

Atmosphäre: Luftchemiemodellierung

Renate Forkel (renate.forkel@kit.edu)

IMK-IFU („Campus Alpin“) Garmisch-Partenkirchen



Simulation der chemischen Umwandlung und von Aerosolprozessen sowie des Transports von Spurengasen und Partikeln in der Troposphäre (**Luftqualität**) mit **numerischen Modellen**

- Einleitung, Übersicht über Modellarten
- Prozessmodelle / Boxmodelle
 - Chemische Umwandlung
 - Aerosolprozesse
- Eulersche Modelle
 - Bilanzgleichung für Spurenstoffe in der Atmosphäre
 - Emissionen
 - Modellbeispiele
- Lagrangesche Modelle
 - Bilanzgleichung für Spurenstoffe in der Atmosphäre
 - Modellbeispiele

Warum Luftqualitätsmodellierung?

Einfluss der Luftqualität auf Gesundheit, Pflanzenwachstum, Materialien

- Emissionsszenarien/Städtebau
- Störfälle (Anthropogen/ natürlichen Ursprungs (z.B. Vulkanausbruch))
- Klimaszenarien
- Tägliche Vorhersage (Grenzwertüberschreitungen)

**Erste Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Bundes-
Immissionsschutzgesetz**

(Technische Anleitung zur Reinhaltung der Luft – TA Luft, Anhang 3)

http://www.umweltbundesamt.de/luft/messeinrichtungen/TALuft_020724.pdf

Was wird bei der Luftqualitätsmodellierung berechnet?

Zeitliche Änderung der Konzentration $c(\mathbf{x},t)$ (bzw. des Mischungsverhältnisses) eines luftgetragenen Spurenstoffs

Prozesse:

- Transport (Advektion, turbulenter Transport, Konvektion)
- Chemie (Produktion und Abbau durch chemische Reaktionen)
- sonstige Quellen (Emissionen [anthropogen, natürlich], bei Aerosolpartikeln: Nukleation, ...)
- sonstige Senken (Deposition, bei Gasen: Partikelbildung, Auswaschen ...)

- **Mark Z. Jacobson, Fundamentals of Atmospheric Modeling**, 2nd Edition, ISBN: 9780521548656
Vorlesungsfolien dazu auf
<http://www.stanford.edu/group/efmh/FAMbook2dEd/index.html>
- **John H. Seinfeld, Spyros N. Pandis, Atmospheric Chemistry and Physics**, 2nd Edition, ISBN 978-0-471-72018-
http://www.knovel.com/web/portal/browse/display?_EXT_KNOVEL_DISPLAY_bookid=2126
- **Modellsammlungen im Internet (kein Anspruch auf Vollständigkeit!)**
<http://www.mi.uni-hamburg.de/index.php?id=539>
<http://pandora.meng.auth.gr/mds/strquery.php?wholedb>

Modellarten

- **Drei grundsätzlich unterschiedliche Ansätze**
(können aber miteinander kombiniert werden):

1. Phänomenologische Modelle

- ➔ beschreiben z.B. Abnahme der Konzentration im Umfeld einer Quelle
Aber: keine Berücksichtigung der Gründe für Ausbreitung
einer Substanz

2. Statistische Modelle

- Zeitreihen
- Markovmodell
- ➔ es werden stochastische Gesetzmäßigkeiten zugrunde gelegt
Aber: ebenfalls keine Differenzierung nach Einflussfaktoren

3. Mechanistische Modelle

■ Prozessmodelle ohne räumliche Spezifikation

- Beschreibung einzelner physikalischer oder chemischer Prozesse (z.B. chemische Umwandlung, Wachsen von Aerosolpartikeln); sind üblicherweise als Module Bestandteil von Ausbreitungsmodellen

■ Eulersches Ausbreitungsmodell/Chemie-Transport-Modell (CTM)

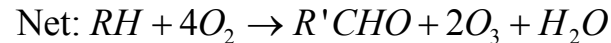
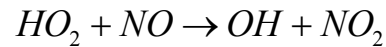
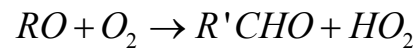
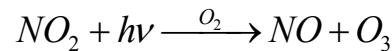
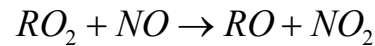
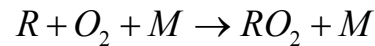
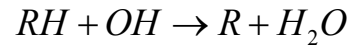
- Ein numerisches Modell, bei der die physikalischen Gleichungen diskretisiert und für alle Gitterpunkte eines ortsfesten „numerischen Gitters“ gelöst werden

■ Lagrangesches Ausbreitungsmodell oder Partikelmodell:

- Ein numerisches Modell ohne ortsfestes „numerisches Gitter“. Die Modellgleichungen werden für Raumpunkte oder Volumenelemente gelöst, die sich mit der Strömung mitbewegen (**Trajektorienmodell**) („Zählgitter“ zum Bezug auf Eulersche Betrachtungsweise)

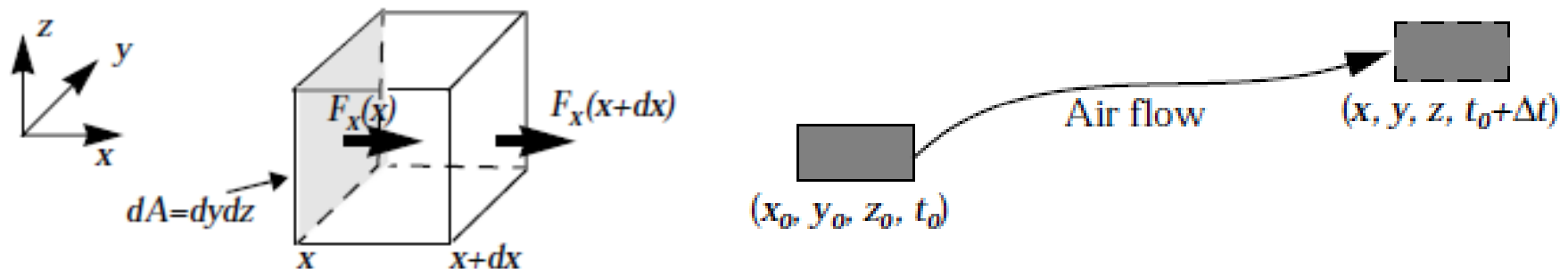
Mechanistische Modelle

Prozessmodelle (Stand-alone als Boxmodell oder Teilmodul)



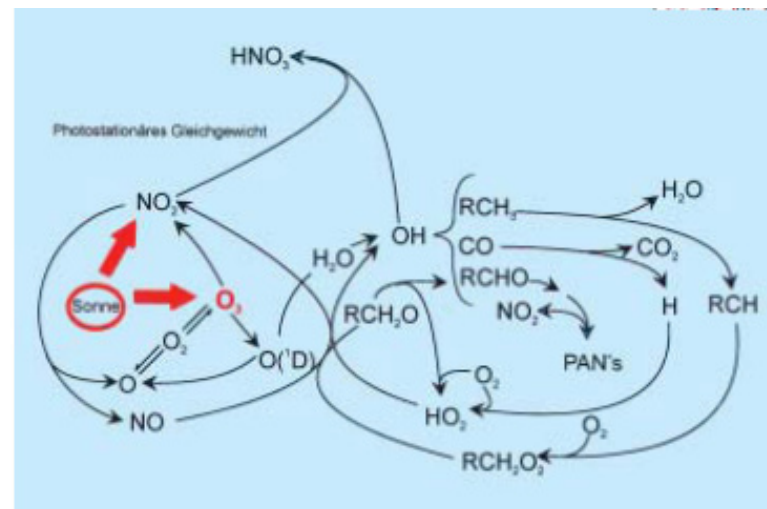
z.B. VOC-Oxidation und
Ozonbildung
(R steht für VOC-Rest)

Eulersche Modelle \Leftrightarrow Transportmodelle \Leftrightarrow Lagrangesche Modelle mit oder ohne Chemie



Prozessmodelle

Gasphasenchemie



Chemische Reaktionen

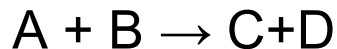
■ Reaktionen 1. Ordnung



$$\frac{d[A]}{dt} = -k[A]$$

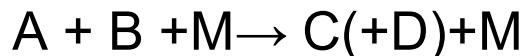
z.B. Photolyse $\frac{d[A]}{dt} = -J[A]$

■ Reaktionen 2. Ordnung



$$\frac{d[A]}{dt} = \frac{d[B]}{dt} = -k[A][B]$$

■ Reaktionen 3. Ordnung (mit Stoßpartner M (inert oder so viel, dass eine Änderung nicht relevant ist, z.B. Stickstoff))



$$\frac{d[A]}{dt} = \frac{d[B]}{dt} = -k'[A][B]$$

$$k' = k[M] = k \frac{p^m}{RT}$$

■ Arrhenius-Form

$$k = A \exp\left(\frac{E}{RT}\right)$$

■ Photolysefrequenz

$$J = \int_0^{\infty} q(\lambda) \sigma(\lambda) I(\lambda) d\lambda$$

I : Strahlungsfluss auf Kugeloberfläche (Strahlungsmodell)

σ : Absorptionsquerschnitt (abh. von Molekül)

q : Quantenausbeute (abh. von Molekül)

(neben der Berechnung von J werden mitunter auch vereinfachte Parametrisierungen für J verwendet, z.B. http://www.emep.int/ozone/lagr_pho/photolysis_rates.html)

Chemiemechanismen: Einfaches Beispiel

■ NO_x-Ozon-Gleichgewicht (bei Abwesenheit von VOC oder sonstigen Radikalquellen!)



Differentialgleichung

$$\frac{d[\text{NO}]}{dt} = \text{PROD} - \text{LOSS} = J_{\text{NO}_2}[\text{NO}_2] - k_3[\text{NO}][\text{O}_3]$$

⇒ **Photostationäres Gleichgewicht (PROD=LOSS, J>0):**

$$[\text{O}_3] = \frac{J_{\text{NO}_2}}{k_3} \frac{[\text{NO}_2]}{[\text{NO}]}$$

■ System von Differentialgleichungen der Form

$$\frac{d[C_i]}{dt} = PROD - LOSS = P_i(\mathbf{C}_{j \neq i}) - g(\mathbf{C}_{j \neq i})[C_i]$$

Große Unterschiede in den Reaktionsgeschwindigkeiten (und damit g)

⇒ **steifes Differentialgleichungssystem:**

numerische Lösung z.B. mit einfachen expliziten Verfahren (d.h. $c(t+\Delta t) = c(t) + \Delta t(P(t) - g(t)c(t))$) ist nur mit extrem kleinen Zeitschritten möglich

Effiziente numerische Lösung

- Implizite Lösungsverfahren

$$\frac{[C_i(t + \Delta t) - C_i(t)]}{\Delta t} = P_i(\mathbf{C}_{j \neq i}(t + \Delta t)) - g(\mathbf{C}_{j \neq i}(t + \Delta t))[C_i(t + \Delta t)]$$

Auflösung nach $C_i(t + \Delta t) \Rightarrow$ Lineares Gleichungssystem lösen

- Schnelle Reaktionen eliminieren
z.B. QSSA: Quasi steady state approximation

- **Solverpaket KPP** (Kinetical PreProcessor)

„Übersetzt“ Liste mit Chemiemechanismus in Fortran, C oder Matlab-Code, Auswahl verschiedener (meist impliziter) Solver

<http://people.cs.vt.edu/~asandu/Software/Kpp>

Atmos. Chem. Phys., 6, 187–195, 2006, www.atmos-chem-phys.org/acp/6/187/

- Übliche Mechanismen für die troposphärischen Gasphasenchemie beschreiben die Umwandlung von ca. 30-100 Spezies und umfassen ca. 100-300 Reaktionen, davon ~ 20-30 Photolysereaktionen
- Hierbei wird für die Anwendung in Luftqualitätsmodellen die Chemie der Kohlenwasserstoffe stets vereinfacht behandelt (Zusammenfassung ähnlicher VOC in Gruppen: „**Lumping**“)

- **Gängige Mechanismen für Luftqualitätsmodelle**
RADM2, RACM
CBM4, CBM-Z
SAPRC (<http://www.cert.ucr.edu/~carter/SAPRC/>)
...

- **Näherungsweise expliziter Referenzmechanismus MCM:**
<http://mcm.leeds.ac.uk/MCM>

Komplexe Gasphasenchemiemechanismen

Table 2b. The RACM Mechanism

Reaction No.	Reaction	A_i , $\text{cm}^3 \text{s}^{-1}$	E/R , K	k^a
<i>Inorganic Reactions</i>				
(R24)	$\text{O}^3\text{P} + \text{O}_2 \rightarrow \text{O}_3$	Table 2f		1.50×10^{-14}
(R25)	$\text{O}^3\text{P} + \text{O}_3 \rightarrow 2 \text{O}_2$	8.00×10^{-12}	2060	7.96×10^{-15}
(R26)	$\text{O}^1\text{D} + \text{N}_2 \rightarrow \text{O}^3\text{P} + \text{N}_2$	1.80×10^{-11}	-110	2.60×10^{-11}
(R27)	$\text{O}^1\text{D} + \text{O}_2 \rightarrow \text{O}^3\text{P} + \text{O}_2$	3.20×10^{-11}	-70	4.05
(R28)	$\text{O}^1\text{D} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{HO} + \text{HO}$	2.20×10^{-10}		2.20
(R29)	$\text{O}_3 + \text{HO} \rightarrow \text{HO}_2 + \text{O}_2$	1.60×10^{-12}	940	6.83
(R30)	$\text{O}_3 + \text{HO}_2 \rightarrow \text{HO} + 2 \text{O}_2$	1.10×10^{-14}	500	2.05
(R31)	$\text{HO} + \text{HO}_2 \rightarrow \text{H}_2\text{O} + \text{O}_2$	4.80×10^{-11}	-250	1.11
(R32)	$\text{H}_2\text{O}_2 + \text{HO} \rightarrow \text{HO}_2 + \text{H}_2\text{O}$	2.90×10^{-12}	160	1.70
(R33)	$\text{HO}_2 + \text{HO}_2 \rightarrow \text{H}_2\text{O}_2 + \text{O}_2$	Table 2f		2.92
(R34)	$\text{HO}_2 + \text{HO}_2 + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{H}_2\text{O}_2 + \text{O}_2 + \text{H}_2\text{O}$	Table 2f		6.58
(R35)	$\text{O}^3\text{P} + \text{NO} \rightarrow \text{NO}_2$	Table 2d		1.66
(R36)	$\text{O}^3\text{P} + \text{NO}_2 \rightarrow \text{NO} + \text{O}_2$	6.50×10^{-12}	-120	9.72
(R37)	$\text{O}^3\text{P} + \text{NO}_2 \rightarrow \text{NO}_3$	Table 2d		1.58
(R38)	$\text{HO} + \text{NO} \rightarrow \text{HONO}$	Table 2d		4.87
(R39)	$\text{HO} + \text{NO}_2 \rightarrow \text{HNO}_3$	Table 2d		1.15
(R40)	$\text{HO} + \text{NO}_3 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{HO}_2$	2.20×10^{-11}		2.20
(R41)	$\text{HO}_2 + \text{NO} \rightarrow \text{NO}_2 + \text{HO}$	3.70×10^{-12}	-250	8.56
(R42)	$\text{HO}_2 + \text{NO}_2 \rightarrow \text{HNO}_4$	Table 2d		1.39
(R43)	$\text{HNO}_4 \rightarrow \text{HO}_2 + \text{NO}_2$	Table 2e		8.62
(R44)	$\text{HO}_2 + \text{NO}_3 \rightarrow 0.3 \text{HNO}_3 + 0.7 \text{NO}_2 + 0.7 \text{HO} + \text{O}_2$	3.50×10^{-12}		3.50
(R45)	$\text{HO} + \text{HONO} \rightarrow \text{NO}_2 + \text{H}_2\text{O}$	1.80×10^{-11}	390	4.86
(R46)	$\text{HO} + \text{HNO}_3 \rightarrow \text{NO}_3 + \text{H}_2\text{O}$	Table 2f		1.47
(R47)	$\text{HO} + \text{HNO}_4 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{O}_2 + \text{H}_2\text{O}$	1.30×10^{-12}	-380	1.65
(R48)	$\text{O}_3 + \text{NO} \rightarrow \text{NO}_2 + \text{O}_2$	2.00×10^{-12}	1400	4.82
(R49)	$\text{O}_3 + \text{NO}_2 \rightarrow \text{NO}_3 + \text{O}_2$	1.20×10^{-13}	2450	3.23
(R50)	$\text{NO} + \text{NO} + \text{O}_2 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{NO}_2$	3.30×10^{-39}	-530	1.95
(R51)	$\text{NO}_3 + \text{NO} \rightarrow \text{NO}_2 + \text{NO}_2$	1.50×10^{-11}	-170	2.65
(R52)	$\text{NO}_3 + \text{NO}_2 \rightarrow \text{NO} + \text{NO}_2 + \text{O}_2$	4.50×10^{-14}	1260	6.56
(R53)	$\text{NO}_3 + \text{NO}_2 \rightarrow \text{N}_2\text{O}_5$	Table 2d		1.27
(R54)	$\text{N}_2\text{O}_5 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{NO}_3$	Table 2e		4.36
(R55)	$\text{NO}_3 + \text{NO}_3 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{NO}_2 + \text{O}_2$	8.50×10^{-13}	2450	2.29
(R56)	$\text{HO} + \text{H}_2 \rightarrow \text{H}_2\text{O} + \text{HO}_2$	5.50×10^{-12}	2000	6.69
(R57)	$\text{HO} + \text{SO}_2 \rightarrow \text{SULF} + \text{HO}_2$	Table 2d		8.89
(R58)	$\text{CO} + \text{HO} \rightarrow \text{HO}_2 + \text{CO}_2$	Table 2f		2.40
<i>O³P + Organic Compounds</i>				
(R59)	$\text{ISO} + \text{O}^3\text{P} \rightarrow 0.86 \text{OLT} + 0.05 \text{HCHO} + 0.02 \text{HO} + 0.01 \text{CO} + 0.13 \text{DCB} + 0.28 \text{HO}_2 + 0.15 \text{XO}_2$	6.00×10^{-11}		6.00
(R60)	$\text{MACR} + \text{O}^3\text{P} \rightarrow \text{ALD}$	1.59×10^{-11}	-13	1.66
<i>HO + Organic Compounds</i>				

