

# Anwendungsmöglichkeiten von 3-D-Chemie-Transport-Modellen für die PM<sub>x</sub>-Quellenidentifizierung

M. Memmesheimer, E. Friese, H.J. Jakobs, A. Ebel

EURAD-Projekt  
Förderverein des Rheinischen Instituts für Umweltforschung an der  
Universität zu Köln e.V.

## 1 Einleitung

Das EURAD-Modellsystem besteht aus den drei Hauptkomponenten MM5, EEM und CTM2 (siehe Abb. 1). Das Chemie-Transport Modell CTM2 (*Hass et al.*, 1995) verwendet die vom meso-skaligen meteorologischen Modell MM5 (*Grell et al.*, 1993) bereitgestellten meteorologischen Felder und die vom Emissionsmodell EEM (*Memmesheimer et al.*, 1991) gelieferten Emissionsraten für numerische Simulationen des Transports, der chemischen Umwandlung und der Deposition atmosphärischer Spurenstoffe über Europa. Die numerische Behandlung von Aerosolen erfolgt innerhalb des CTM2 durch das Aerosol-Dynamik-Modell MADE (**M**odales **A**erosol-**D**ynamik **M**odell für **E**uropa; *Ackermann et al.* (1998)).

Durch zielorientierte Emissionszenarien kann dieses Modellsystem eine wertvolle Hilfe bei der PM<sub>x</sub>-Quellenidentifizierung leisten. Beispielsweise kann die Wirkung unterschiedlicher Quellgruppen auf die Aerosolzusammensetzung und die Herkunft von Partikelbestandteilen untersucht werden.

## 2 Modelltechnik

Im Aerosol-Dynamik-Modell MADE wird die modale Technik (*Whitby*, 1978; *Whitby et al.*, 1991) zur Beschreibung der Größenverteilung und chemischen Zusammensetzung von Aerosolen verwendet. Sie beruht auf der Annahme, daß sich ein Aerosol in verschiedene intern gemischte Populationen – sogenannte Moden – unterteilen läßt, die jeweils durch eine analytische Verteilungsfunktion (hier Log-Normalverteilung) beschrieben werden können. In MADE werden Feinpartikel mit Durchmessern kleiner als ca 2.5 µm durch zwei wechselwirkende Moden (Aitken- und Akkumulationsmode) beschrieben. Grobpartikel bilden einen dritten Mode. Der kleinere der beiden Feinpartikelmoden repräsentiert frische Partikel, die entweder durch Nukleation – parametrisiert im Schwefelsäure/Wasser System – entstehen oder direkt in die Atmosphäre emittiert werden. Gealterte Partikel werden durch den größeren Mode repräsentiert. Beide Moden stehen über Koagulation in Wechselwirkung und können eine Massenänderung durch Kondensation und Evaporation gasförmiger Vorläufer erfahren. Grobpartikel werden durch Sedimentation im Schwerfeld der Erde aus der Atmosphäre entfernt. Chemisch setzt sich das Aerosol im Modell aus sekundären organischen und anorganischen Komponenten (SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>), primärem organischen und elementarem

Kohlenstoff in den beiden Feinpartikelmoden, sowie nicht identifizierbaren Partikeln anthropogenen Ursprungs in allen drei Moden zusammen (siehe Abb. 2). Die Behandlung der sekundären organischen Aerosolkomponenten erfolgt durch das Modul SORGAM (Schell, 2000). Zur Simulation der Gasphasenchemie, die u.a. die Vorläufersubstanzen der sekundären Partikelkomponenten liefert, stehen die Mechanismen RADM2 (Stockwell et al., 1990), ein modifizierter Euro-RADM (Stockwell und Kley, 1994; Zimmermann und Poppe, 1996) oder RACM (Stockwell et al., 1997) zur Verfügung.

Zwischen Aerosolpartikeln und Wolken besteht eine Vielzahl von Wechselwirkungen. Einerseits bilden gequollene Aerosolpartikel Kondensationskerne für die Entstehung von Wolkentropfen. Andererseits werden Größenverteilung und chemische Zusammensetzung eines Aerosols innerhalb einer Wolke durch verschiedene Prozesse modifiziert. Wasserlösliche gasförmige Substanzen dringen in Wolkentropfen ein. Ozon und Wasserstoffperoxid reagieren in der Flüssigphase irreversibel mit Schwefel in der Oxidationsstufe IV zu Sulfat. Das gebildete Sulfat verbleibt in der Partikelphase. Weitere zu nennende Prozesse sind die Auswaschung von Aerosolpartikeln oder die vertikale Durchmischung von Aerosolen in einer konvektiven Wolke. Im Wolkenmodul des CTM2 werden die Prozesse Auswaschung, vertikale Durchmischung, Naßphasenchemie (siehe Abb. 3) und nasse Deposition parametrisiert (Binkowski, 1999; Roselle und Binkowski, 1999).

### 3 Anwendungen

Das Modellsystem wurde anhand von Episoden im Sommer bzw. Winter 1997 erprobt. Sowohl die Rechnungen für die Sommerepisode (13. und 14. August) als auch für die Winterepisode (13. bis 20. Januar) wurden zunächst mit einer Horizontalauflösung von 125 km auf einem Modellgebiet durchgeführt, das ganz Europa überdeckt (N0-Gebiet). Die Fähigkeit des Modells zur Nestung wurde verwendet um Mitteleuropa mit einer Horizontalauflösung von 25 km abzudecken (N1-Gebiet). Für beide Modellrechnungen wird die Atmosphäre vertikal in 23 Schichten unterteilt. Das Aerosol besteht in diesen Modellrechnungen aus sekundären organischen und anorganischen Komponenten ( $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{NH}_4^+$ ), elementarem Kohlenstoff, primärem organischen Kohlenstoff und nicht identifizierbaren Partikeln anthropogenen Ursprungs.

Grobpartikelemissionen und Emissionen nicht identifizierbarer Partikel anthropogenen Ursprungs wurden einem Datensatz des TNO *Institute for Environmental Sciences* entnommen. Dieser Datensatz enthält jährliche Mittelwerte der Emissionsstärke von Partikeln anthropogenen Ursprungs mit einem Durchmesser kleiner als 10  $\mu\text{m}$  ( $\text{PM}_{10}$ ) und kleiner als 2,5  $\mu\text{m}$  ( $\text{PM}_{2.5}$ ) im Jahr 1993 mit einer horizontalen Auflösung von 1 x 0,5 Grad jeweils für 12 verschiedene Verursachergruppen. In Abb. 4 oben sind die dem TNO-Datensatz entnommenen und auf das N1-Gebiet transformierten Emissionsstärken von Grobpartikeln und nicht identifizierten Feinpartikeln anthropogenen Ursprungs dargestellt. Die Emissionsstärke elementaren Kohlenstoffs wurde mit einem Proportionalitätsfaktor 0,005 an die Emissionsstärke von Kohlenmonoxid gekoppelt. Diese Vorgehensweise ist durch die Tatsache motiviert, daß sowohl Kohlenstoffpartikel als auch Kohlenmonoxid Rückstände unvollständiger Verbrennungsprozesse sind. Die Emissionen sonstiger organischer Partikel werden aus einem mittleren in der Atmosphäre beobachteten Verhältnis von organischem Kohlenstoff zu elementarem Kohlenstoff von 1,5 abgeleitet. Durch dieses Verfahren erhalten die Emissionen kohlenstoffhaltiger Partikel eine räumliche und zeitliche Auflösung, die auch für Modellrechnungen auf

