

# Atmosphäre: Luftchemiemodellierung

Renate Forkel (renate.forkel@kit.edu)

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



# Inhalt der Vorlesung

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 (*Übung, Hausaufgabe*)
  - Aerosolprozesse
- Transport: Eulersche Modelle
  - Bilanzgleichung für Spurenstoffe in der Atmosphäre
  - Emissionen
  - Modellbeispiele
- Transport: Lagrangesche Modelle
  - Bilanzgleichung für Spurenstoffe in der Atmosphäre
  - Modellbeispiele (*Übung, Hausaufgabe*)

Darstellung der prinzipiellen Möglichkeiten; wenig Details

# Warum Luftqualitätsmodellierung?

Einfluss der Luftqualität auf Gesundheit, Pflanzenwachstum, Materialien

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

**Erste Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Bundes-  
Immissionsschutzgesetz 2002**

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

[http://www.umweltbundesamt.de/luft/messeinrichtungen/TALuft\\_020724.pdf](http://www.umweltbundesamt.de/luft/messeinrichtungen/TALuft_020724.pdf)

**Fortschreibung 2012**

<http://www.bmu.de/themen/luft-laerm-verkehr/luftreinhaltung/>

# 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 ...)

## Meist erforderlich (vorher, bzw. gleichzeitig zu bestimmen):

- Meteorologie (Windfeld, Temperatur, Feuchte)
- Emissionen

- **Mark Z. Jacobson, Fundamentals of Atmospheric Modeling,** 2nd Edition, ISBN: 9780521548656  
Vorlesungsfolien dazu auf  
<http://www.stanford.edu/group/efmh/jacobson/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](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

## A: Phänomenologische und statistische Modelle

## B: Mechanistische Modelle

### ■ Prozessmodelle ohne räumliche Spezifikation (Boxmodelle)

- 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)

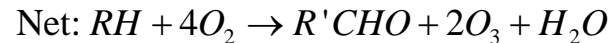
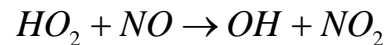
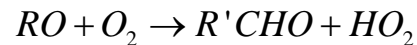
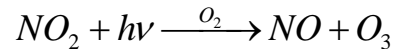
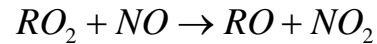
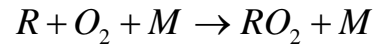
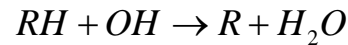
- Ein numerisches Modell, bei der die physikalischen Gleichungen diskretisiert und für alle Gitterpunkte eines ortsfesten „numerischen Gitters“ gelöst werden

### ■ 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)

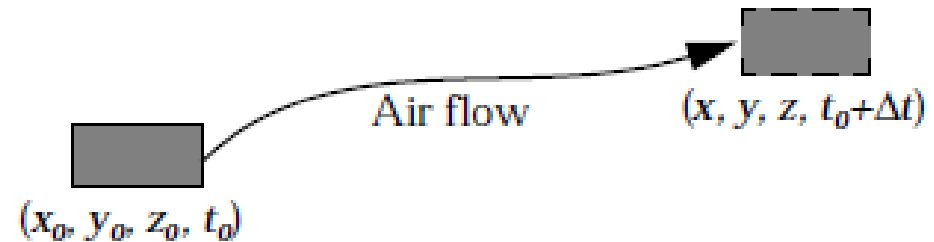
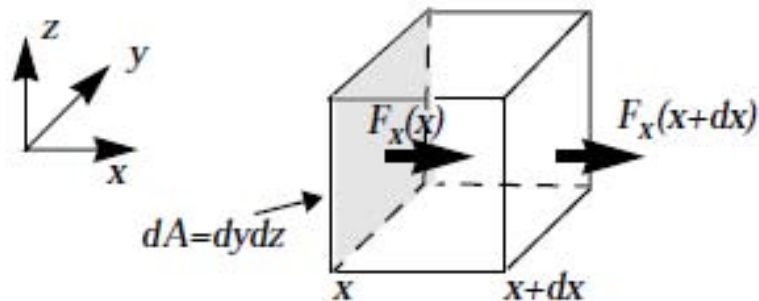


z.B. VOC-Oxidation und  
Ozonbildung  
(R steht für VOC-Rest)