Hier: RACM (Stockwell et al., 1997, JGR
doi:10.1029/97JD00849)

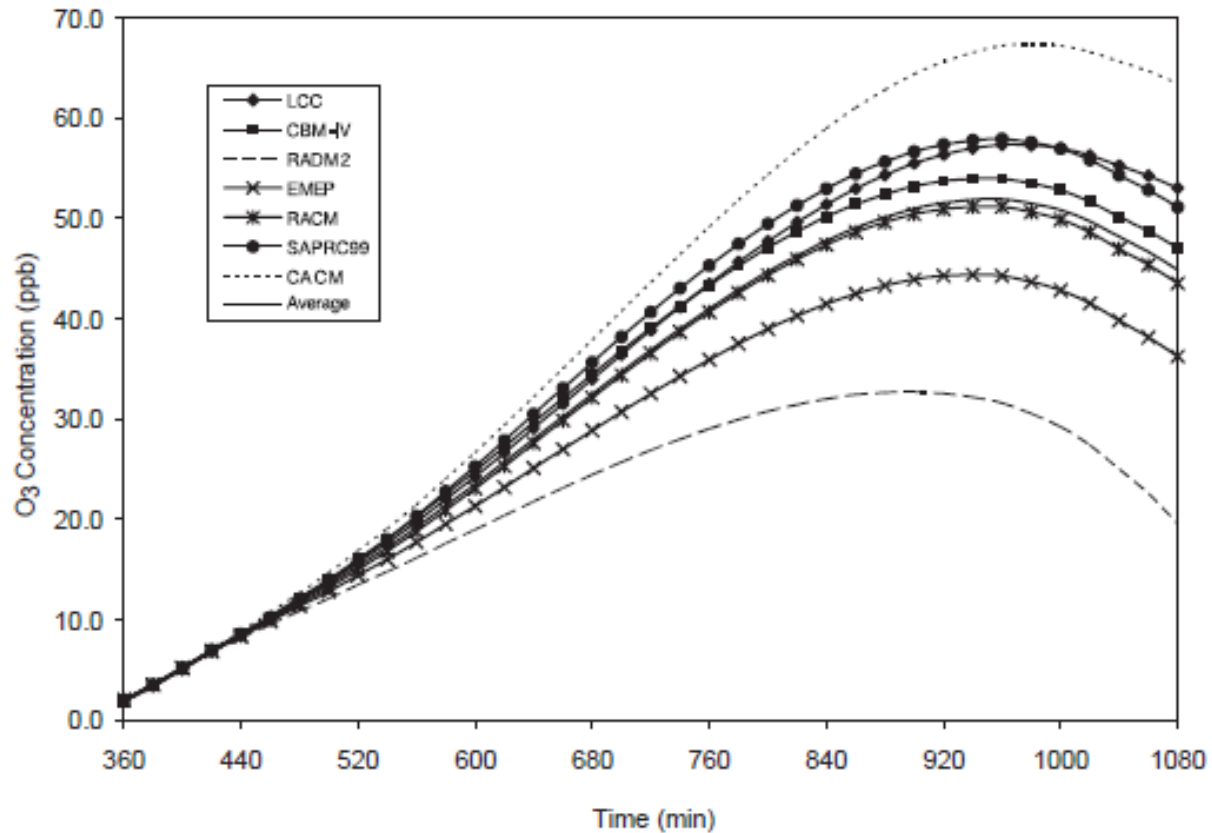
Table 2b. (continued)

Reaction No.	Reaction	A_i , $\text{cm}^3 \text{s}^{-1}$	E/R , K	k^a
(R185)	$\text{ACO}_3 + \text{MO}_2 \rightarrow \text{HCHO} + \text{HO}_2 + \text{MO}_2$	3.21×10^{-11}	440	7.33×10^{-12}
(R186)	$\text{ACO}_3 + \text{MO}_2 \rightarrow \text{HCHO} + \text{ORA2}$	2.68×10^{-16}	-2510	1.22×10^{-12}
(R187)	$\text{TCO}_3 + \text{MO}_2 \rightarrow 2 \text{HCHO} + \text{HO}_2 + \text{ACO}_3$	3.21×10^{-11}	440	7.33×10^{-12}
(R188)	$\text{TCO}_3 + \text{MO}_2 \rightarrow \text{HCHO} + \text{ORA2}$	2.68×10^{-16}	-2510	1.22×10^{-12}
(R189)	$\text{KETP} + \text{MO}_2 \rightarrow 0.75 \text{HCHO} + 0.88 \text{HO}_2 + 0.40 \text{MGLY} + 0.30 \text{ALD} + 0.30 \text{HKET} + 0.12 \text{ACO}_3 + 0.08 \text{XO}_2$	6.91×10^{-13}	-508	3.80×10^{-12}
(R190)	$\text{OLNN} + \text{MO}_2 \rightarrow 0.75 \text{HCHO} + \text{HO}_2 + \text{ONIT}$	1.60×10^{-13}	-708	1.72×10^{-12}
(R191)	$\text{OLND} + \text{MO}_2 \rightarrow 0.96 \text{HCHO} + 0.5 \text{HO}_2 + 0.64 \text{ALD} + 0.149 \text{KET} + 0.5 \text{NO}_2 + 0.5 \text{ONIT}$	9.68×10^{-14}	-708	1.04×10^{-12}
<i>Acetyl Radical + Organic Peroxy Radicals</i>				
(R192)	$\text{ETHP} + \text{ACO}_3 \rightarrow \text{ALD} + 0.5 \text{HO}_2 + 0.5 \text{MO}_2 + 0.5 \text{ORA2}$	1.03×10^{-12}	-211	2.09×10^{-12}
(R193)	$\text{HC3P} + \text{ACO}_3 \rightarrow 0.724 \text{ALD} + 0.127 \text{KET} + 0.488 \text{HO}_2 + 0.508 \text{MO}_2 + 0.006 \text{ETHP} + 0.071 \text{XO}_2 + 0.091 \text{HCHO} + 0.10 \text{GLY} + 0.499 \text{ORA2} + 0.004 \text{MGLY}$	6.90×10^{-13}	-460	3.23×10^{-12}
(R194)	$\text{HC5P} + \text{ACO}_3 \rightarrow 0.677 \text{ALD} + 0.33 \text{KET} + 0.438 \text{HO}_2 + 0.554 \text{MO}_2 + 0.495 \text{ORA2} + 0.018 \text{ETHP} + 0.237 \text{XO}_2 + 0.076 \text{HCHO}$	5.59×10^{-13}	-522	3.22×10^{-12}
(R195)	$\text{HC8P} + \text{ACO}_3 \rightarrow 0.497 \text{ALD} + 0.581 \text{KET} + 0.489 \text{HO}_2 + 0.507 \text{MO}_2 + 0.495 \text{ORA2} + 0.015 \text{ETHP} + 0.318 \text{XO}_2$	2.47×10^{-13}	-683	2.44×10^{-12}
(R196)	$\text{ETEP} + \text{ACO}_3 \rightarrow 0.8 \text{HCHO} + 0.6 \text{ALD} + 0.5 \text{HO}_2 + 0.5 \text{MO}_2 + 0.5 \text{ORA2}$	9.48×10^{-13}	-765	1.24×10^{-11}
(R197)	$\text{OITP} + \text{ACO}_3 \rightarrow 0.859 \text{ALD} + 0.501 \text{HCHO} + 0.501 \text{HO}_2 + 0.501 \text{MO}_2 + 0.499 \text{ORA2} + 0.141 \text{KET}$	8.11×10^{-13}	-765	1.06×10^{-11}
(R198)	$\text{OLIP} + \text{ACO}_3 \rightarrow 0.941 \text{ALD} + 0.569 \text{KET} + 0.51 \text{HO}_2 + 0.51 \text{MO}_2 + 0.49 \text{ORA2}$	5.09×10^{-13}	-765	6.63×10^{-12}
(R199)	$\text{ISOP} + \text{ACO}_3 \rightarrow 0.771 \text{MACR} + 0.229 \text{OLT} + 0.506 \text{HO}_2 + 0.494 \text{ORA2} + 0.340 \text{HCHO} + 0.506 \text{MO}_2$	7.60×10^{-13}	-765	9.90×10^{-12}
(R200)	$\text{APIP} + \text{ACO}_3 \rightarrow \text{ALD} + \text{KET} + \text{HO}_2 + \text{MO}_2$	7.40×10^{-13}	-765	9.63×10^{-12}
(R201)	$\text{LIMP} + \text{ACO}_3 \rightarrow 0.60 \text{MACR} + 0.40 \text{OLI} + 0.40 \text{HCHO} + \text{HO}_2 + \text{MO}_2$	7.40×10^{-13}	-765	9.63×10^{-12}
(R202)	$\text{TOLP} + \text{ACO}_3 \rightarrow \text{MO}_3 + \text{HO}_2 + 0.35 \text{MGLY} + 0.65 \text{GLY} + \text{DCB}$	7.40×10^{-13}	-765	9.63×10^{-12}
(R203)	$\text{XYLP} + \text{ACO}_3 \rightarrow \text{MO}_3 + \text{HO}_2 + 0.63 \text{MGLY} + 0.37 \text{GLY} + \text{DCB}$	7.40×10^{-13}	-765	9.63×10^{-12}
(R204)	$\text{CSLP} + \text{ACO}_3 \rightarrow \text{GLY} + \text{MGLY} + \text{MO}_2 + \text{HO}_2$	7.40×10^{-13}	-765	9.63×10^{-12}
(R205)	$\text{ACO}_3 + \text{ACO}_3 \rightarrow 2 \text{MO}_2$	2.80×10^{-12}	-530	1.66×10^{-11}
(R206)	$\text{TCO}_3 + \text{ACO}_3 \rightarrow \text{MO}_2 + \text{ACO}_3 + \text{HCHO}$	2.80×10^{-12}	-530	1.66×10^{-11}
(R207)	$\text{KETP} + \text{ACO}_3 \rightarrow 0.54 \text{MGLY} + 0.35 \text{ALD} + 0.11 \text{KET} + 0.12 \text{ACO}_3 + 0.38 \text{HO}_2 + 0.08 \text{XO}_2 + 0.5 \text{MO}_2 + 0.5 \text{ORA2}$	7.51×10^{-13}	-565	5.00×10^{-12}
(R208)	$\text{OLNN} + \text{ACO}_3 \rightarrow \text{ONIT} + 0.5 \text{ORA2} + 0.5 \text{MO}_2 + 0.50 \text{HO}_2$	8.85×10^{-13}	-765	1.15×10^{-11}
(R209)	$\text{OLND} + \text{ACO}_3 \rightarrow 0.207 \text{HCHO} + 0.65 \text{ALD} + 0.167 \text{KET} + 0.484 \text{ORA2} + 0.484 \text{ONIT} + 0.516 \text{NO}_2 + 0.516 \text{MO}_2$	5.37×10^{-13}	-765	7.00×10^{-12}
<i>NO₂-Alkene-Peroxyradical + NO₂-Alkene-Peroxyradical Reactions</i>				
(R210)	$\text{OLNN} + \text{OLNN} \rightarrow 2 \text{ONIT} + \text{HO}_2$	7.0×10^{-14}	-1000	2.00×10^{-12}
(R211)	$\text{OLNN} + \text{OLND} \rightarrow 0.202 \text{HCHO} + 0.64 \text{ALD} + 0.149 \text{KET} + 0.50 \text{HO}_2 + 1.50 \text{ONIT} + 0.50 \text{NO}_2$	4.25×10^{-14}	-1000	1.22×10^{-12}
(R212)	$\text{OLND} + \text{OLND} \rightarrow 0.504 \text{HCHO} + 1.21 \text{ALD} + 0.285 \text{KET} + \text{ONIT} + \text{NO}_2$	2.96×10^{-14}	-1000	8.50×10^{-13}
<i>NO₃ + Organic Peroxy Radicals</i>				
(R213)	$\text{MO}_2 + \text{NO}_3 \rightarrow \text{HCHO} + \text{HO}_2 + \text{NO}_2$	1.2×10^{-12}		1.20×10^{-12}

Updates von Ratenkonstanten etc.:
Chemical Kinetics and Photochemical Data for Use in Atmospheric Studies

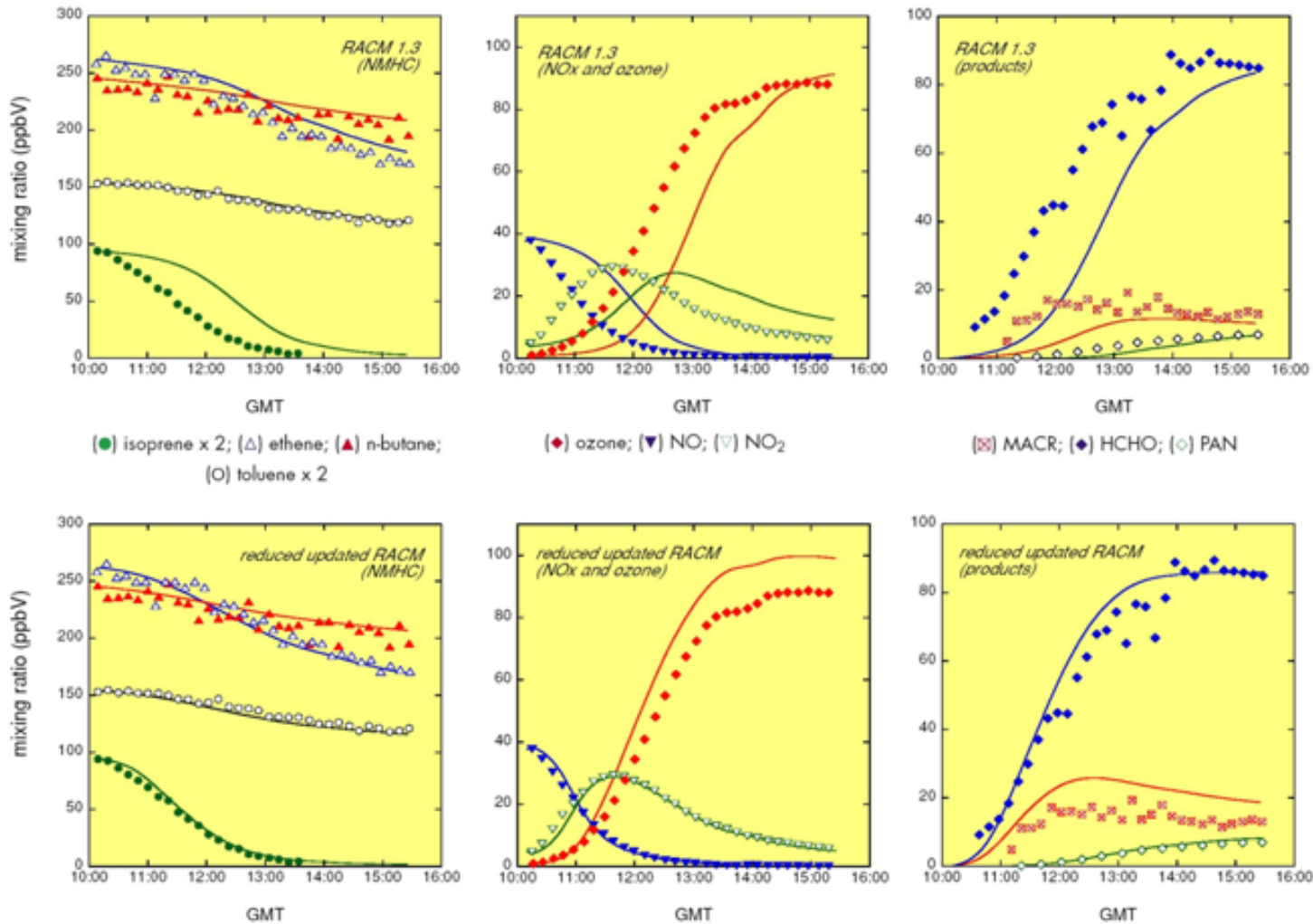
<http://jpldataeval.jpl.nasa.gov/>

Chemiemechanismen: Unterschiede



Jiminez et al., 2003: Atmospheric Environment 37, 4179–4194,
doi:10.1016/S1352-2310(03)00567-3