der urbanen Skala geeignet ist. Abb. 4 unten zeigt die Emissionsstärken für elementaren Kohlenstoff und primäre organische Partikel für das N1-Gebiet der Sommerperiode. Im Vergleich zu den TNO-Daten zeigt sich die verbesserte räumliche Auflösung. Abb. 5 bzw. Abb. 6 zeigt exemplarisch die  $PM_{10}$ -Massenkonzentration in der untersten Modellschicht in zeitlichen Abständen von vier Stunden am 14. August 1997 bzw. 18. Januar 1997 beginnend mit 2:00 UTC. Zur Modellvalidierung wurden zunächst prognostizierte  $PM_{10}$ -Konzentrationen mit stündlichen Messungen an 46 Stationen des Landesumweltamtes von Nordrhein Westfalen verglichen.  $PM_{10}$ -Meßwerte wurden durch Multiplikation der gemessenen Schwebstaubkonzentrationen mit dem Faktor 0,83 gewonnen. Abb. 7 bzw. Abb. 8 zeigt Zeitreihen gemessener und prognostizierter  $PM_{10}$ -Konzentrationen an den Stationen Dortmund Hörde, Köln Chorweiler und Eggegebirge für die Sommer- bzw. Winterperiode. Spitzenkonzentrationen, wie z.B. in Dortmund Hörde am 14., 15. und 16. Januar können vom Modell mit einer Horizontalauflösung von 25 km nicht wiedergegeben werden.

In einer weiteren Anwendung als Beispiel für den Einsatz des Modells bei der  $PM_x$ -Quellenidentifizierung wurden in einem Emissionszenario alle Emissionen von Gasphasenkomponenten in der bodennächsten Modellschicht über einem Gebiet, das ungefähr Bayern abdeckt, ausgeblendet. Dies ist exemplarisch für  $SO_2$  in Abb. 9 dargestellt. Anhand von Rückwärtstrajektorien (Abb. 10) zeigt sich, daß Luftmassen, die am 13.8. in Essen eintreffen, ihren Ursprung in Bayern haben. Abb. 11 links zeigt die  $PM_{10}$ -Konzentration in der bodennächsten Schicht am 13.8. als Ergebnis der Referenzsimulation ohne Emissionsreduktion. Auf der rechten Seite sind die absoluten Differenzen zwischen der Simulation mit Emissionsreduktion und der Referenzsimulation dargestellt.

## Danksagung

Das EURAD-Projekt wird vom BMBF gefördert (AFO2000, AFS, TFS). Die hier vorgestellten FuE-Anwendungen wurden durch die Förderung durch das Landesumweltamt NRW ermöglicht. Die Simulationsrechnungen wurden durch das RRZK der Universität zu Köln, das Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln sowie das Forschungszentrum Jülich (ZAM, ICG2, ICG3) unterstützt. Dem Ford Forschungszentrum Aachen danken wir für die Unterstützung bei den Arbeiten an den Aerosolmodulen SORGAM und MADE. Emissionsdaten wurden von der TNO, dem Umweltbundesamt und EMEP zur Verfügung gestellt. Meteorologische Daten wurden vom ECMWF und NCEP zur Verfügung gestellt.

## Literatur

- Ackermann, I. J., H. Hass, M. Memmesheimer, A. Ebel, F. S. Binkowski und U. Shankar**, Modal aerosol dynamics model for Europe: Development and first applications, *Atmos. Environ.*, *32*, 2981–2999, 1998.
- Binkowski, F. S.**, Aerosols in Models–3 CMAQ, in *Science Algorithms of the EPA Models–3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) Modeling System, EPA 600/R-99-030*, herausgegeben von D. W. Byun und J. K. S. Ching, U.S. Environ. Prot. Agency, Research Triangle Park, N.C., 1999.
- Grell, G. A., J. Dudhia und D. R. Stauffer**, A description of the fifth generation Penn State/NCAR mesoscale model (MM5); NCAR TN-398+IA, technical report, National Center for Atmospheric Research, Boulder, Colorado, 1993.
- Hass, H., H. Jakobs und M. Memmesheimer**, Analysis of a regional model (EURAD) near surface gas concentration predictions using observations from networks, *Meteorol. Atmos. Phys.*, *57*, 2981–2999, 1995.
- Memmesheimer, M., J. Tippke, A. Ebel, H. Hass, H. J. Jakobs und M. Laube**, On the Use of EMEP Emission Inventories for European Scale Air Pollution Modelling with the EURAD Model, in *Proceedings of the EMEP Workshop on Photooxidant Modelling for Long-Range Transport in Relation to Abatement Strategies*, herausgegeben von J. Pankrath, 307–324, Umweltbundesamt, Berlin, 1991.
- Roselle, S. und F. S. Binkowski**, Cloud Dynamics and Chemistry, in *Science Algorithms of the EPA Models–3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) Modeling System, EPA 600/R-99-030*, herausgegeben von D. W. Byun und J. K. S. Ching, U.S. Environ. Prot. Agency, Research Triangle Park, N.C., 1999.
- Schell, B.**, *Die Behandlung sekundärer organischer Aerosole in einem komplexen Chemie-Transport Modell*, Dissertation, Universität zu Köln, 2000.
- Stockwell, W. R., P. Middleton und J. S. Chang**, The second generation regional acid deposition model chemical mechanism for regional air quality modeling, *J. Geophys. Res.*, *95 (D10)*, 16343–16367, 1990.
- Stockwell, W. R., F. Kirchner, M. Kuhn und S. Seefeld**, A new mechanism for regional atmospheric chemistry modeling, *J. Geophys. Res.*, *102 (D22)*, 25847–25879, 1997.
- Stockwell, W. R. und D. Kley**, The Euro-RADM mechanism. A Gas-Phase Chemical Mechanism for European Air Quality Studies, technical report, Institut für Chemie und Dynamik der Geosphäre 2: Chemie der belasteten Atmosphäre, Forschungszentrum Jülich GmbH, 52425 Jülich, 1994.
- Whitby, K. T.**, The physical characteristics of sulfur aerosols, *Atmos. Environ.*, *12*, 135–159, 1978.

**Whitby, E. R., P. H. McMurry, U. Shankar und F. S. Binkowski**, Modal Aerosol Dynamics Modelling. Rep. 600/3-91/020, (NTIS PB91-161729/AS Natl. Tech. Inf. Serv., Springfield, Va.), Atmos. Res. and Exposure Asses. Lab., technical report, U.S. Environ. Prot. Agency, Research Triangle Park, N.C., 1991.

**Zimmermann, J. und D. Poppe**, A supplement for the RADM2 chemical mechanism: The photooxidation of isoprene, *Atmos. Environ.*, *30*, 1255–1269, 1996.

