.
- Gery, M.W., Whitten, G.Z., Killus, J.P. and Dodge, M.C. A photochemical kinetics mechanism for urban and regional scale computer modeling. *J. Geophys. Res.*, 94, 12925-12956, 1989.
- Peuch, V.-H. et al. MOCAGE: Modèle de Chimie-Transport à Grande Echelle. Acte de l'Atelier de Modélisation de l'Atmosphère, 33-36, 1999.
- Prins, E., Feltz, J., Menzel, W., and Ward, D. An overview of GOES-8 diurnal fire and smoke results for SCAR-B and 1995 fire season in South America. *J. Geophys. Res.*, 103, D24, 31,821-31,835, 1998.
- Rosenfeld, D. TRMM observed first direct evidence of smoke from forest fires inhibiting rainfall. *Geophys. Res. Lett.* 26, 20, 3101, 1999.
- Seinfeld, J. and Pandis, S. *Atmospheric Chemistry and Physics*. John Wiley & Sons Inc., New York, 1998.
- Stockwell W. R., Kirchner F., Kuhn M., Seinfeld S. A. new mechanism for regional atmospheric chemistry modeling. *J. Geophys. Res.*, 102, D22, 25847-25879, 1997.
- Tie, X., Madronich, S., Walters, S., Zhang, R., Rasch, P., and Collins, W. Effect of clouds on photolysis and oxidants in the troposphere. *J. Geophys. Res.*, 108 (D20), 4642, 2003.
- Walko, R., Band, L., Baron, J., Kittel, F., Lammers, R., Lee, T., Ojima, D., Pielke, R., Taylor, C., Tague, C., Tremback, C., and Vidale, P. Coupled atmosphere-biophysics-hydrology models for environmental modeling. *J. Appl. Meteorol.*, 39, 6, 931-944, 2000.
- Wesely, M. L. Parameterizations of surface resistance to gaseous dry deposition in regional scale numerical models. *Atmos. Environ.*, 23, 1293-1304, 1989.