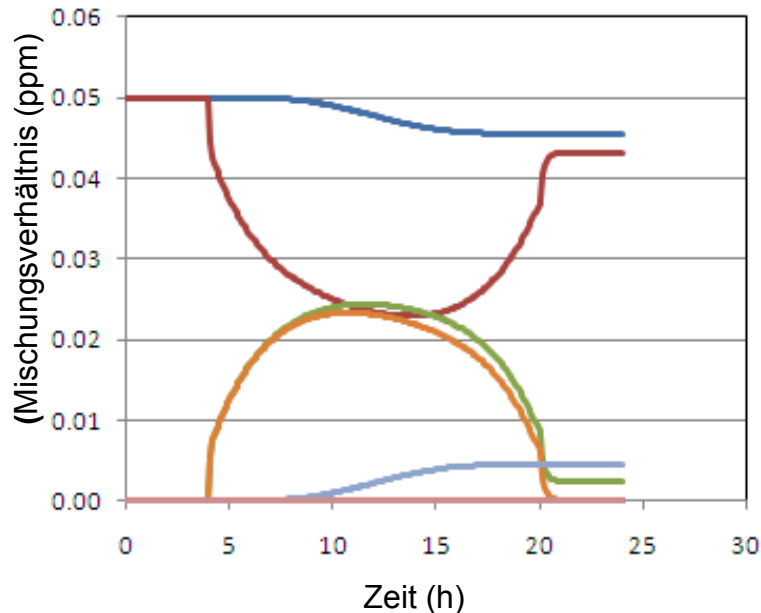
Beispiel: Ozon und VOC



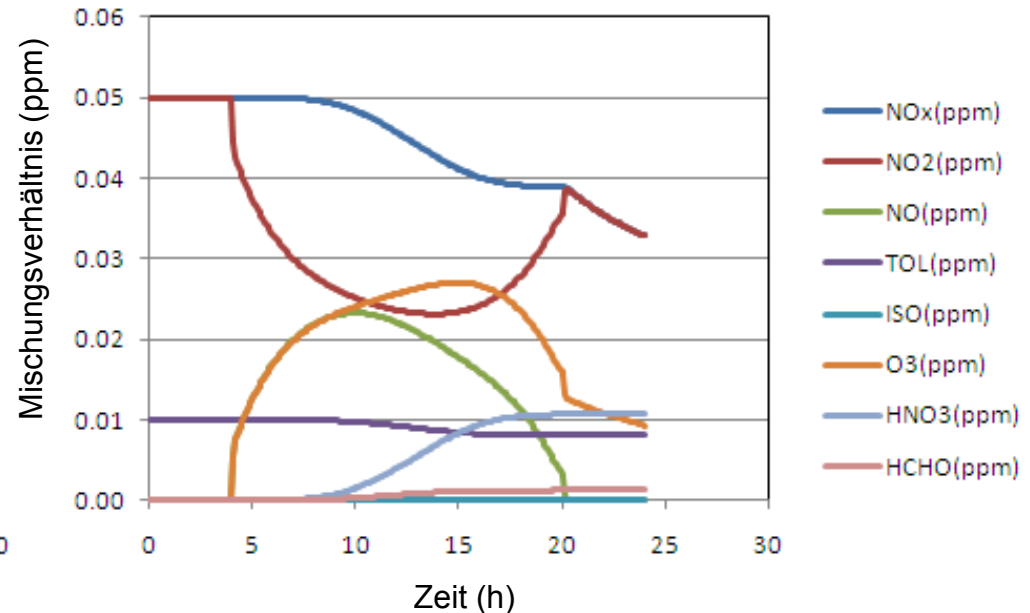
Verbesserung der Isoprenoxidation bei RACM, Vergleich mit Smogkammermessung
Geiger et al., Atmospheric Environment 37 (2003) 1503–1519, doi:10.1016/S1352-2310(02)01047-6

Anwendungsbeispiel RACM

Programm racm_box, Anwendung für 24 Stunden
Anfangskonzentrationen in namelist.txt



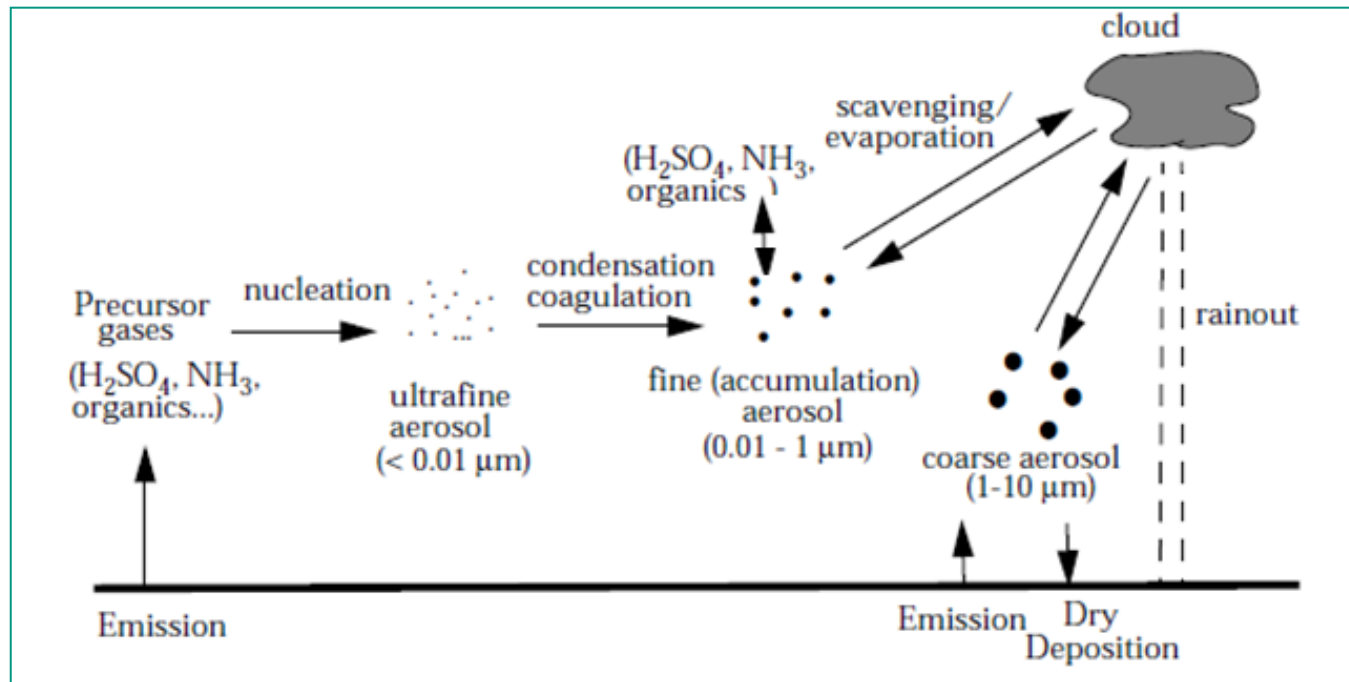
Initialisierung:
CO₂ 360 ppm, CH₄ 1.7 ppm,
CO 0.2 ppm und NO₂ 0.05 ppm
Keine Emissionen



Initialisierung wie links, aber
mit zusätzlichem Kohlenwasserstoff
(hier 0.01 ppm Toluol)

Prozessmodelle

Partikelphase: Aerosol- und Wolkenprozesse



Beschreibung von Aerosolprozessen

- **„Bulk“: Nur ein repräsentatives Partikel**
z.B. **Nukleation**, Berechnung des **Gleichgewichts** zwischen Gas- und Partikelphase für Sulfat, Nitrat, Chlorid, Natrium und Wasser;
in Tropfen auch **chemische Reaktionen** in der Flüssigphase
Berechnet werden Massenkonzentrationen (und evtl. aus der Masse abgeleitete Partikelzahl und mittleren Radius)
 - Schnell, aber keine Größeninformation. Geeignet für CTMs

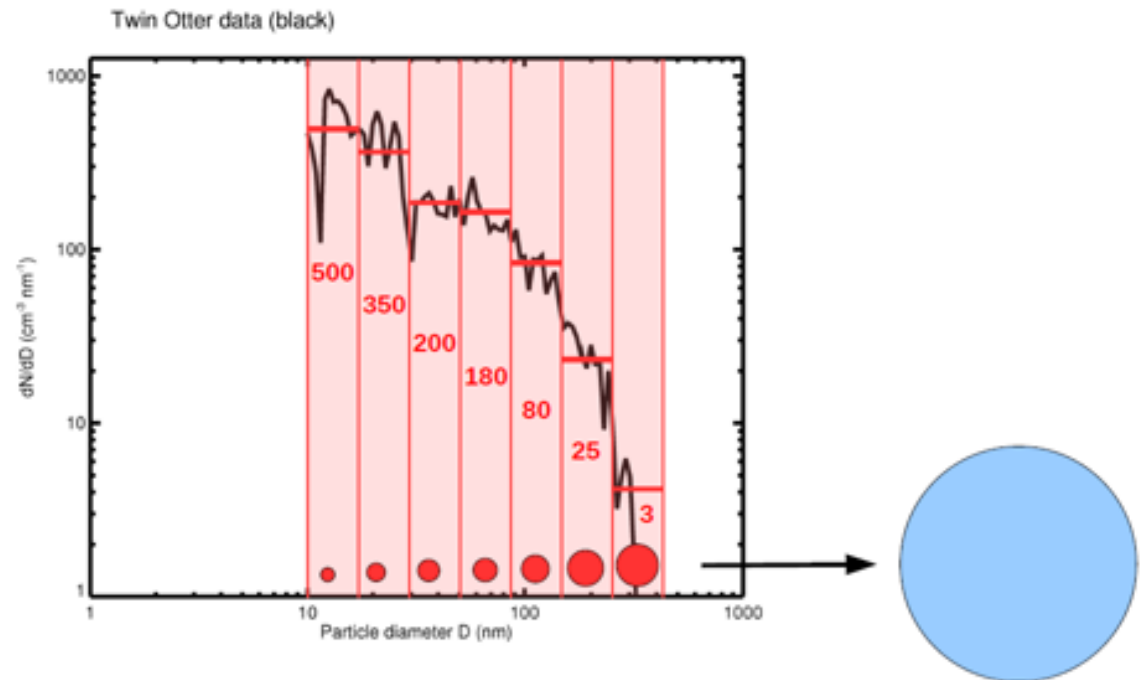
- **Individuelle Partikel**
Wie Bulk, nur für ein Ensemble verschieden großer Partikel
Koagulation als zusätzlicher Prozess
 - Genau, jedoch ungeeignet zum Einbau in CTMs

- **Sektional** (individuelle Partikel werden in Klassen zusammengefasst)

Einteilung in Größenklassen (engl. bins) meist für Trockenradius. Bei Größenänderungen Übergang in andere Größenklasse

Genauigkeit hängt von Anzahl der Größenklassen ab

- Wird in CTMs verwendet, allerdings nur mit wenigen Größenklassen (zumeist <10)



■ Modal

Darstellung der Größenverteilung durch 2 oder 3 Log-Normalverteilungen

$$n(\ln D) = \frac{N}{\sqrt{2\pi \ln \sigma_g}} \exp \left[-0.5 \left(\frac{\ln \frac{D}{D_g}}{\ln \sigma_g} \right)^2 \right]$$

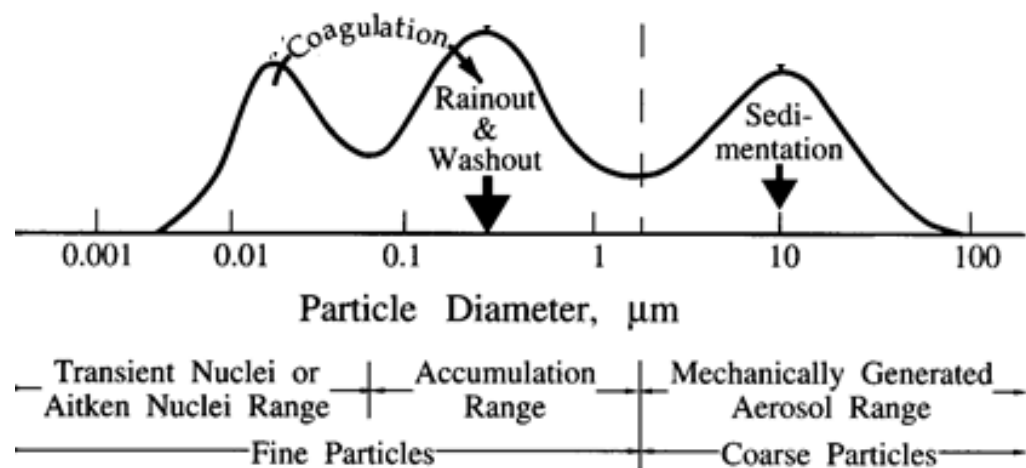
Prognose der Momente

$$M_k = N D_g^k \exp \left[\frac{k^2}{2} \ln^2 \sigma_g \right] \quad \text{für } k=0 \text{ (Anzahl), } k=2 \text{ (Oberfläche), } k=3 \text{ (Volumen)}$$

⇒ D_g (mittl. Durchmesser), σ_g (Standardabweichung)

Bei Größenänderung Änderung von M_k , und damit von D_g und σ_g

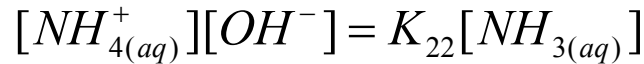
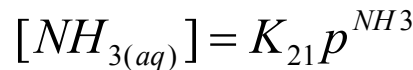
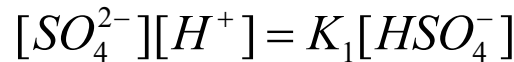
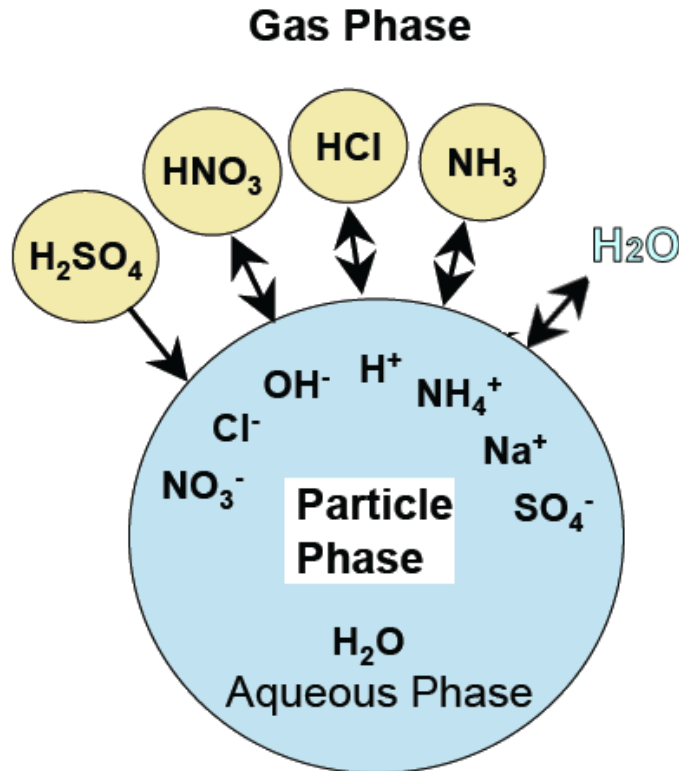
(<http://www.epa.gov/AMD/CMAQ/ch10.pdf>)