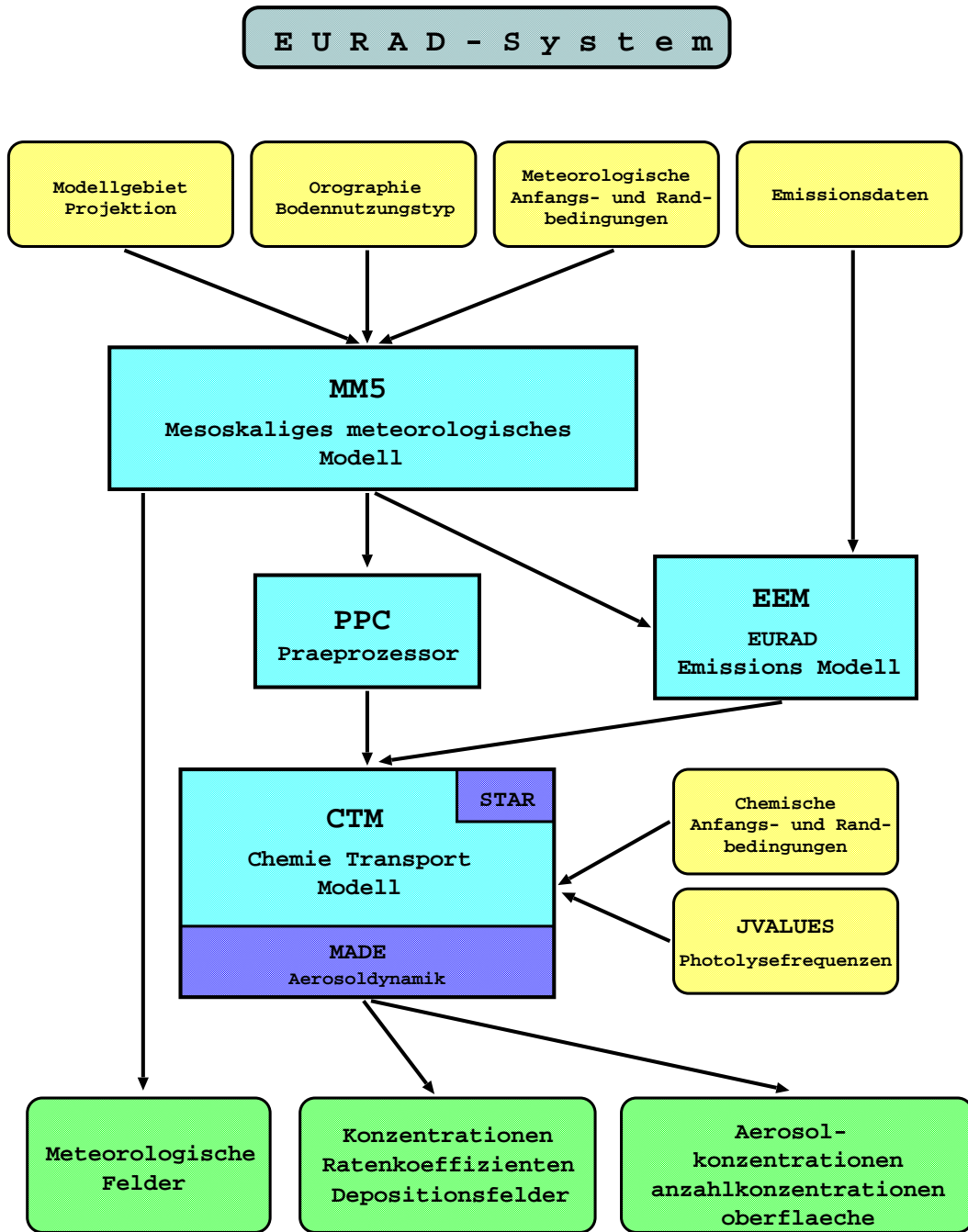


Abbildung 1: Das EURAD-Modellsystem

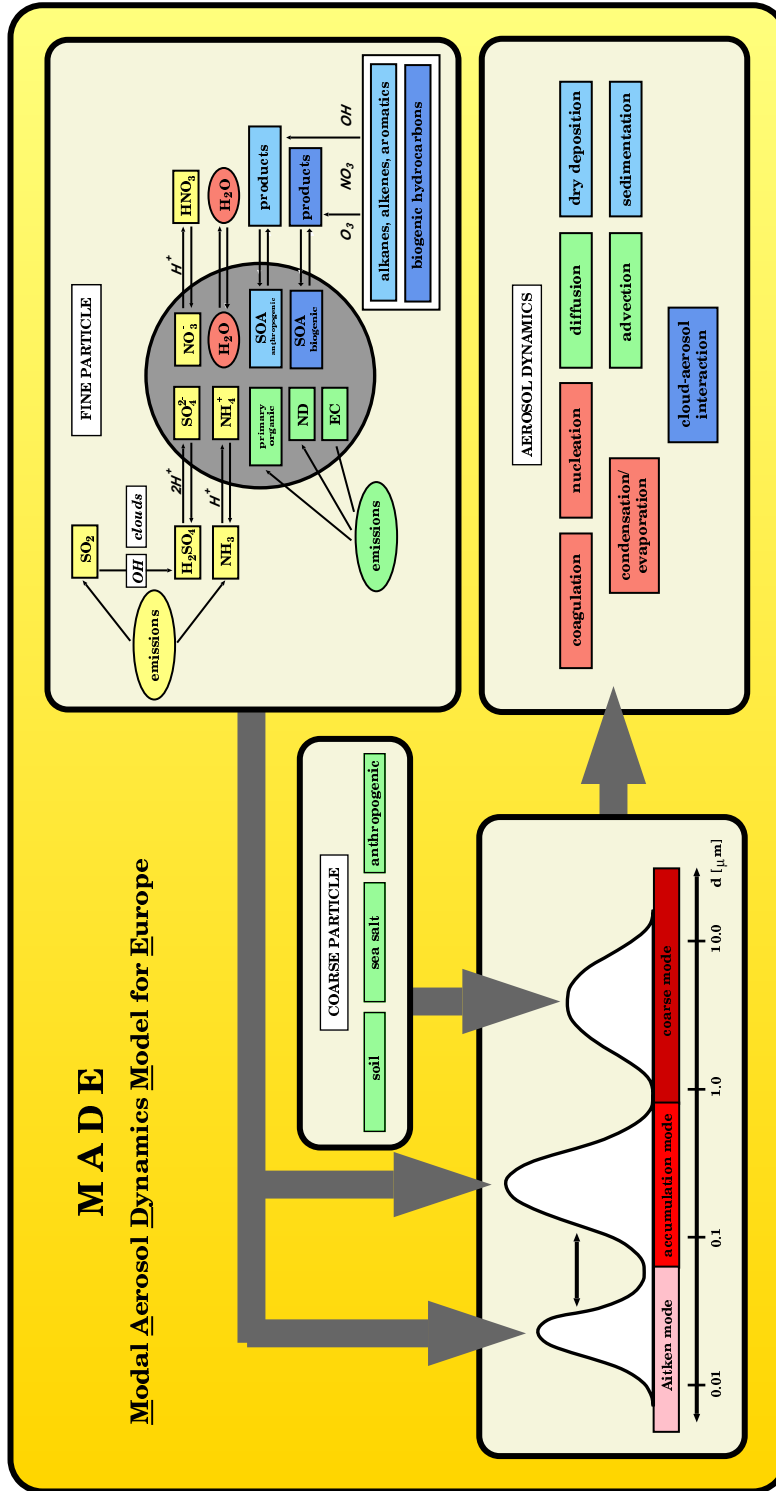


Abbildung 2: Das Aerosol-Dynamik Modell MADE