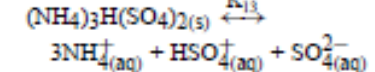
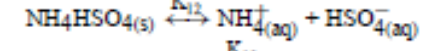
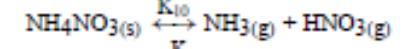
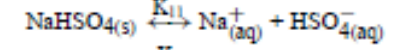
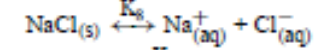
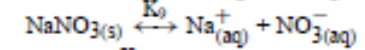
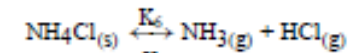
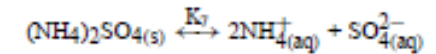
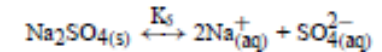
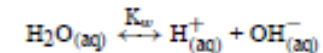
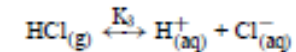
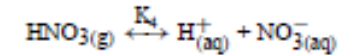
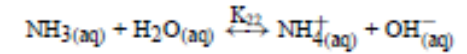
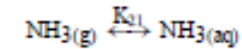
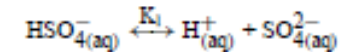
■ Liefert etwas Größeninformation. Wird in CTMs verwendet

■ Modell ISORROPIA (<http://nenes.eas.gatech.edu/ISORROPIA/>)

- Verteilung zwischen Gas- und Partikelphase (fest und flüssig) für Sulfat, Nitrat, Chlorid, Natrium und Wasser
- hier: Anwendung als Bulkmodell

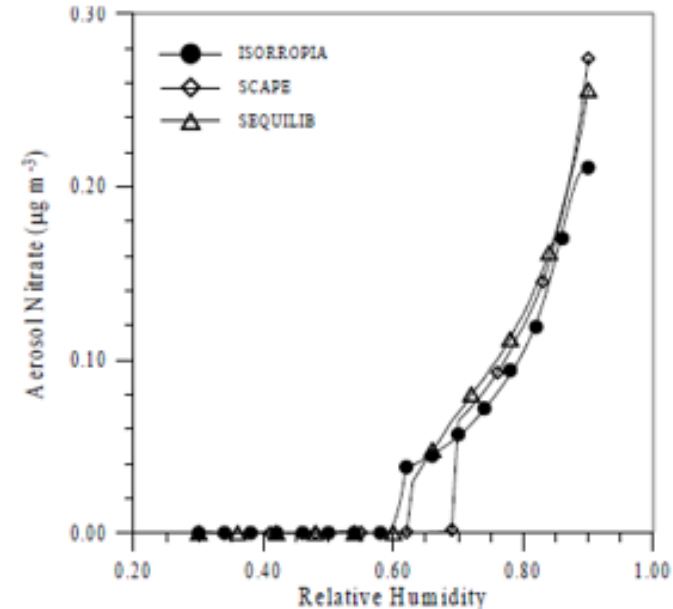
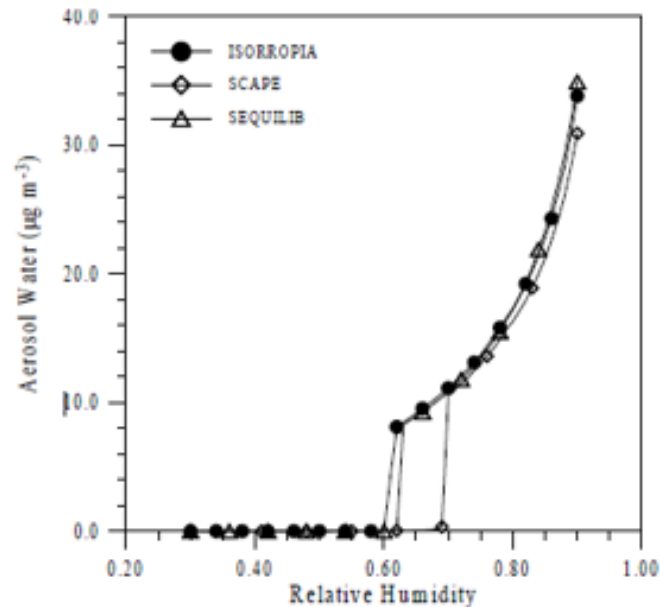


usw., siehe rechts ...



Anwendungsbeispiel: Isorropia

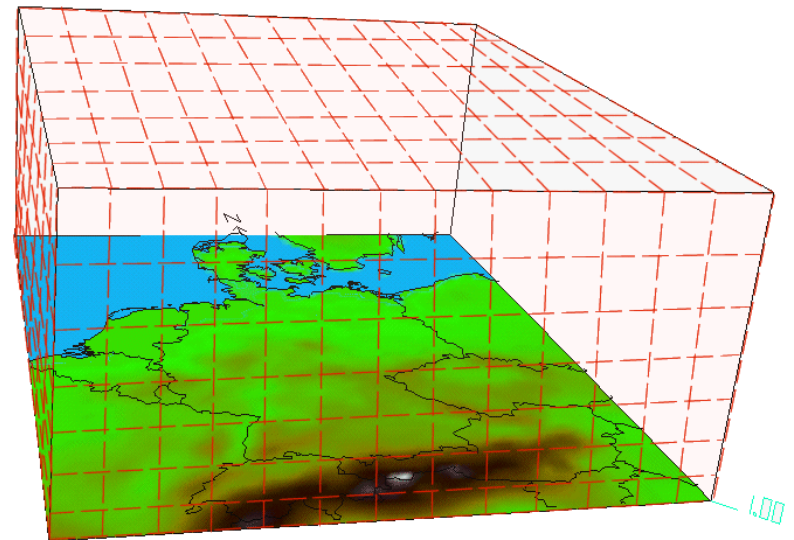
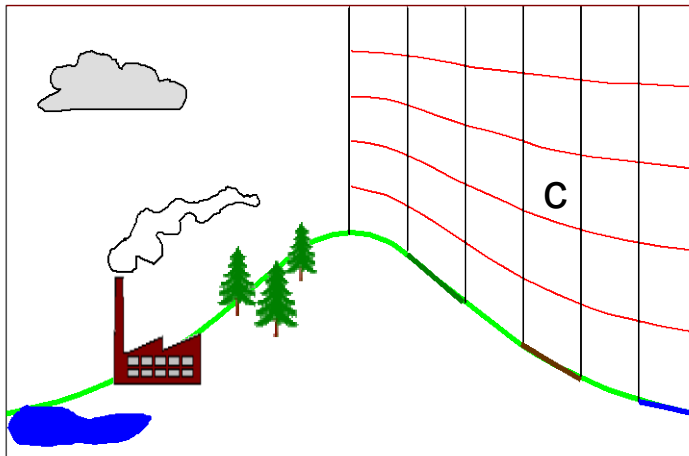
- Wasseraufnahme hängt ab von relativer Feuchte und vorhandenem löslichem Material



Setup: ähnlich wie in DEMO.INP, aber mit festem SO_4 und ansteigenden RH
Output: demo.dat (z.B. für Excel, Variablen siehe Tab.1 im Handbuch), demo.txt
Handbuch: http://nenes.eas.gatech.edu/ISORROPIA/Version2_1/ISORROPIA21Manual.pdf

Transportmodelle/Chemie-Transportmodelle (CTMs)

Eulersche Modelle

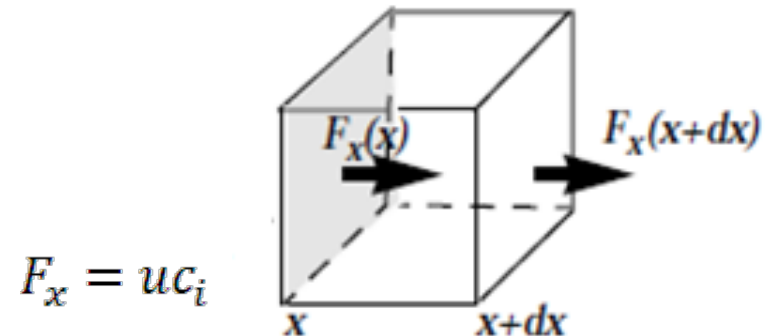


Bilanzgleichung für $c_i(x, t)$ der Substanz i

■ Eulersche Betrachtungsweise: Ortsfestes Gitter

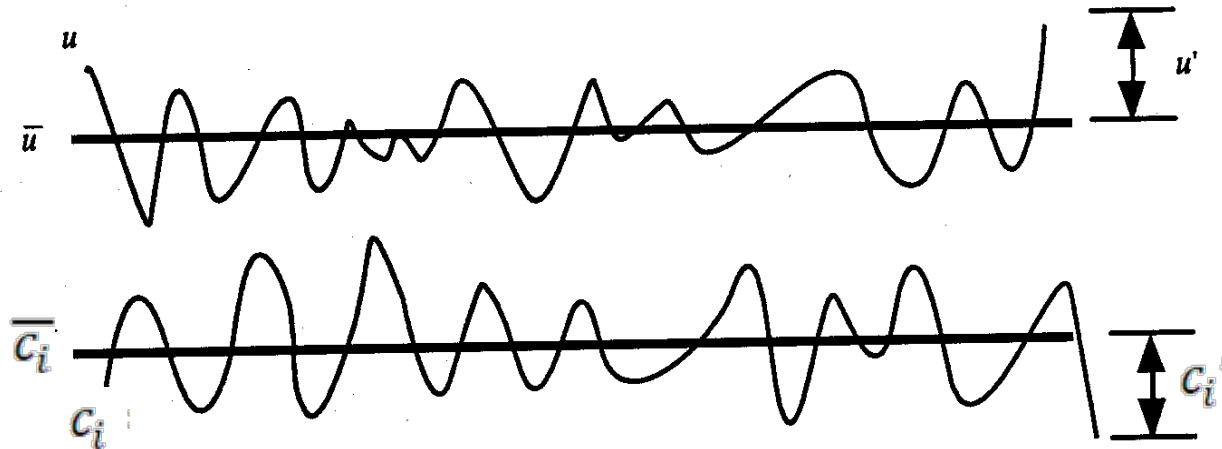
c_i steht hier für das Mischungsverhältnis eines beliebigen Spurengases bzw. für eine reaktive Aerosolkomponente.

Für jede Substanz muß die unten stehende Gleichung gelöst werden (d.h. bis zu über 100 Gleichungen)



$$\underbrace{\frac{\partial c_i}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x}(u c_i) + \frac{\partial}{\partial y}(v c_i) + \frac{\partial}{\partial z}(w c_i)}_{\text{Zeitliche Änderung (fester Ort) \quad \quad \quad \text{Transport}}} = \underbrace{R_i(c_1, \dots, c_n, T)}_{\text{Chemie}} + \underbrace{S_i}_{\text{sonst. Quellen und Senken}}$$

Bilanzgleichung für die turbulente Atmosphäre



Turbulente Strömung:
Aufspaltung in „mittleren“ Wert und Fluktuation

$$u = \bar{u} + u' \quad \text{mit} \quad \overline{u'} = 0 \quad v \text{ und } w \text{ analog}$$

$$c_i = \bar{c}_i + c_i' \quad \text{mit} \quad \overline{c_i'} = 0$$

$$\text{Aber: } \overline{u'c_i'} \neq 0 \quad \text{etc.}$$

Bilanzgleichung mit turbulenten Flüssen

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x} (\bar{u} \bar{c}_i) + \frac{\partial}{\partial y} (\bar{v} \bar{c}_i) + \frac{\partial}{\partial z} (\bar{w} \bar{c}_i) +$$

$$\underbrace{\frac{\partial}{\partial x} (\overline{u'c_i'}) + \frac{\partial}{\partial y} (\overline{v'c_i'}) + \frac{\partial}{\partial z} (\overline{w'c_i'})}_{\text{Turbulente Flüsse}} = \overline{R_i(c_1 + c_1', \dots)} - \bar{S}_i$$

Turbulente Flüsse

Gängige Ansätze zur Berechnung der turbulenten Flüsse:

- 1) Prognosegleichungen für die turbulenten Flüsse (Schließung 2. Ordnung)
- 2) Darstellung durch mittlere Größen (**Gradientansatz**, Schließung 1. Ordnung)

$$\overline{w'c_i'} = -K_{h,zz} \frac{\partial \bar{c}_i}{\partial z}$$

K_h (Austauschkoeffizient) wird üblicherweise in Abhängigkeit von Windscherung und thermischer Schichtung **parametrisiert**

Darstellung der Bilanzgleichung mit Gradientansatz für turbulente Flüsse

- ◆ Vernachlässigung der $c_i'c_j'$ -Terme bei den chemischen Reaktionen

Gleichung enthält nur noch gemittelte Größen – Mittelungsoperator wird der Einfachheit halber hier wieder weggelassen!

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x}(uc_i) + \frac{\partial}{\partial y}(vc_i) + \frac{\partial}{\partial z}(wc_i) - \frac{\partial}{\partial x}\left(K_{h,xx} \frac{\partial c_i}{\partial x}\right) - \frac{\partial}{\partial y}\left(K_{h,yy} \frac{\partial c_i}{\partial y}\right) - \frac{\partial}{\partial z}\left(K_{h,zz} \frac{\partial c_i}{\partial z}\right) = R_i(c_1, \dots, c_n, T) + S_i$$

Beispiel für **eine** Darstellungsmöglichkeit von $K_{h,zz}$

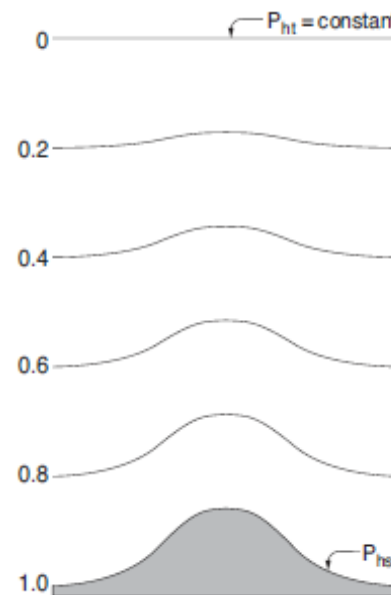
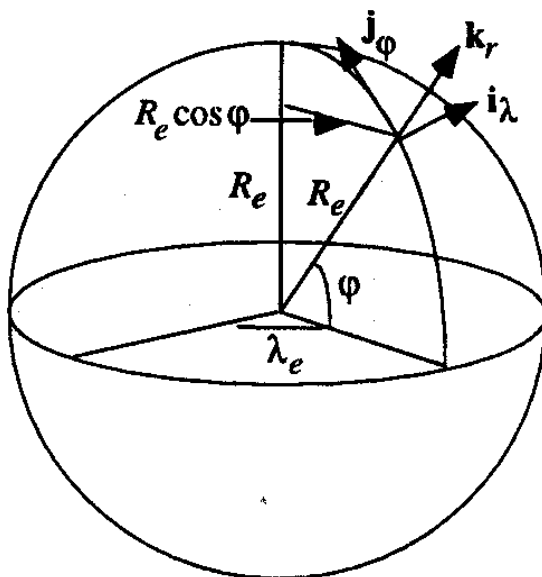
$$K_{h,zz} = l^2 \left| \frac{\partial((u^2 + v^2)^{0.5}}{\partial z} \right| f_h(Ri)$$

$$l(z) = \frac{\kappa z}{1 + \kappa \frac{z}{\lambda}}$$
$$Ri = \left(\frac{\bar{\theta}}{g} \frac{\partial \bar{\theta}}{\partial z} \right) \cdot \left(\left(\frac{\partial \bar{u}}{\partial z} \right)^2 + \left(\frac{\partial \bar{v}}{\partial z} \right)^2 \right)^{-1}$$

Koordinatentransformation

Bisherige Darstellung war in kartesischen Koordinaten:

- Für die Anwendung auf der Erde ist bei vielen Anwendungen z.B. die Verwendung von Kugelkoordinaten sinnvoll.
- In der Vertikalen: Topographiefolgendes Koordinatensystem, Druckkoordinaten



$$dx = (R_e \cos \varphi) d\lambda_e$$

$$dy = R_e d\varphi$$

$$\sigma = \frac{p_{rev}(z) - p_{top}}{p_{surf} - p_{top}}$$

$$dz = -\frac{p_{surf} - p_{top}}{g\rho} d\sigma$$

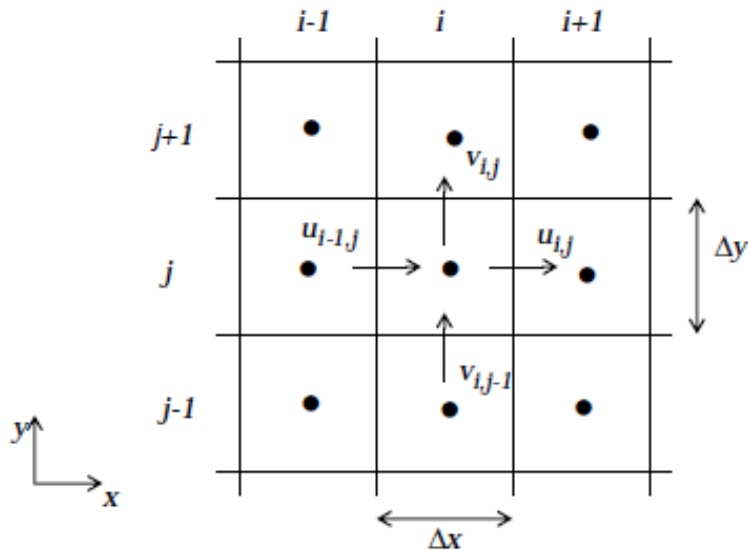
Weiteres z.B. siehe Jacobson

Weitere Prozesse und Parametrisierungen

- Si:** Quellen (Emissionen)
 Senken (z.B. Deposition)
- Wechselwirkung mit Meteorologie
- Wolkenprozesse (Auswaschen)
 - Konvektiver Transport

Operator Splitting

In vielen numerischen Modellen werden die Änderungen aufgrund der einzelnen Prozesse (Advektion, turbulenter Austausch, Chemie, Deposition, Emission) nacheinander abgearbeitet.



Einfachster Algorithmus für die Advektion von n

~~$$\begin{aligned}
 n(i, j, k, t_0 + \Delta t) = & n(i, j, k, t_0) \\
 & + \frac{u(i-1, j, k, t_0)n(i-1, j, k, t_0) - u(i, j, k, t_0)n(i, j, k, t_0)}{\Delta x} \Delta t \\
 & + \frac{v(i, j-1, k, t_0)n(i, j-1, k, t_0) - v(i, j, k, t_0)n(i, j, k, t_0)}{\Delta y} \Delta t \\
 & + \frac{w(i, j, k-1, t_0)n(i, j, k-1, t_0) - w(i, j, k, t_0)n(i, j, k, t_0)}{\Delta z} \Delta t
 \end{aligned}$$~~

Explizites Verfahren, praktisch kaum anwendbar:
schnell instabil, starke numerische Diffusion

Stabilitätskriterium: **Courant-Friedrich-Levy-Kriterium** $\Delta t < \Delta x / u$

- Verwendung **impliziter Verfahren**
- Berücksichtigung von Termen höherer Ordnung bei der Approximation von $\partial / \partial t$ durch Differenzen:

$$C_{i,t+\Delta t} = C_{i,t} + \Delta t \frac{\partial C_{i,t}}{\partial t} + \frac{\Delta t^2}{2} \frac{\partial^2 C_{i,t}}{\partial t^2} + O(\Delta t^2)$$

Dreidimensionale Chemie-Transportmodelle und Meteorologie-Chemiemodelle

■ Chemie-Transportmodelle (CTMs):

Berechnung von Spurengaskonzentrationen (und Aerosolkonzentrationen) an allen Gitterpunkten unter Berücksichtigung von advektivem und turbulentem Transport + Quellen und Senken + Chemische Umwandlung (+ Aerosolprozesse)

■ Online gekoppelte Meteorologie-Chemiemodelle:

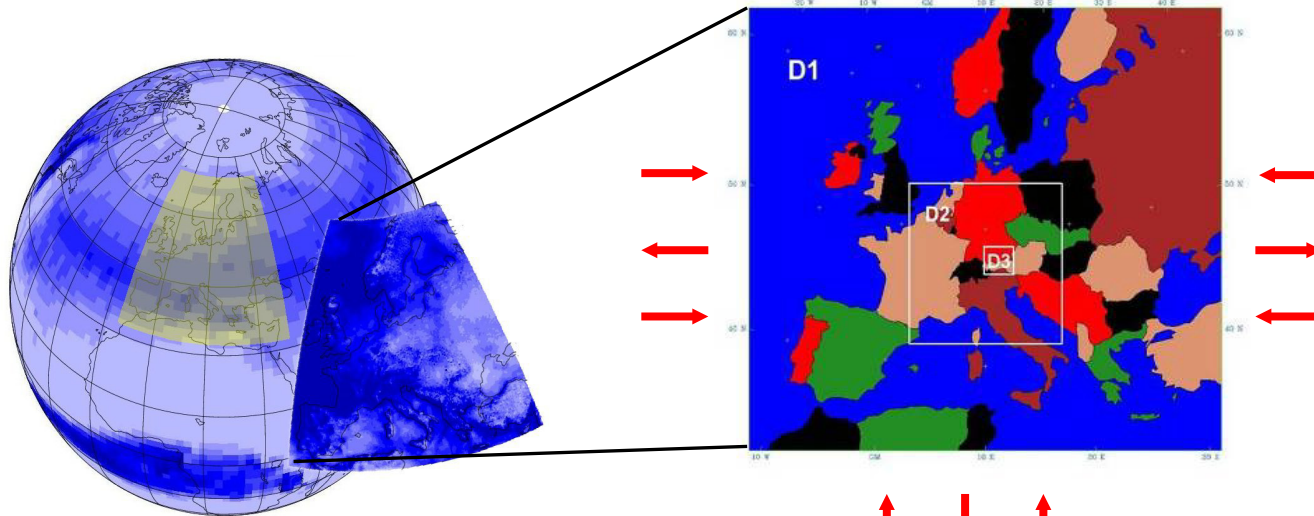
Berechnen meteorologische Größen T , q , u , v , w an allen Gitterpunkten unter Berücksichtigung von advektivem und turbulentem Transport + Quellen und Senken

und im gleichen Modellauf

Berechnung von Spurengaskonzentrationen (und Aerosolkonzentrationen) an allen Gitterpunkten unter Berücksichtigung von advektivem und turbulentem Transport + Quellen und Senken + Chemische Umwandlung (+ Aerosolprozesse)

Rückkopplungseffekte zur Meteorologie können berücksichtigt werden!

Regionale Modelle



„Nesting“

z.B.

D1: $\Delta x = 60 \text{ km}$

D2: $\Delta x = 20 \text{ km}$

D3: $\Delta x = 4 \text{ km}$

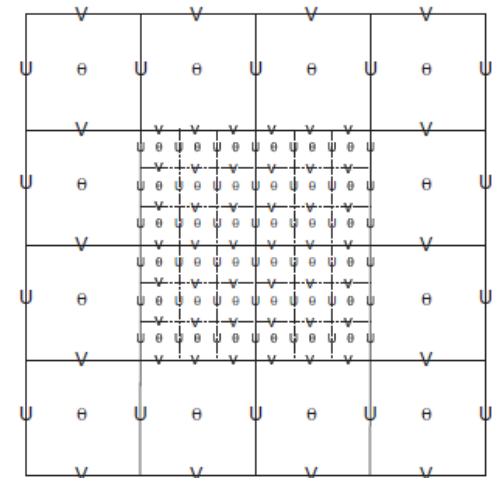
$\uparrow \quad \downarrow \quad \uparrow$ (u, v, w, T, q, p)
 (C₁, ... C_n)

Gitterstruktur bei genesteten Modellgebieten

Auch „**Limited-Area-Modelle** (LAM)“ genannt.

- Horizontales Gitter: ca 100 km – 1 km
- Vertikal: ca. 20 – 60 Schichten

Regionale Modelle benötigen **Anfangswerte** und eventuell **zeitabhängige Randwerte**, die aus den Ergebnissen globaler Modelle bestimmt werden müssen.



Erforderlicher Input für Limited-Area-Modelle

■ Meteorologie:

- für CTM: Zeitabhängige Werte an allen Gitterpunkten
- für Meteorologie-Chemiemodelle: Anfangs- und Randwerte

■ Chemie

- Emissionen
- Anfangswerte an allen Gitterpunkten
- Randwerte (evtl. Backgroundwerte hinreichend)

■ Output

- 3-d Felder aller chemischen Spezies
- bei Meteorologie-Chemiemodellen:
3-d Felder aller chemischen Spezies und
3-d-Felder der meteorologischen Größen

Verfügbare regionale Modelle

- **WRF/chem** (online gekoppeltes Met.-CTM, frei verfügbar, download)
<http://www.mmm.ucar.edu/wrf/users>, <http://ruc.noaa.gov/wrf/WG11>
- **EMEP-Modell** (offline CTM, frei verfügbar, download)
<http://www.emep.int/OpenSource/index.html>
- **CMAQ** (offline CTM, frei verfügbar, download)
<http://www.cmaq-model.org>
- **COSMO-ART** (online gekoppeltes Met.-CTM, bedingt frei verfügbar)
<http://www.imk-tro.kit.edu/3509.php>
- **MCCM** (online gekoppeltes Met.-CTM, frei verfügbar, Anfrage)
<http://imk-ifu.fzk.de/829.php>
- **GATOR-GCMOM** (online gekoppeltes Met.-CTM + Ozeanmodell)
<http://www.stanford.edu/group/efmh/GATOR/index.html>
- **Chimere** (offline CTM, frei verfügbar, download)
<http://www.lmd.polytechnique.fr/chimere>
- **und noch sehr viele mehr ...**

Programmiersprache: Fortran (90 oder 77), Betriebssystem Linux/Unix

Beispiele für weitere Eulersche Modelle

Mikroskalige Modelle / Straßenschluchtmodelle

- **MISKAM** (online gekoppeltes mikrosk. Met.-CTM mit Gebäudestruktur, Windows-Version 7645 Euro)
<http://www.lohmeyer.de/Software/winmiskam.htm>

Globale Modelle

- **MATCH-MPIC** (offline CTM)
http://www.mpch-mainz.mpg.de/~lawrence/MATCH/match_overview.html
- **MOZART** (offline CTM, frei verfügbar, download)
<http://www.acd.ucar.edu/gctm/mozart/>

Eindimensionale Modelle („Single column“-Modelle)

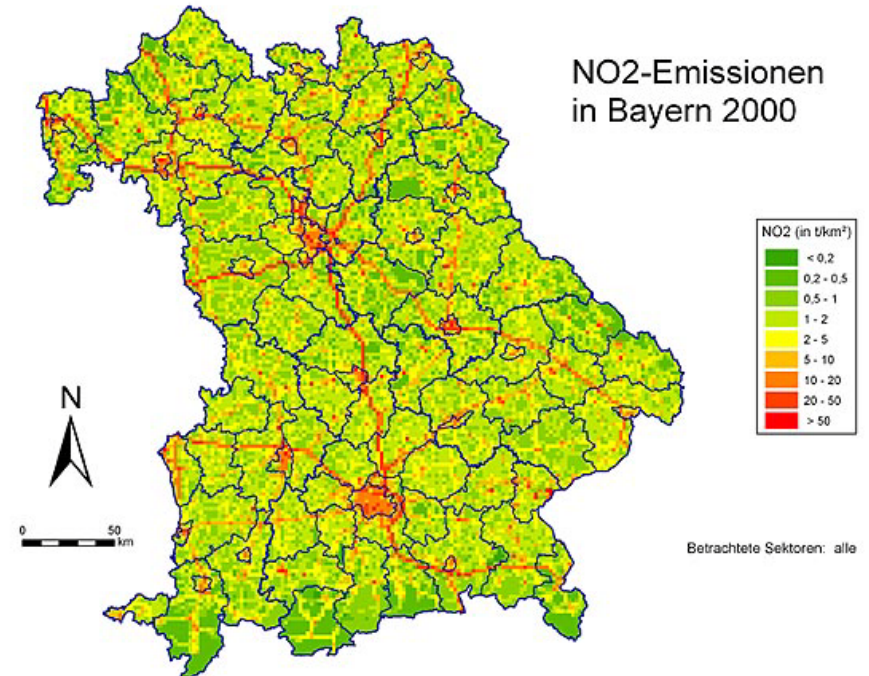
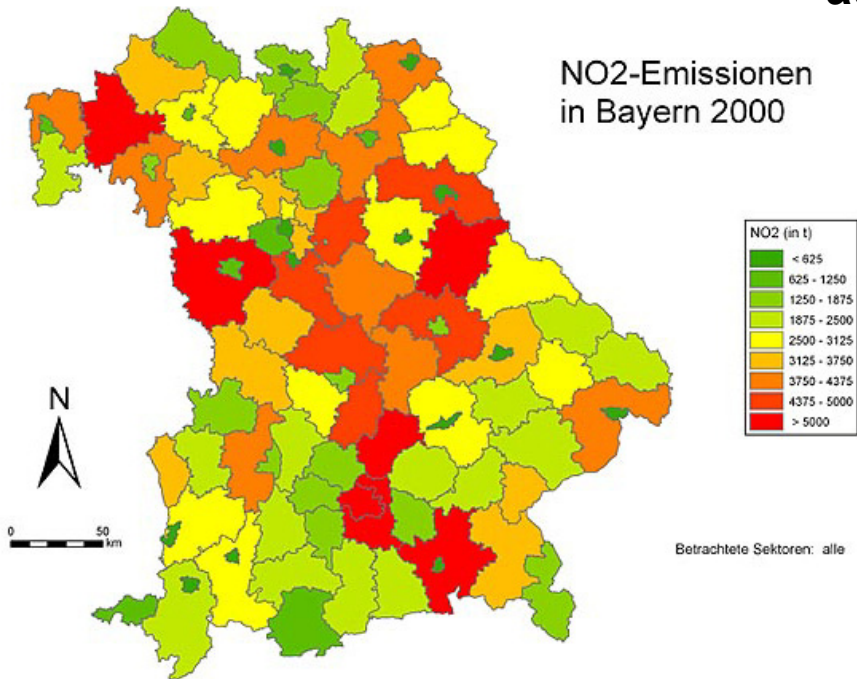
- **Bestandmodell CACHE** (Met. + Chemie, frei verfügbar, Anfrage)
<http://imk-ifu.fzk.de/825.php>

... und viele weitere

Emissionen für 3-d Euler-Modelle

Anthropogene Emissionen

Emissionen müssen für Modellgitter aufbereitet werden!



<http://inters.bayern.de/emissionskataster/php/start.php>

Aber: Schadstofftransport und auch die Modelle kennen keine Ländergrenzen!