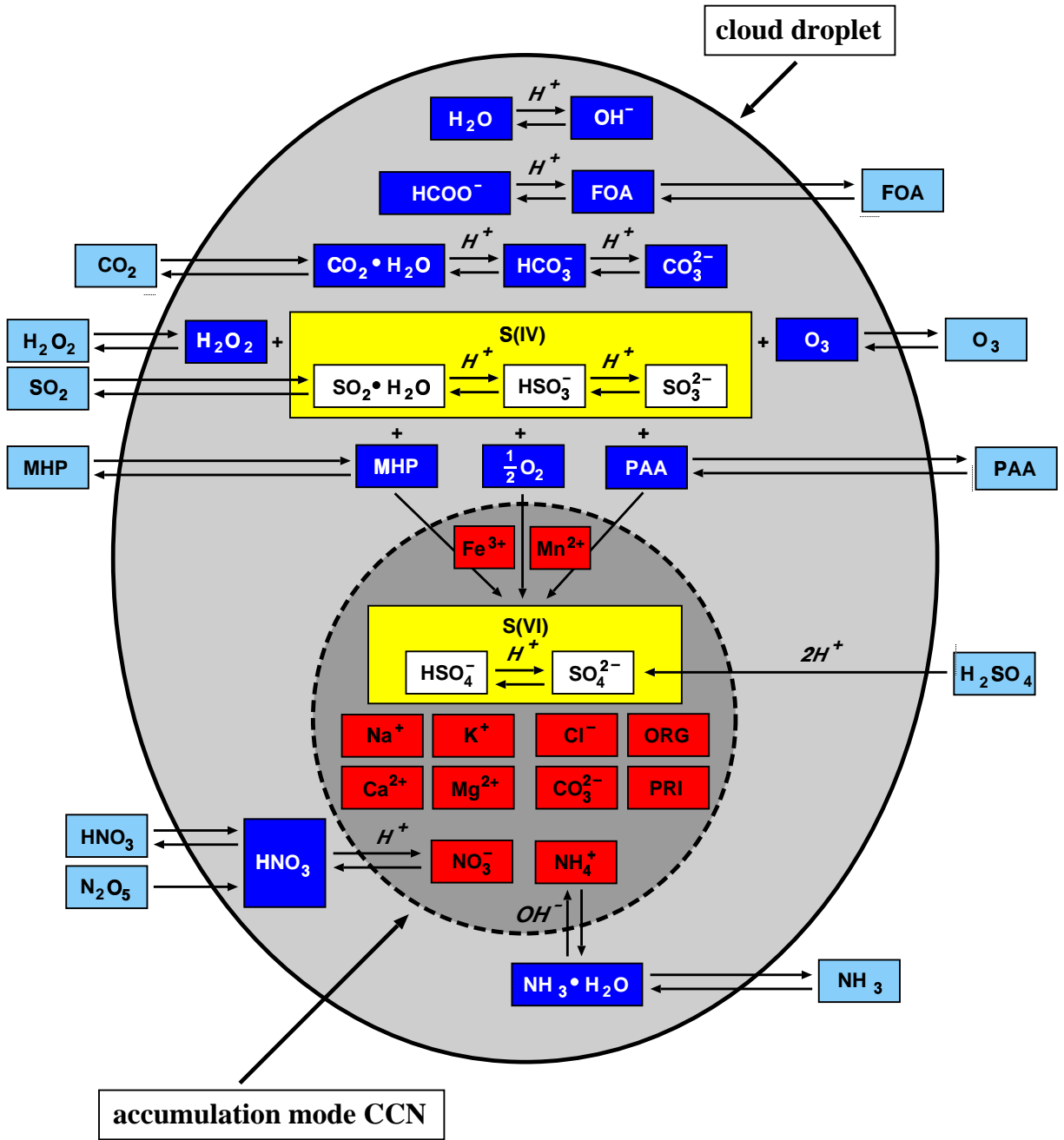


Abbildung 3: Schematische Darstellung der Naßphasenchemie im Wolkenmodul des CTM2