Aufbau von Emissionskatastern

Einteilung der Emittenden in Sektoren

z.B. **CORINAIR SNAP** (Selected Nomenclature for sources of **Air Pollution**)

Group 1 Combustion in energy and transformation industries

Group 2 Non-industrial combustion plants

Group 3 Combustion in manufacturing industry

Group 4 Production processes

Group 5 Extraction & distribution of fossil fuels and geothermal energy

Group 6 Solvent and other product use

Group 7 Road transport

Group 8 Other mobile sources and machinery

Group 9 Waste treatment and disposal

Group 10 Agriculture

Group 11 Other sources and sinks

z.B. **LFU Bayern** (<http://inters.bayern.de/emissionskataster/php/kurzbeschreibung.php>)

1. Sektor Verkehr
2. Sektor Genehmigungsbedürftige Anlagen
3. Sektor Nicht genehmigungsbedürftige Feuerungsanlagen
4. Sektor Sonstige nicht genehmigungsbedürftige Anlagen
5. Sektor Sonstige nicht gefasste Quellen
6. Sektor Einsatz lösemittelhaltiger Konsumgüter in privaten Haushalten

Datenquellen und Emissionsmodelle

Beispiele für Datenquellen anthropogener Emissionen:

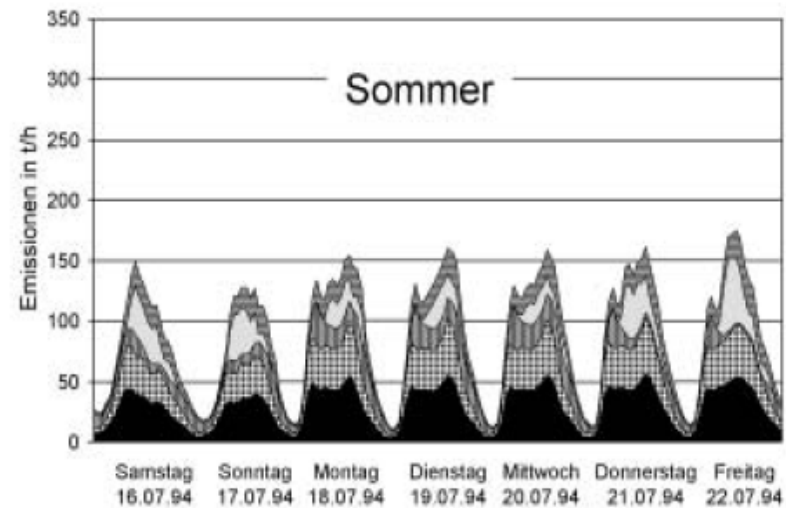
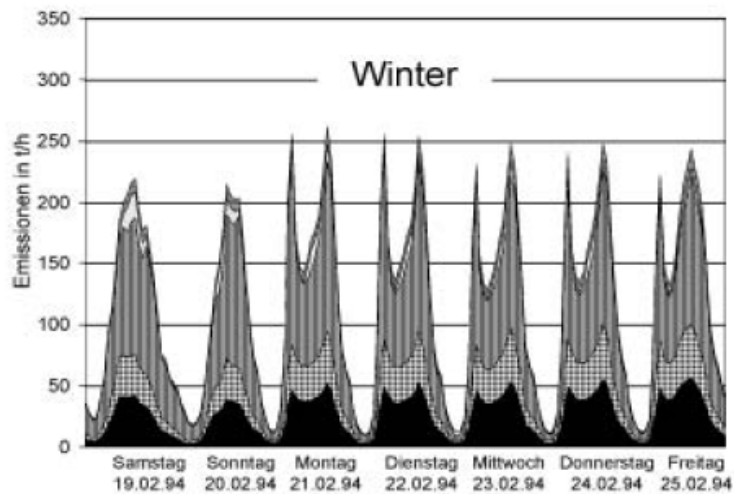
- Verkehrsemissionen auf der Basis von Verkehrsdaten und spezifischen Fahrzeugemissionen unter Berücksichtigung von Fahrzyklen
- Verkehrsemissionen und Verdunstung von Treibstoffen aus Verkaufs- und Lagermengen
- Lösemittelverbrauch z.B. aus Verkaufsdaten

Programme zur Erstellung von Emissionsdaten (speziell Verkehr)

- Copert: <http://www.emisia.com/copert/>
- NEMO (Network Emission Model, Rexeis und Hausberger, 2005)

Emissionsdaten für Luftchemiemodelle

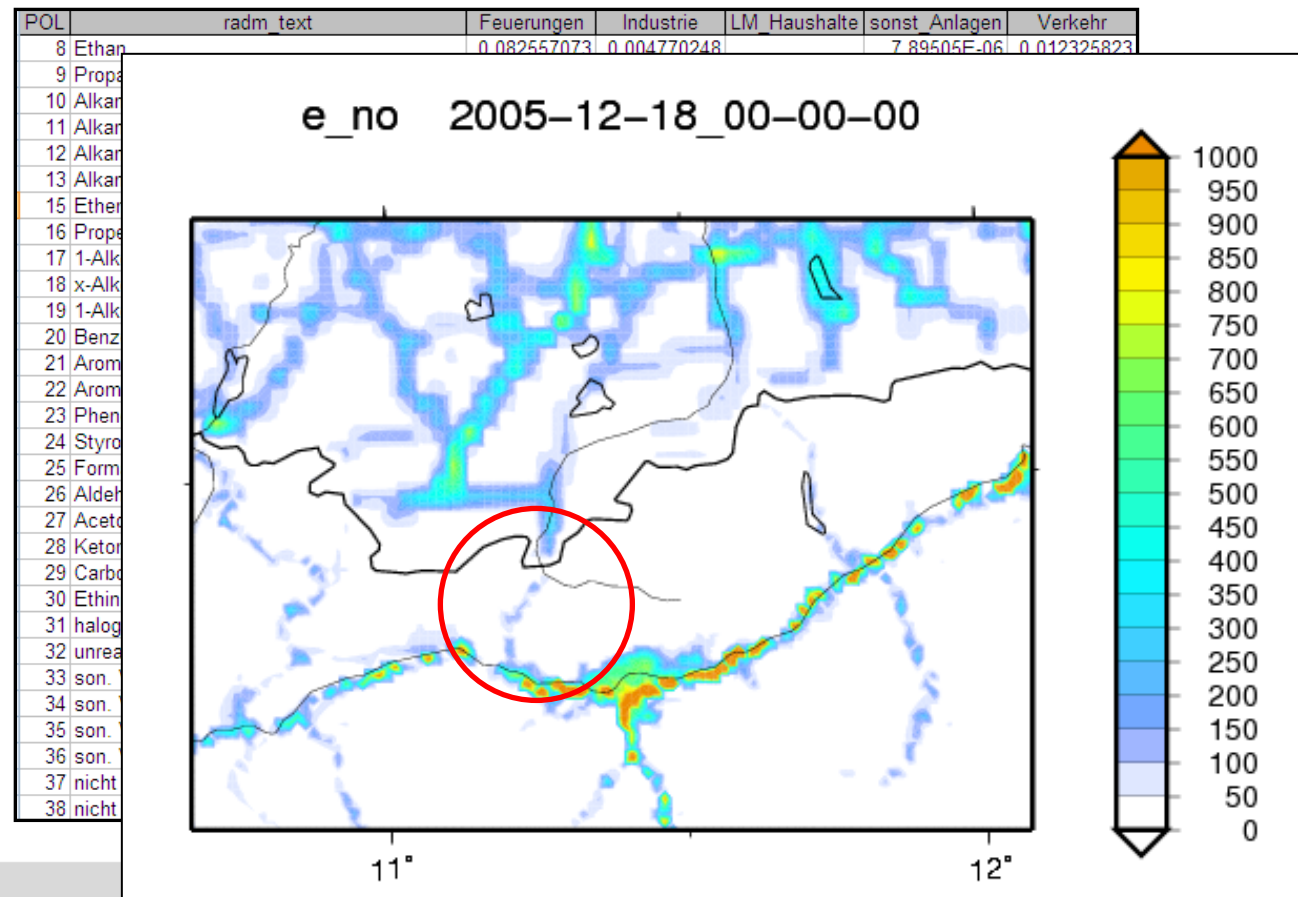
- Sollten flächendeckend für alle Sektoren vorhanden sein
- sollten für alle chemischen Spezies vorhanden sein
- sollten zum verwendeten chemischen Mechanismus passen
- sollten realistischen Jahres-, Wochen- und Tagesgang aufweisen (hat großen Einfluss auf das Modellergebnis)



NMVOC-Emissionen aus Straßenverkehr
(IER Stuttgart)

Emissionsdaten für Luftchemiemodelle

- Mögliche Probleme beim Aufbereiten anthropogener Emissionen
- Unterschiedliche Sektoreneinteilung
 - Cornair/SNAP (<http://www.eea.europa.eu/publications/EMEPCORINAIR4>)
 - IPCC
 - Länder
- Unsicherheiten bei VOC-Split
- ...



Biogene Emissionen

- **Isopren** (sehr relevant für Ozonbildung)
Emission abhängig von Pflanzenart (d.h. Land cover) , Sonnen-strahlung und T , sowie Vorgeschichte
- **Terpene** (relevant für Aerosolzusammensetzung)
Emission abhängig von Pflanzenart, T , sowie Vorgeschichte, z.T. auch Sonnenstrahlung
- **OVOC** (Aldehyde, Ketone ..., z.T. relevant für Gasphase und Partikel)
Emission abhängig von Pflanzenart, T , z.T. von Sonnenstrahlung sowie Vorgeschichte

Input für CTMs:

a) Landuse + pflanzenspezifische Emissionsfaktoren

oder

b) Kataster der BVOC-Emissionen (auf der Basis von a))
Korrektur für aktuelle Temperatur und Sonnenstrahlung

Biogene Emissionen

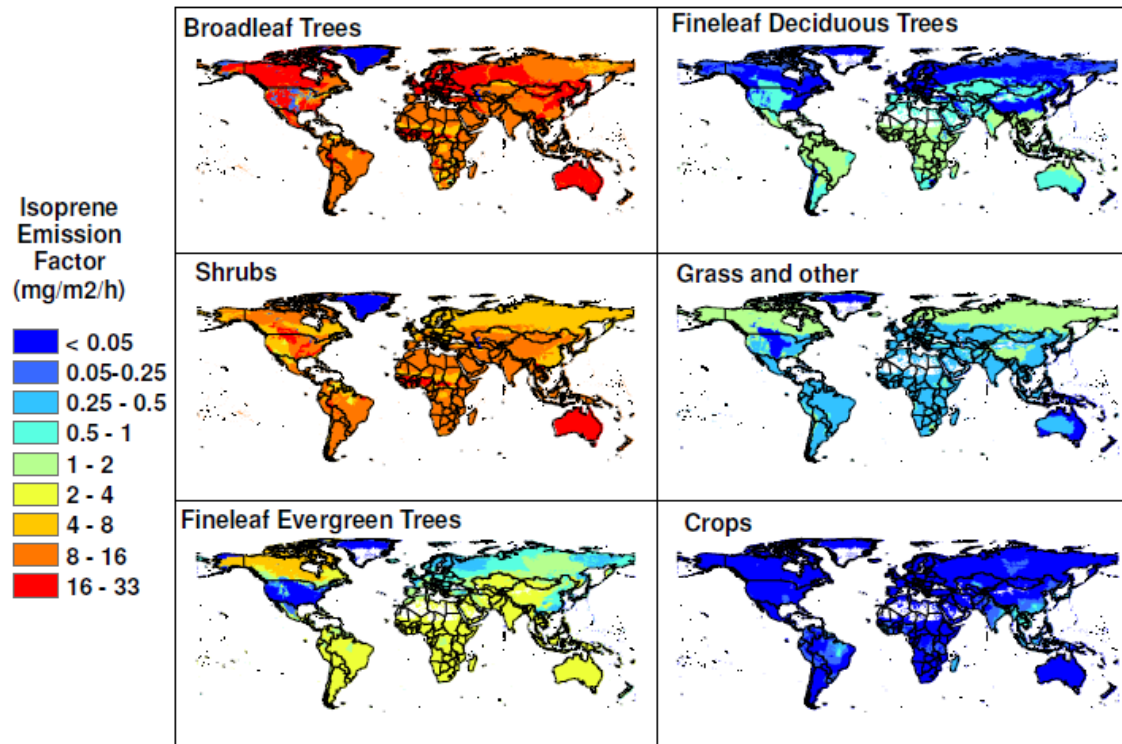


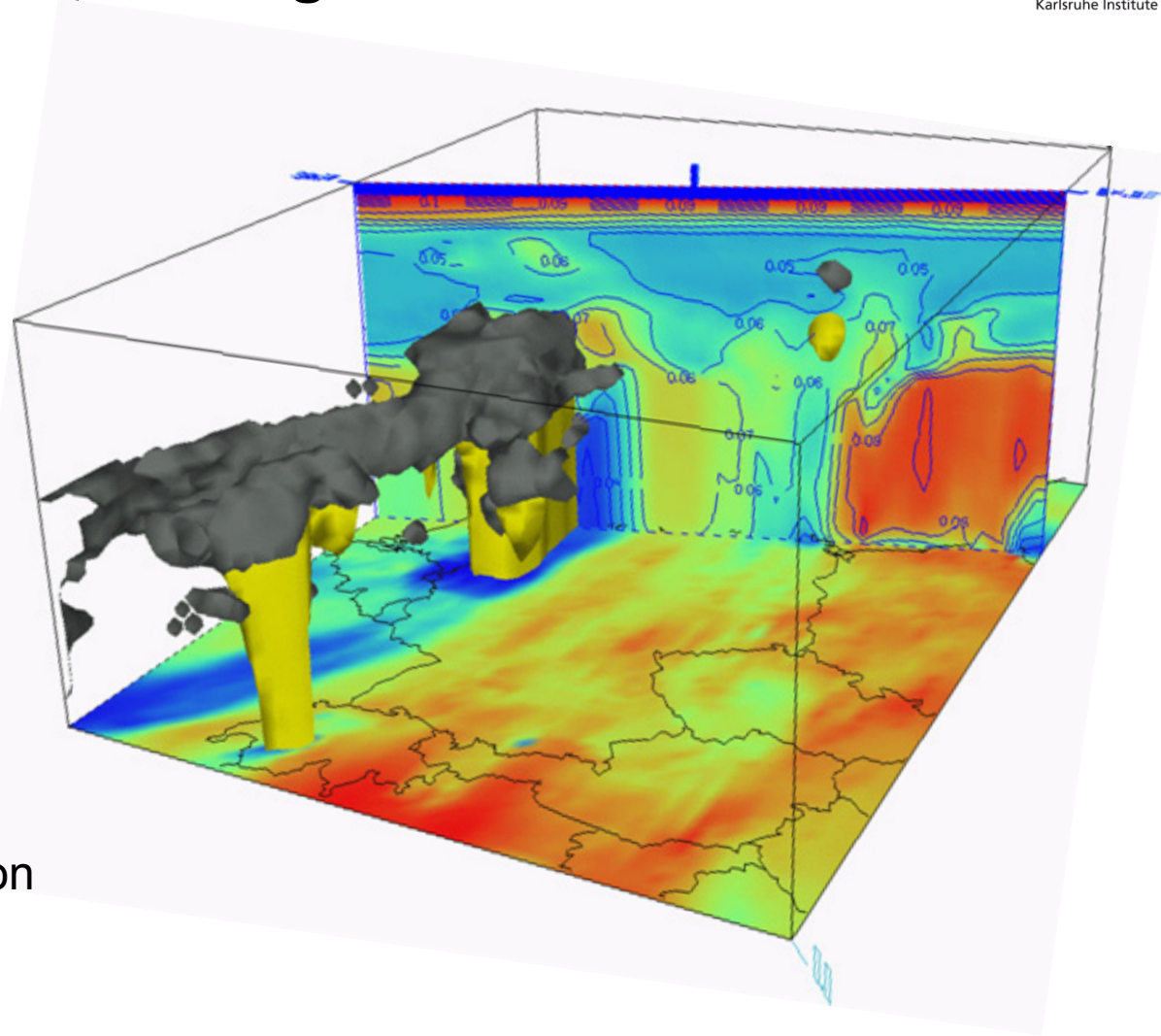
Fig. 3. Global distribution of isoprene emission factors for the MEGAN PFTs.

<http://acd.ucar.edu/~guenther/MEGAN/MEGAN.htm>

<http://www.atmos-chem-phys.net/6/3181/2006/acp-6-3181-2006.pdf>

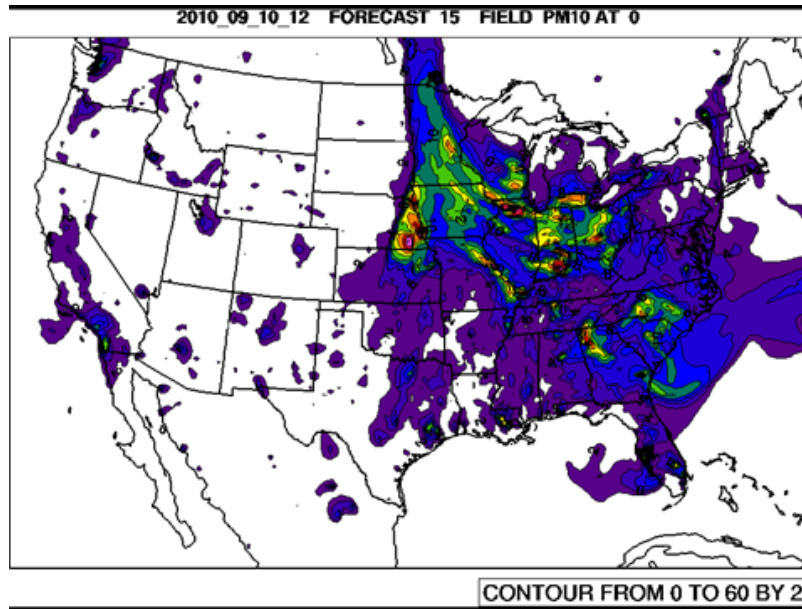
Isoprenemissionen
mit MEGAN
(Beispiel für b))

Anwendungsbeispiel: Regional



Visualisierung eines
MCCM-Ergebnisses
mit Vis5d:
Einfluß eines
Frontdurchgangs auf
troposphärisches Ozon
über Deutschland
(D2 eines genesteten
Modellaufs)

Anwendungsbeispiel: Regional



Real-time-Vorhersage der bodennahen PM10-Konzentration (WRF/chem)

Feedback Luftchemie-Meteorologie (WRF/chem)

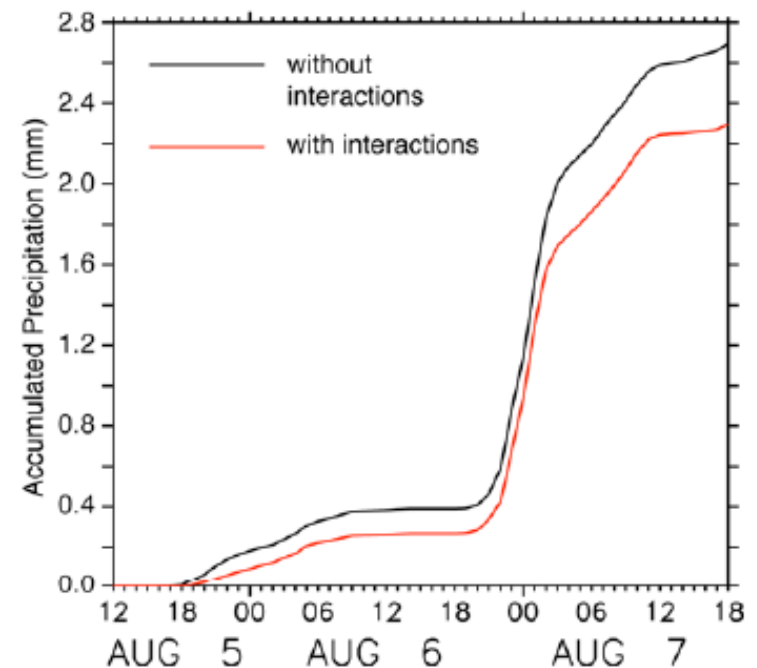
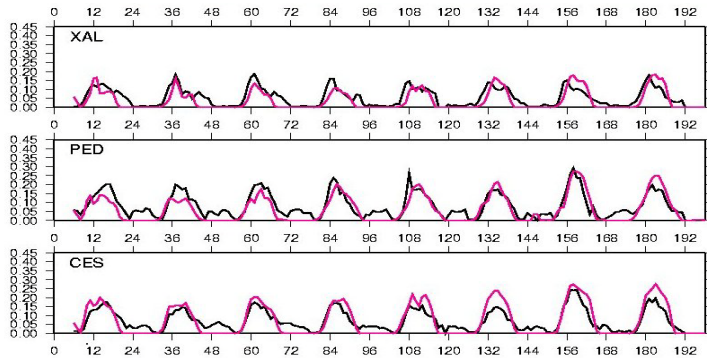
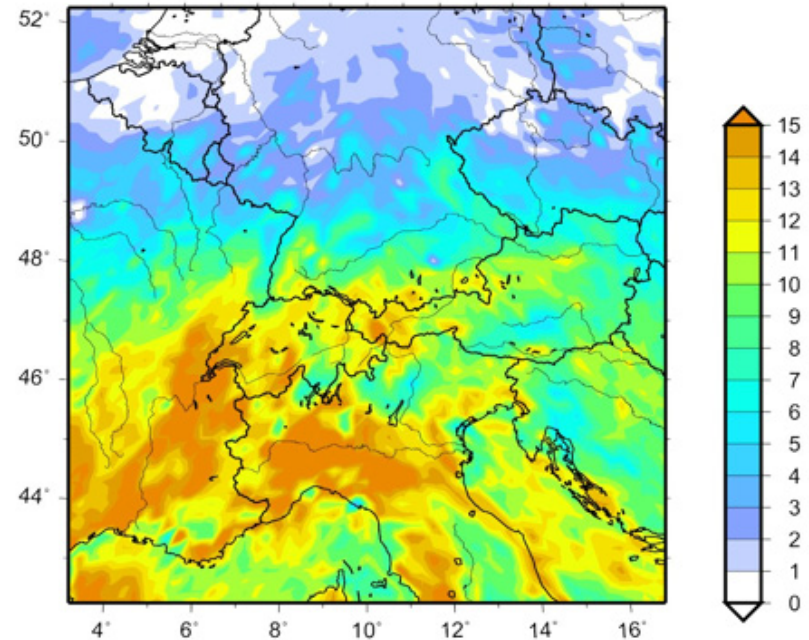


Fig.2. Difference in accumulated precipitation averaged over domain 3 for the simulations with and without cloud-aerosol interactions.

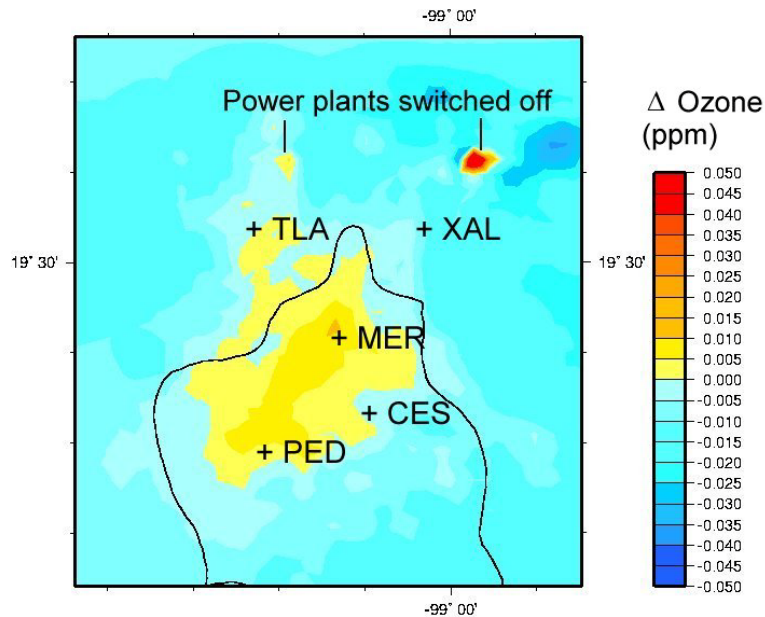
Anwendungsbeispiel: Regional



Days with threshold exceedance Jun-Aug
Difference 2031/2039 - 1991/2000 uv20



Szenariosimulationen (MCCM)

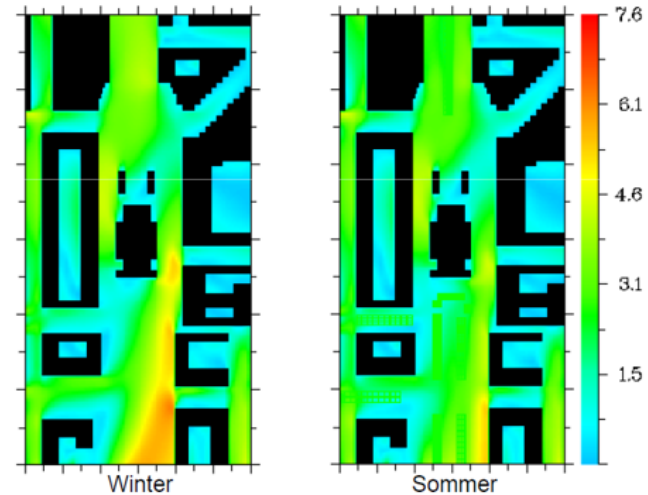


Regionale Klima-Chemie-Simulation mit MCCM: Zunahme der Tage mit Grenzwertüberschreitungen für bodennahes Ozon

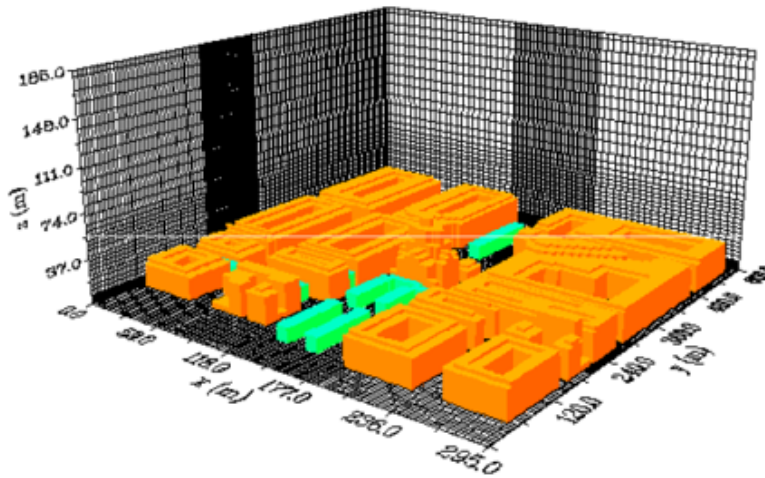
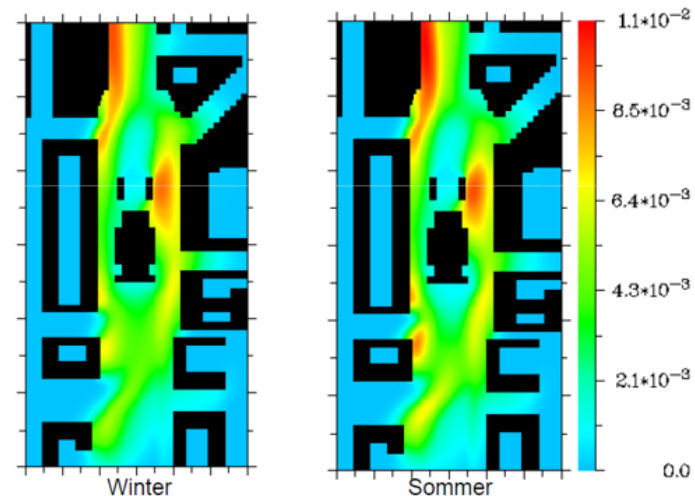
Anwendungsbeispiel: Mikroskalig

Anwendung von MISKAM
auf einen Straßenzug in Mainz

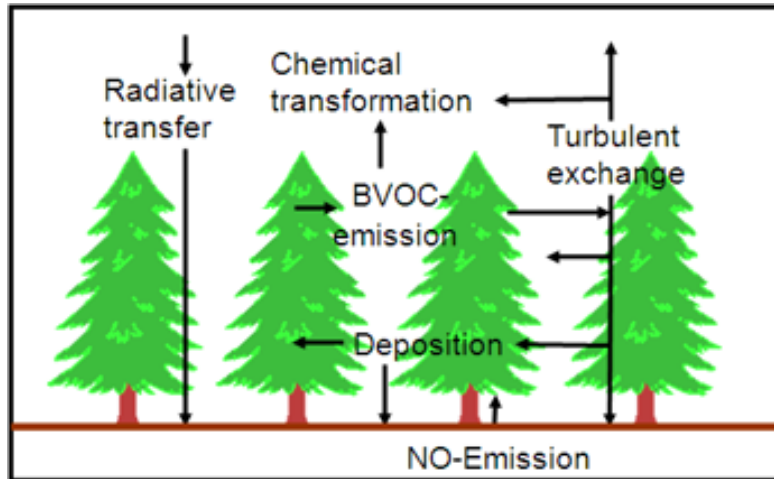
Windgeschwindigkeit in 14 m Höhe
Windrichtung aus 245°



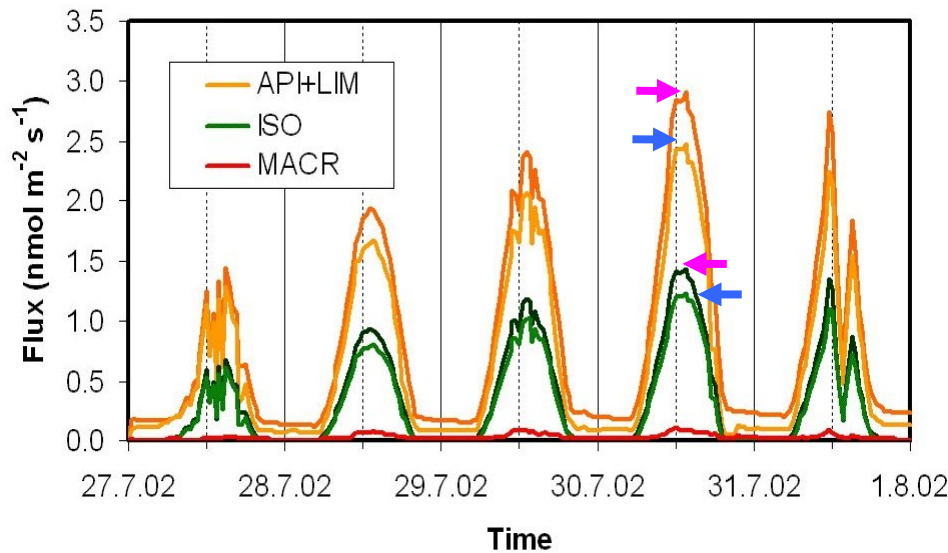
Schadstoffbelastung in 14 m Höhe
Windrichtung aus 245°



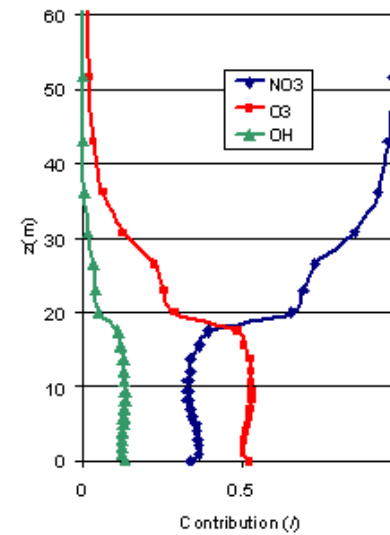
Anwendungsbeispiel: Eindimensional



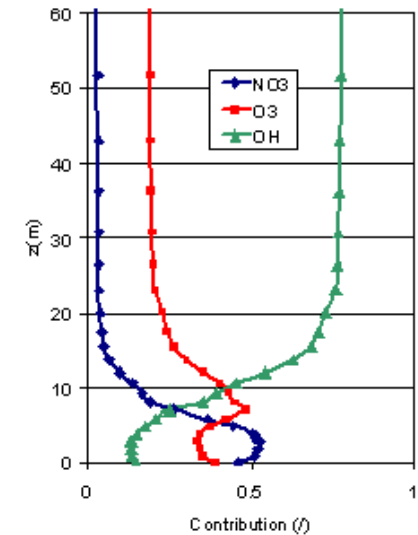
Bestandschemiemodell CACHE:
Eindimensionales Modell zur
Untersuchung der Chemie in
Baumbeständen, 10-40 Schichten
im Kronenraum



Contribution of ozone and radicals to the degradation of monoterpenes at 0.00 h

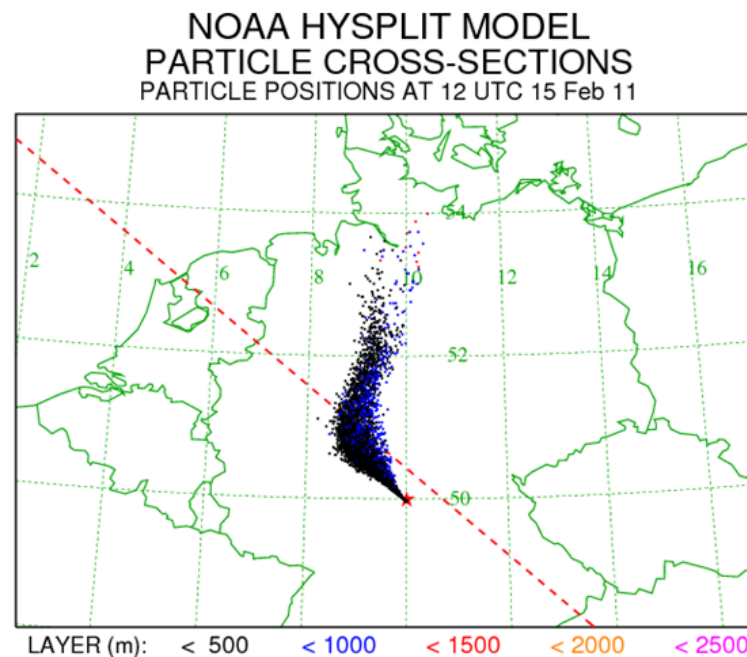


Contribution of ozone and radicals to the degradation of monoterpenes at 12.00 h



Transportmodelle/Chemie-Transportmodelle (CTMs)