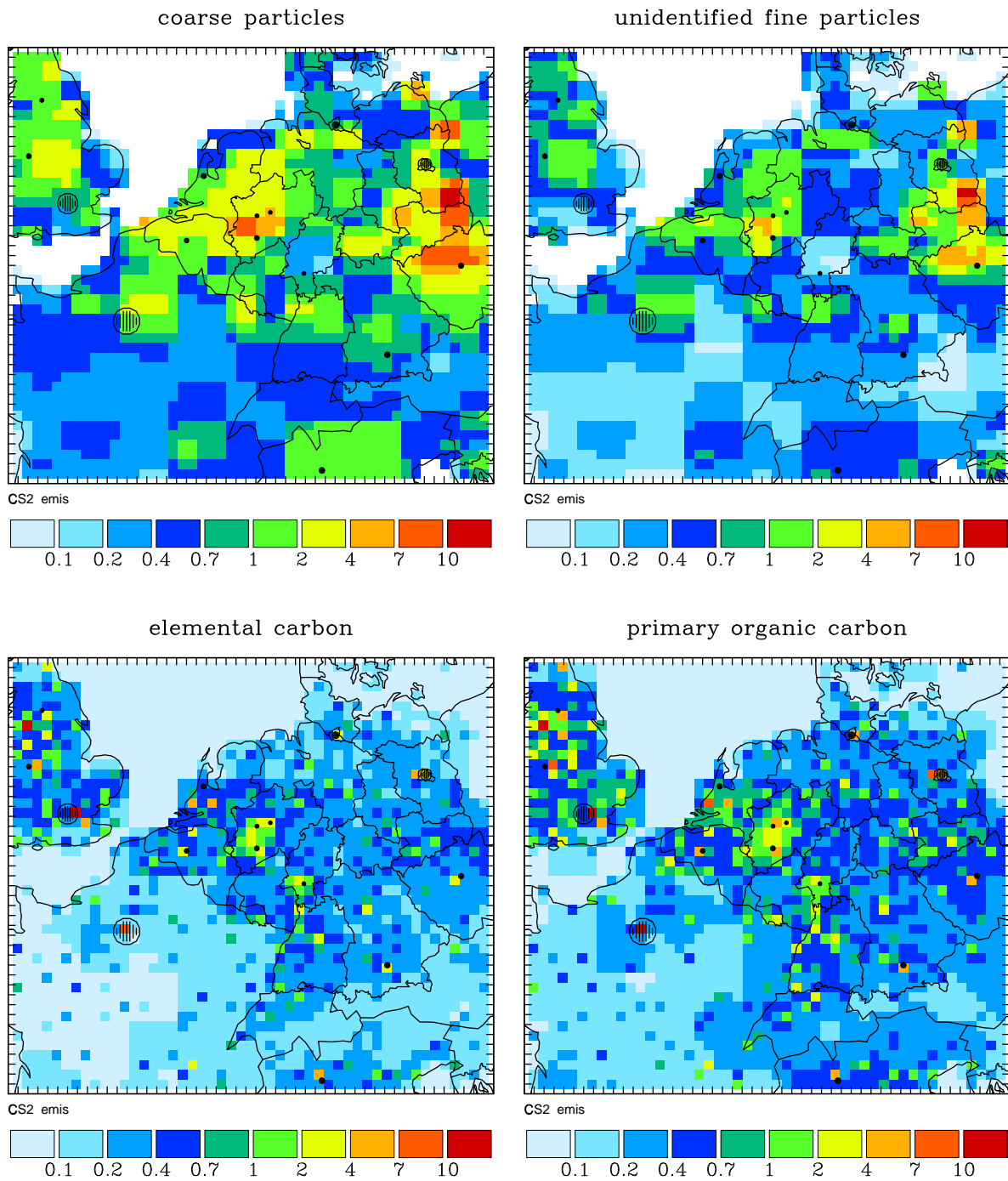


Abbildung 4: Partikelemissionen für das N1-Gebiet der Sommerperiode 1997 in Tonnen pro Tag. Oben links: Grobpartikel, oben rechts: nicht identifizierbare Feinpartikel, unten links: elementarer Kohlenstoff, unten rechts: primärer organischer Kohlenstoff.

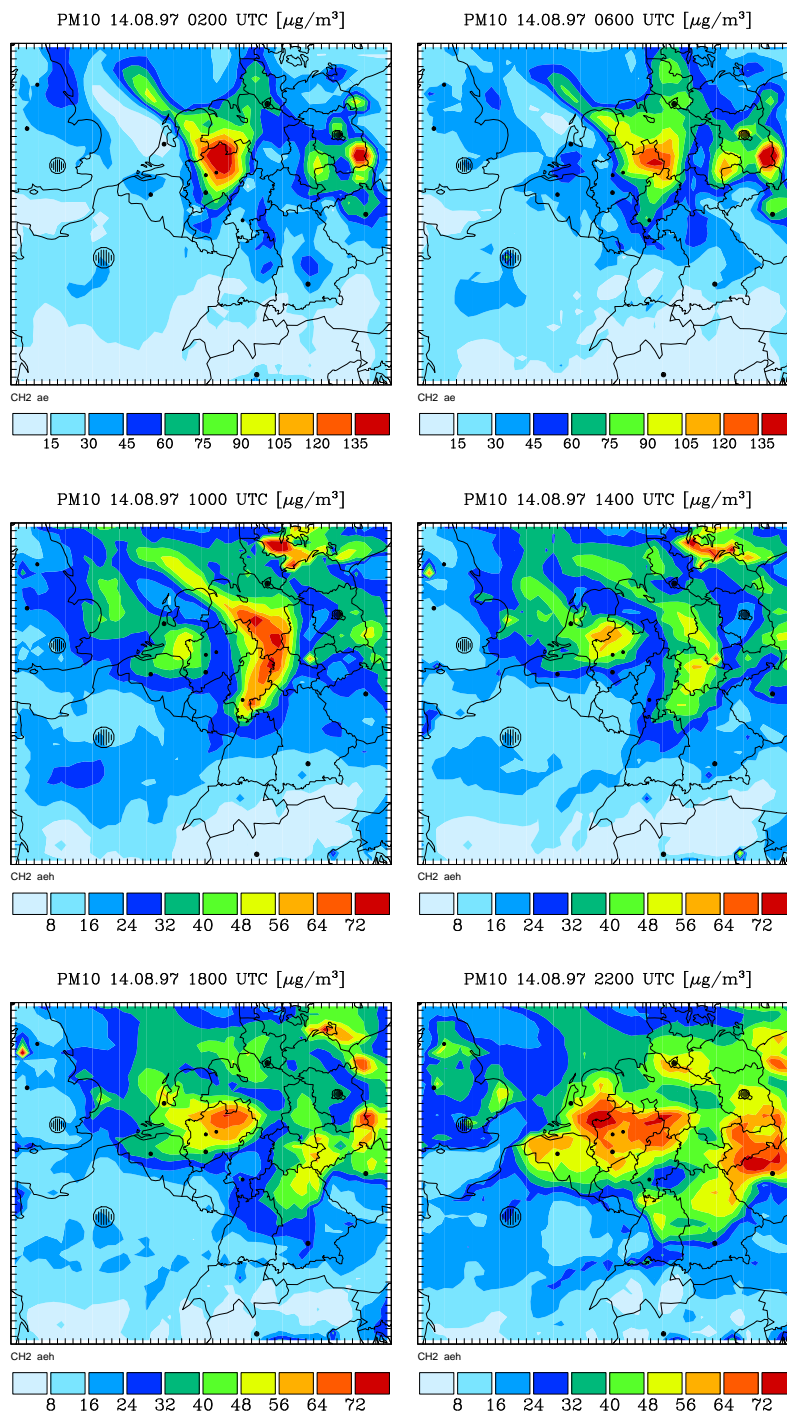


Abbildung 5: PM<sub>10</sub>-Konzentrationen in der oberflächennächsten Modellschicht für den 14.8.1997 in Zeitabständen von 4 Stunden, beginnend mit 02:00 UTC (oben links).

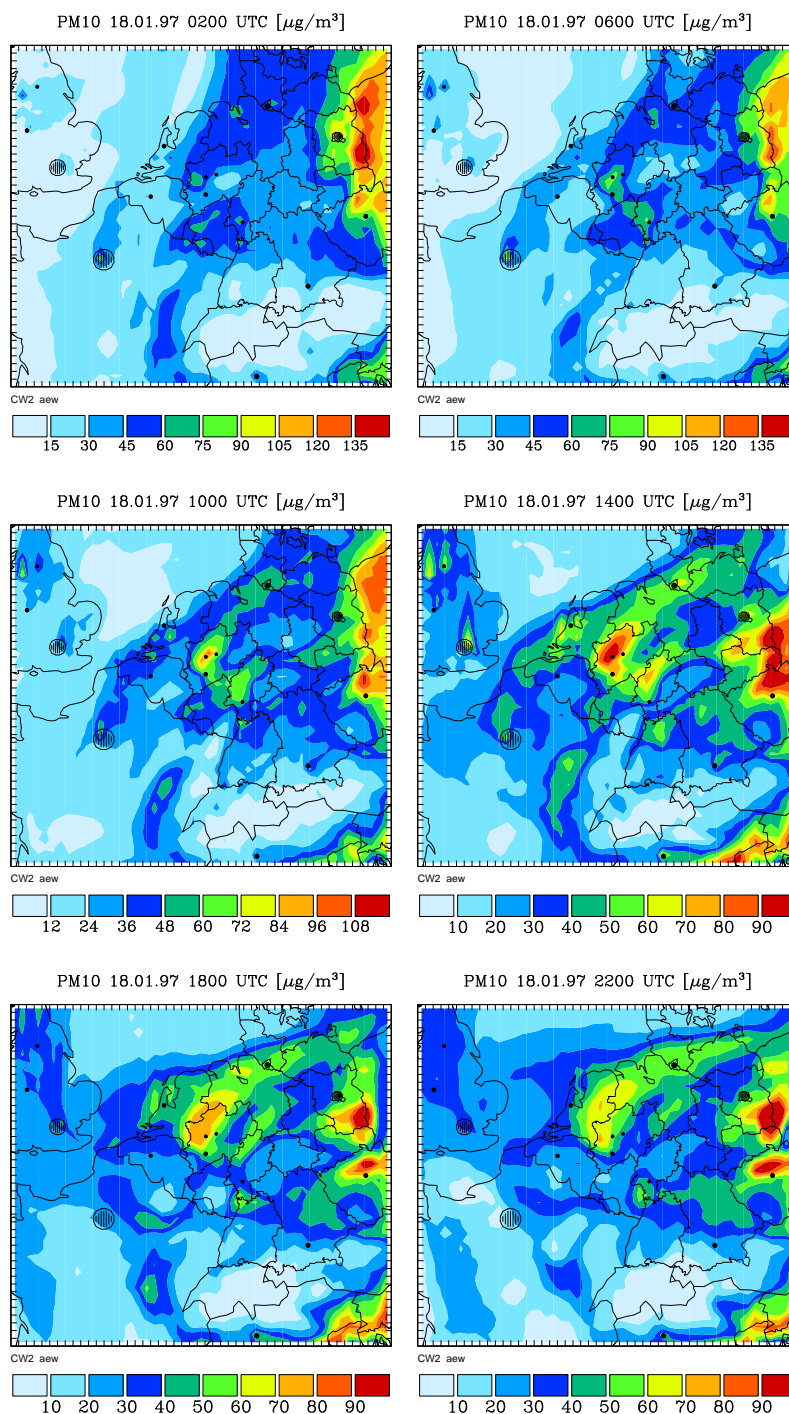


Abbildung 6: PM<sub>10</sub>-Konzentrationen in der oberflächennächsten Modellschicht für den 18.1.1997 in Zeitabständen von 4 Stunden, beginnend mit 02:00 UTC (oben links).

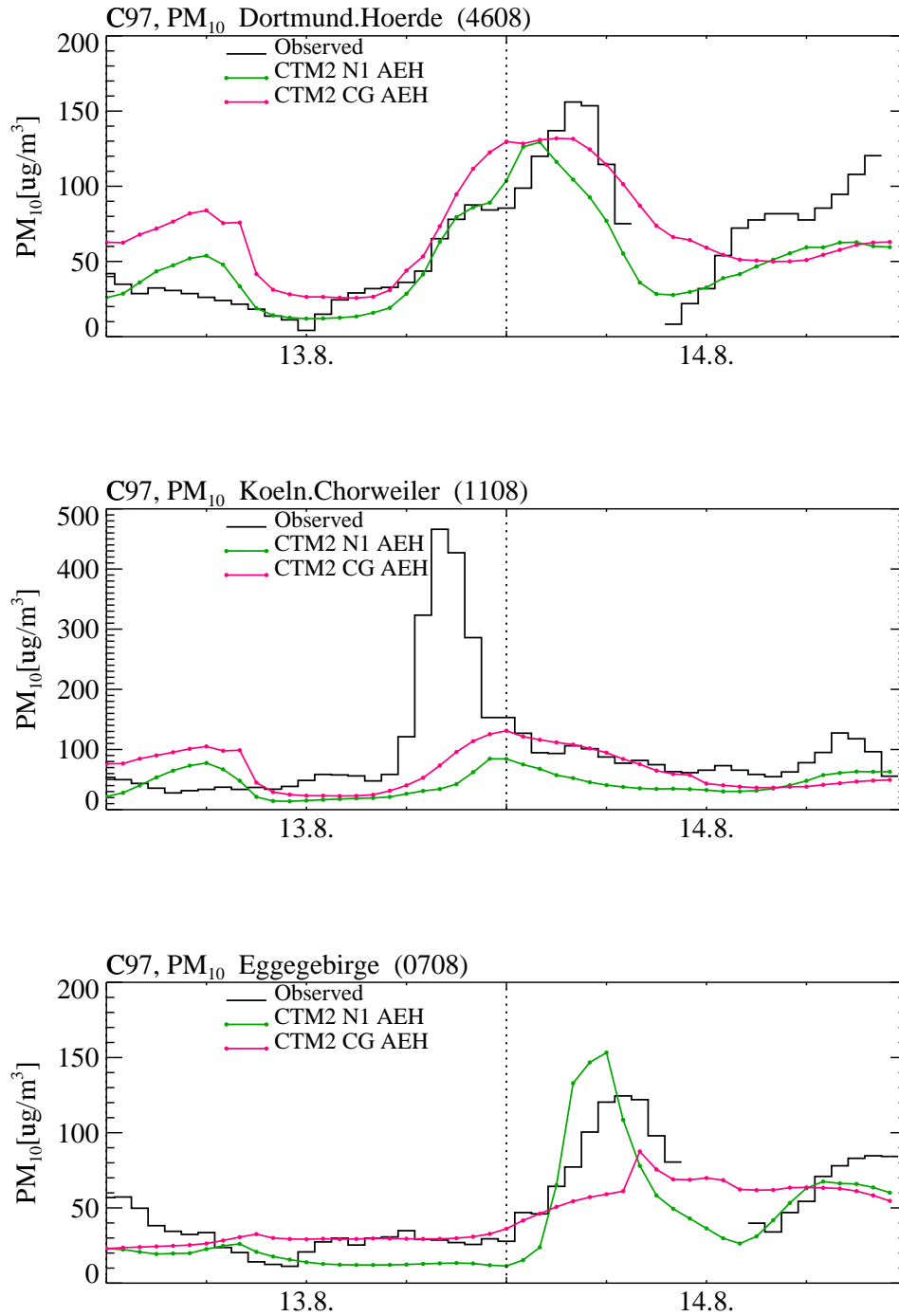


Abbildung 7: Zeitreihen gemessener (schwarz) und prognostizierter (rot: N0-Simulation, grün: N1-Simulation) PM<sub>10</sub>-Konzentrationen vom 13.8.1997 00:00 UTC bis zum 14.8.1997 24:00 UTC für die Meßstationen des Landesumweltamtes Nordrhein Westfalen Dortmund Hörde (oben), Köln Chorweiler (mitte) und Eggegebirge (unten).