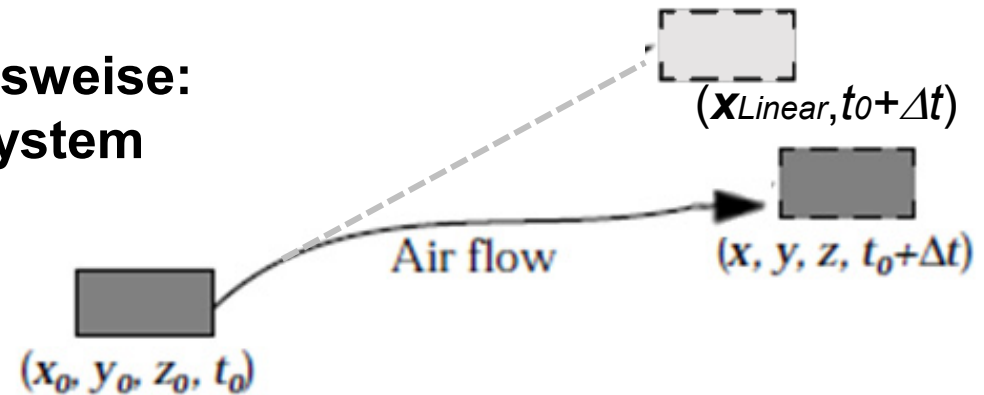
Lagrangesche Modelle



Advektion im Lagrangeschen Bezugssystem

- Lagrangesche Betrachtungsweise:
Sich bewegendes Bezugssystem

$$\frac{dc_i}{dt} = R_i(c_1, \dots, c_n, T) + S_i$$



Lagrangesche Modelle berechnen Trajektorien von emittierten Partikeln (Partikelmodell) oder Wolken („puffs“, Wolken- oder Puffmodell)

Advektion bedeutet Änderung der Position \mathbf{x} im Raum

bei linearem Transport: $\mathbf{x}_{Linear}(t_0 + \Delta t) = \mathbf{x}_0(t_0) + \mathbf{v}(\mathbf{x}_0, t_0)\Delta t$

ist etwas ungenau, deshalb nachbessern:

$$\mathbf{x}(t_0 + \Delta t) = \mathbf{x}_0(t_0) + 0.5(\mathbf{v}(\mathbf{x}_0, t_0) + \mathbf{v}(\mathbf{x}_{Linear}, t_0 + \Delta t))\Delta t$$

Dispersion in der turbulenten Atmosphäre

$$\mathbf{v} = \overline{\mathbf{v}} + \mathbf{v}' \quad \Rightarrow \quad \mathbf{x}(t_0 + \Delta t) = \mathbf{x}_{\overline{\mathbf{v}}}(t_0 + \Delta t)\Delta t + \mathbf{v}'(t + \Delta t)\Delta t G$$

\mathbf{v}' wird mit Hilfe der Varianz σ der Windgeschwindigkeit dargestellt:

$$u' = \sigma_u \lambda, \quad w' = \sigma_w \lambda \quad \text{mit Zufallszahl } \lambda$$

Damit hat im Partikelmodell jedes einzelne Partikel eine etwas unterschiedliche Trajektorie, so daß eine divergierende Wolke entsteht. (Beim Wolkenmodell wird durch σ die Verbreiterung der Wolke beschrieben)

σ kann z.B. mit Hilfe eines Austauschkoeffizienten (siehe Euler-Modelle) parametrisiert werden:

$$\sigma_u = \sqrt{\frac{K_{xx}}{T_{L,u}}} \quad \sigma_w = \sqrt{\frac{K_{zz}}{T_{L,w}}} \quad \text{mit } T_{L,u}=100\text{s}, T_{L,w}=10800\text{s} (\sim 1/f_{cor})$$

Lagrangesche Zeitskala

Es gibt auch andere (komplexere) Ansätze zur Bestimmung von σ

Lagrangesche Dispersionsmodelle

■ Input:

- Benötigen immer **meteorologische Daten** (Temperatur- und Windfelder aus meteorologischem Modell)
- **Emissionen** (als Punkt-, Linien- und Flächenquellen)

■ Output:

- Position von Punktwolken oder Wolken im Raum zu verschiedenen Zeiten
- Darstellung von Konzentrationsfeldern durch Übertragung des Ergebnisses auf Eulersche Betrachtungsweise:
 - Das Modellgebiet wird in Gitterelemente aufgeteilt (**Auszählgitter**, „sampling grid“).
 - Die Konzentration in einem Gitterelement wird über die Anzahl und jeweilige Aufenthaltsdauer der in diesem Gitterelement befindlichen Partikel ermittelt
- Erlauben feine Auflösung (falls entsprechendes Windfeld vorhanden)
- Rechnen nur dort, wo sich Partikel befinden ⇒ besonders vorteilhaft bei einzelnen Punktquellen

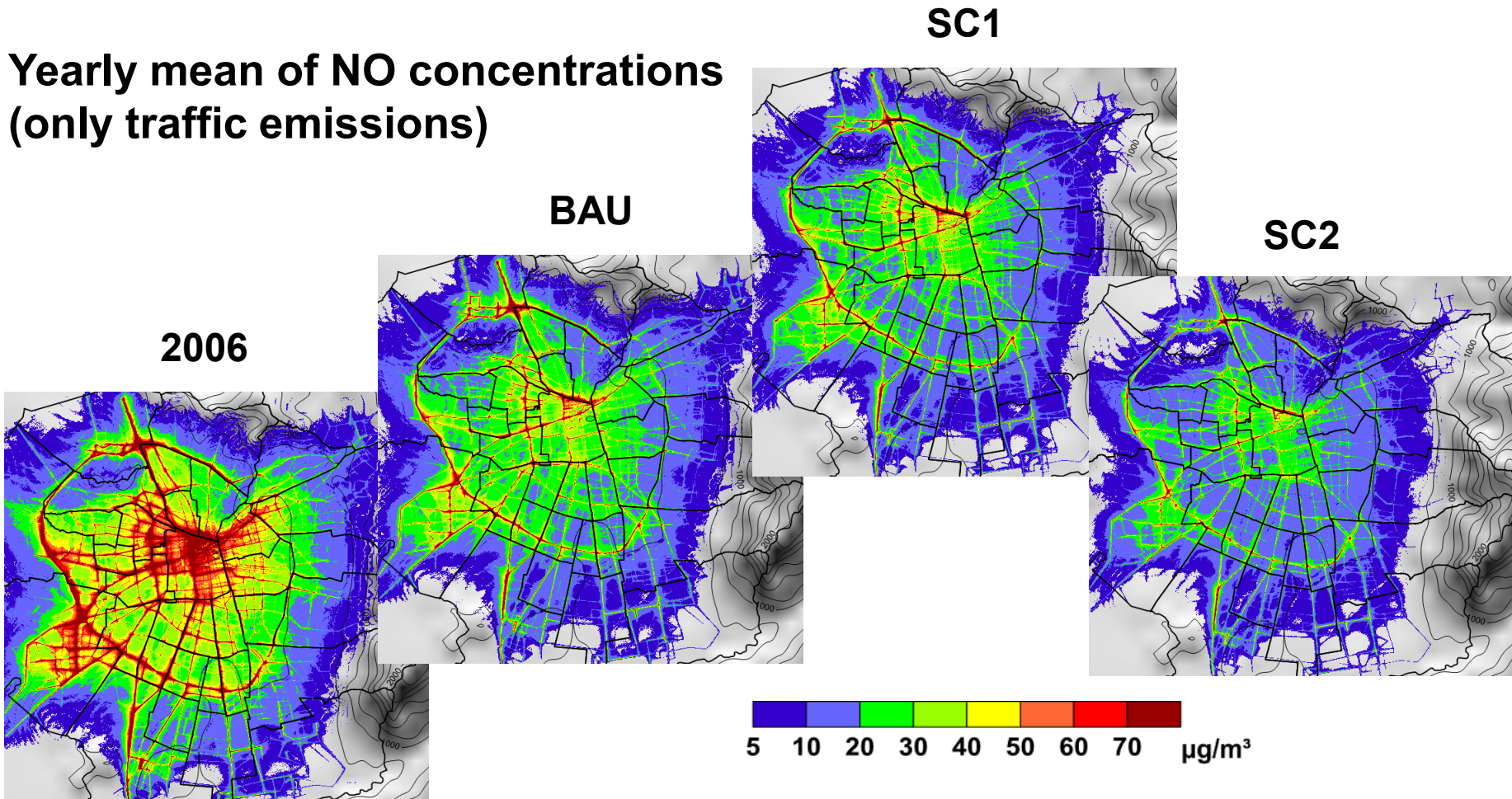
Einige Lagrangemodelle (meist ohne Chemie!)

- **AUSTAL** (Partikelmodell, Realisierung von Anhang 3 der TA Luft; Basisversion frei verfügbar, download [graphische Oberfläche 4000 Euro]) <http://www.austal2000.de>
- **FLEXTRA /FLEXPART** (Trajektorien-, bzw. Partikelmodell, frei verfügbar, download) <http://transport.nilu.no/flexpart>
- **HYSPLIT** (Trajektorien-, bzw. Partikelmodell, frei verfügbar, download oder Internet-basierte Anwendung) <http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php>
- **NAME** (Modell des Lononer VAAC, Whitham et al., DOI: 10.1002/met.3) [http://en.wikipedia.org/wiki/NAME_\(dispersion_model\)](http://en.wikipedia.org/wiki/NAME_(dispersion_model))
- **GRAL** (Partikelmodell, für Forschungszwecke verfügbar, Anfrage) http://pandora.meng.auth.gr/mds/showlong.php?id=133&MTG_Session=606aa8d7e2db8c5da8fb318ebd7a804a
- **Und viele weitere mehr ...**

Teils in Fortran, teils in C, teils Linux, teils Windows

Anwendungsbeispiele: GRAL

Yearly mean of NO concentrations
(only traffic emissions)

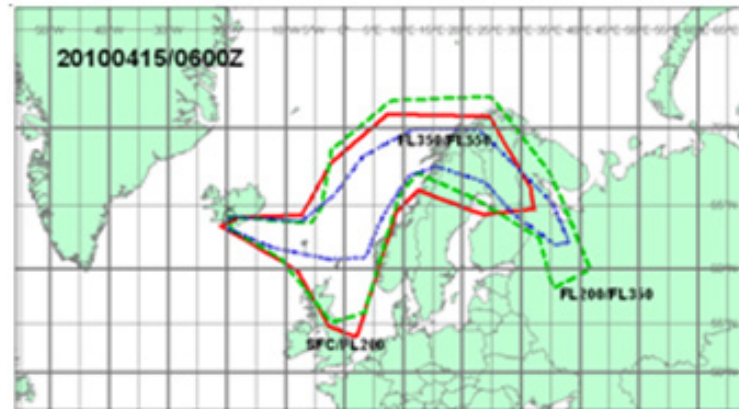


Distribution of yearly mean of NOx concentrations (only traffic emissions), present situation (2006) and future scenarios, based on the micro scale air quality model GRAL

→ meteorological conditions are based on the reference year 2006

Anwendungsbeispiele: NAME

Volcanic ash product,
VAAC London

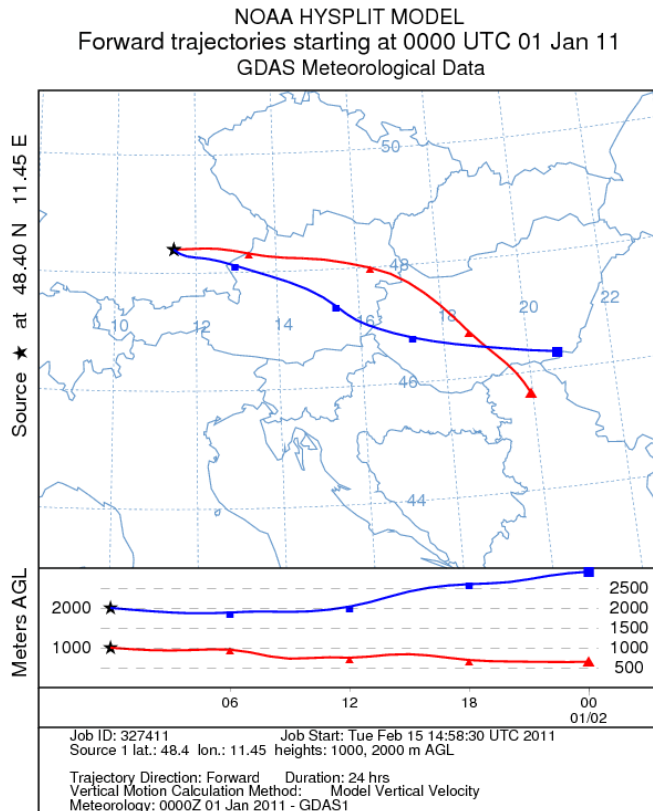


Anwendungsbeispiel: HYSPLIT

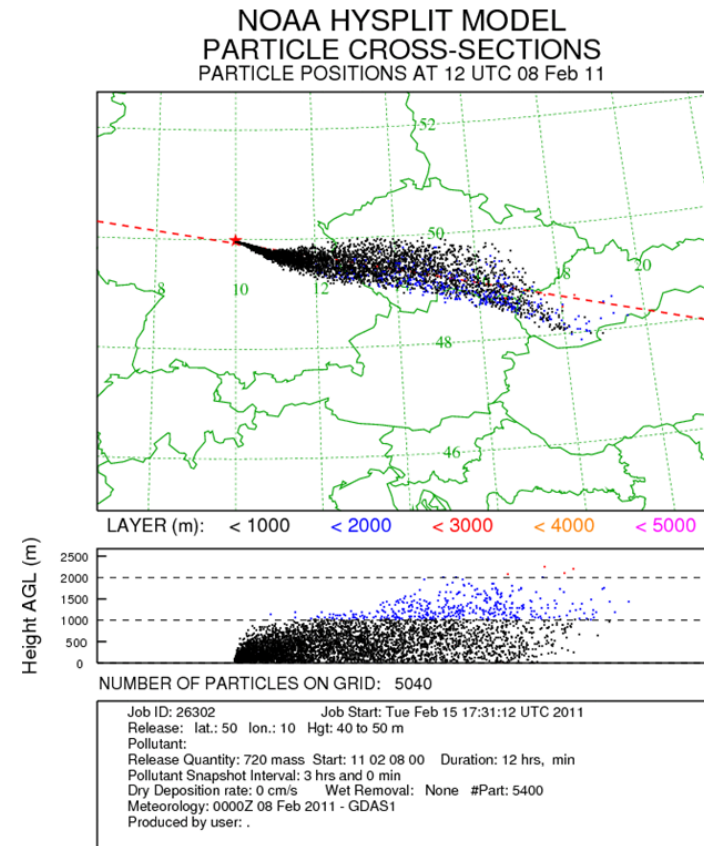
Modell-Download oder **HYSPLIT-WEB** <http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php>

Draxler, R.R. and Rolph, G.D., NOAA Air Resources Laboratory, Silver Spring, MD.

Run HYSPLIT Trajectory Model :
Vorwärts- und Rückwärtstrajektorien
(z.B: woher kommt eine Luftmasse)



Run HYSPLIT Dispersion Model
Ausbreitung von Partikelwolken



Welches Modell soll ich verwenden?

■ Euler

- Komplexe Chemiemechanismen leichter implementierbar
- Dreidimensional: Flächendeckende Berechnung aller Größen
- Auch für einfache Fälle relativ hoher Rechenaufwand für 3-dim-Modelle
- Kann prinzipiell auch Rückkopplungseffekte zur Meteorologie erfassen

■ Lagrange

- Geringer Rechenaufwand für einfache Fälle (ideal für einzelne Punktquellen)
- Für komplexe Fälle mit vielen Quellen und Chemie schnell steigender Rechenaufwand
- Immer meteorologische Felder als Input erforderlich

■ Boxmodell

- Kann für Detailstudien oder erste Abschätzungen sinnvoll sein

Hängt immer von der Problemstellung ab