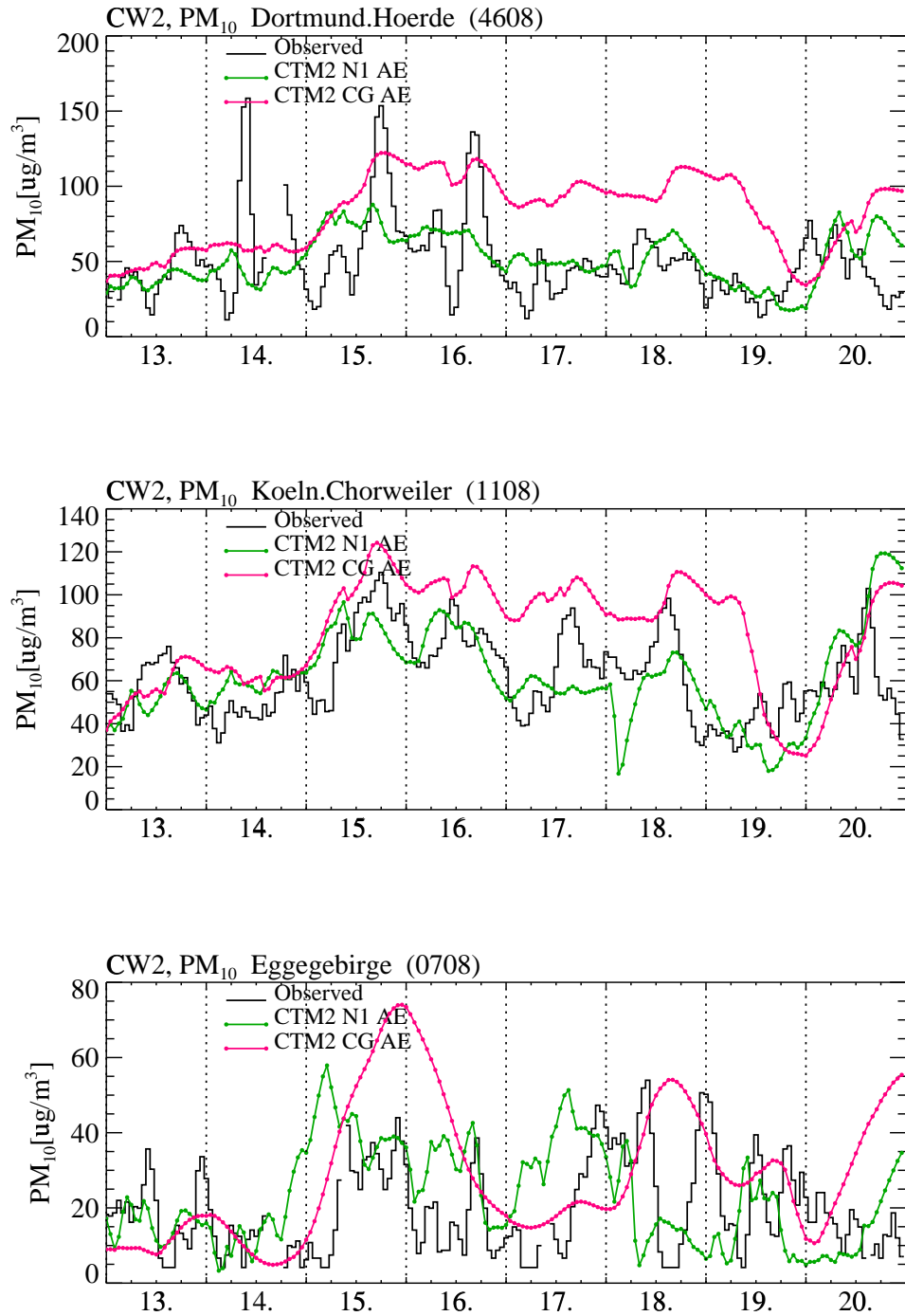
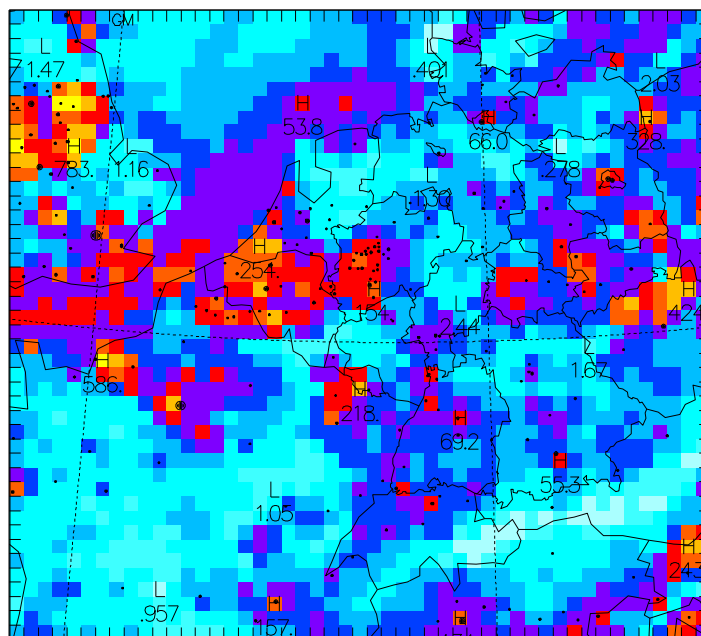


Abbildung 8: Zeitreihen gemessener (schwarz) und prognostizierter (rot: N0-Simulation, grün: N1-Simulation) PM<sub>10</sub>-Konzentrationen vom 13.1.1997 00:00 UTC bis zum 20.1.1997 24:00 UTC für die Meßstationen des Landesumweltamtes Nordrhein Westfalen Dortmund Hörde (oben), Köln Chorweiler (mitte) und Eggegebirge (unten).

**EMISSION  
SO2  
06 UTC  
13.08.1997**



**NULLFALL  
BAYERN**

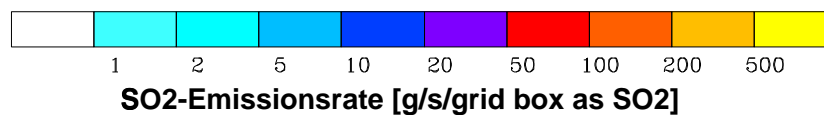
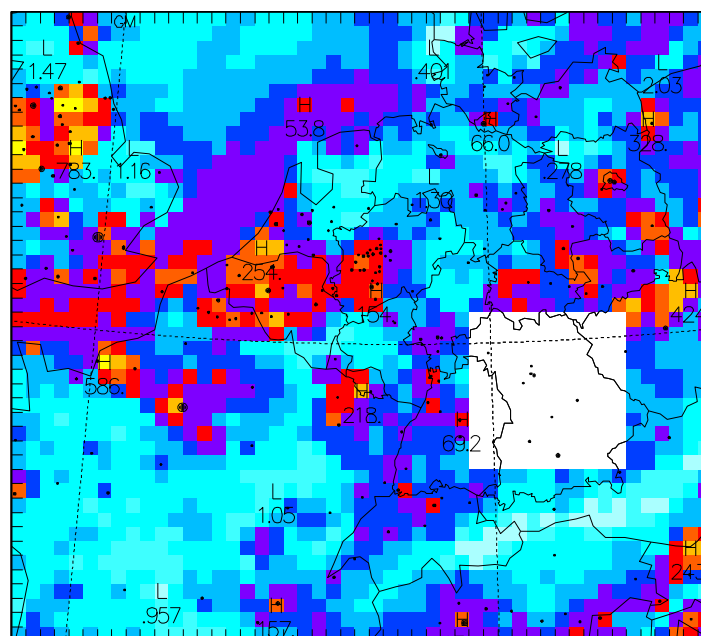


Abbildung 9: SO<sub>2</sub>-Emissionen für das N1-Gebiet mit (unten) und ohne (oben) Emissionsreduktion über Bayern in g/s pro Gitterbox.

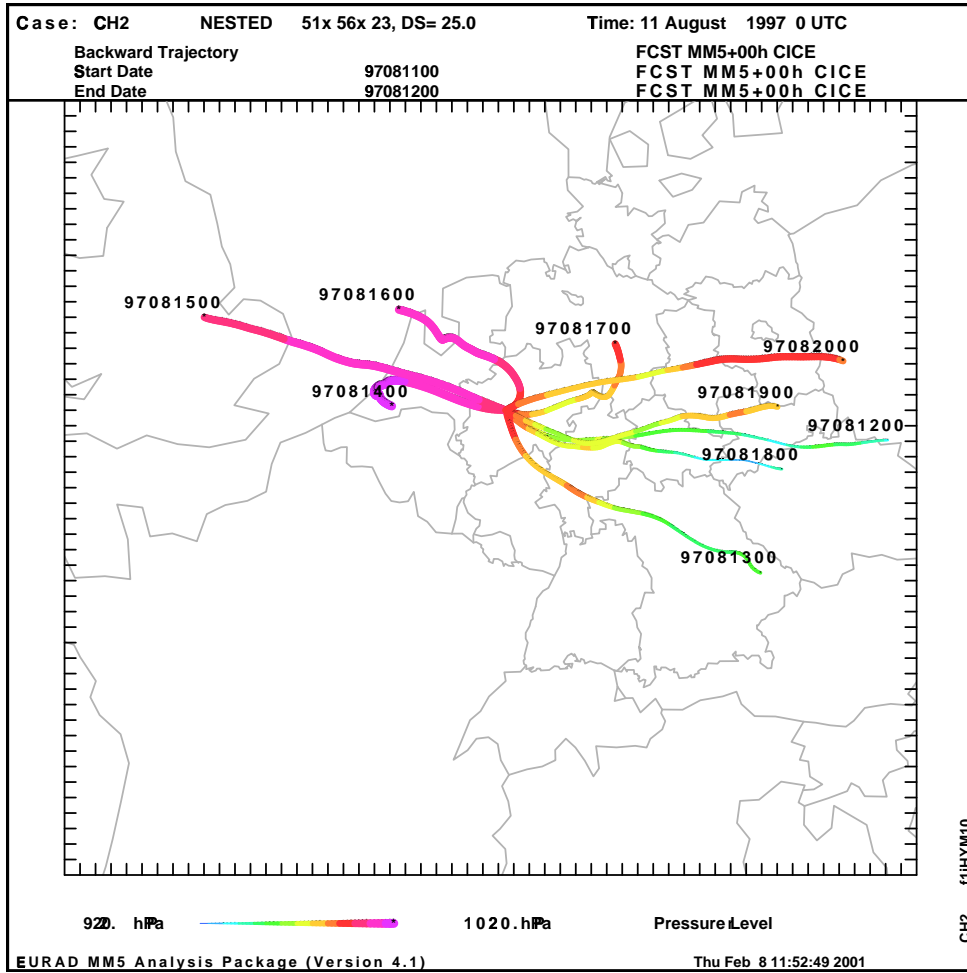


Abbildung 10: Rückwärtstrajektorien für Essen für den 12.8. bis 20.8.1997 jeweils 00:00 UTC.

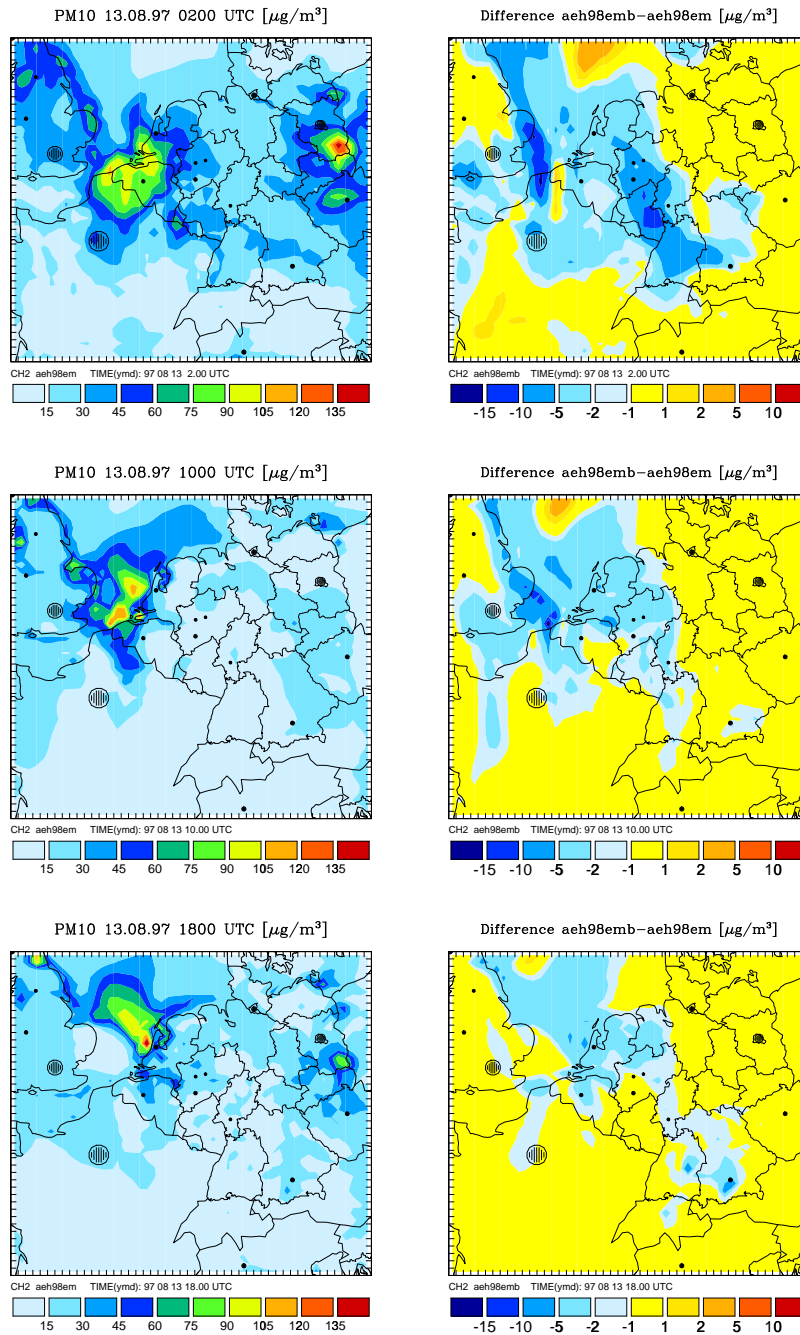


Abbildung 11: PM<sub>10</sub>-Konzentration in der oberflächennächsten Modellschicht als Ergebnis des Referenzlaufs (links) und absolute Differenzen in der PM<sub>10</sub>-Konzentration zwischen Simulation mit Emissionsreduktion über Bayern und Referenzlauf (rechts) für den 13.8.1997 in Zeitabständen von 6 Stunden, beginnend mit 02:00 UTC.