## Transportmodelle (mit oder ohne Chemie)

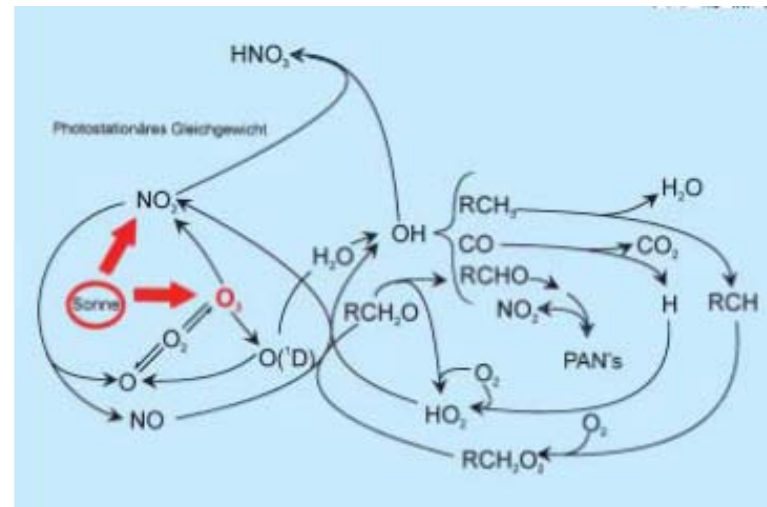
### Eulersche Modelle

### Lagrangesche Modell



# Prozessmodelle

## 1) Gasphasenchemie





# Chemische Reaktionen

## ■ Reaktionen 1. Ordnung

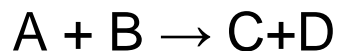


$$\frac{d[A]}{dt} = -k[A]$$

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

(Photolysefrequenz  $J$ :  
Strahlungsmodell oder  
Parametrisierung)

## ■ Reaktionen 2. Ordnung

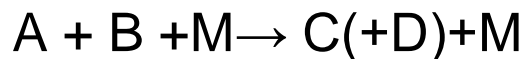


$$\frac{d[A]}{dt} = \frac{d[B]}{dt} = -k[A][B]$$

$k$ : Ratenkonstante,  
meist Arrhenius-Form

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

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

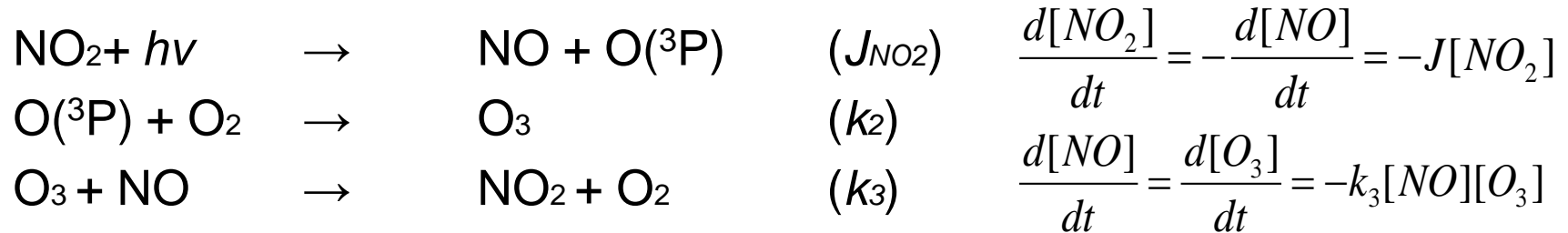


$$\frac{d[A]}{dt} = \frac{d[B]}{dt} = -k'[A][B]$$

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

# Chemiemechanismen: Einfaches Beispiel

## ■ NO<sub>x</sub>-Ozon-Gleichgewicht (bei Abwesenheit von VOC oder sonstigen Radikalquellen!)



## Differentialgleichung

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

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

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



- Übliche Mechanismen für die troposphärischen Gasphasenchemie beschreiben die Umwandlung von ca. 30-100 Spezies und umfassen ca. 100-300 Reaktionen, davon ~ 20-50 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>, mehrere Tausend Reaktionen

- System von Differentialgleichungen der Form,

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

(d.h. ähnlich wie Gleichung (★) auf Folie 10, aber für  $i=1,n$ )

## Numerische Lösung

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

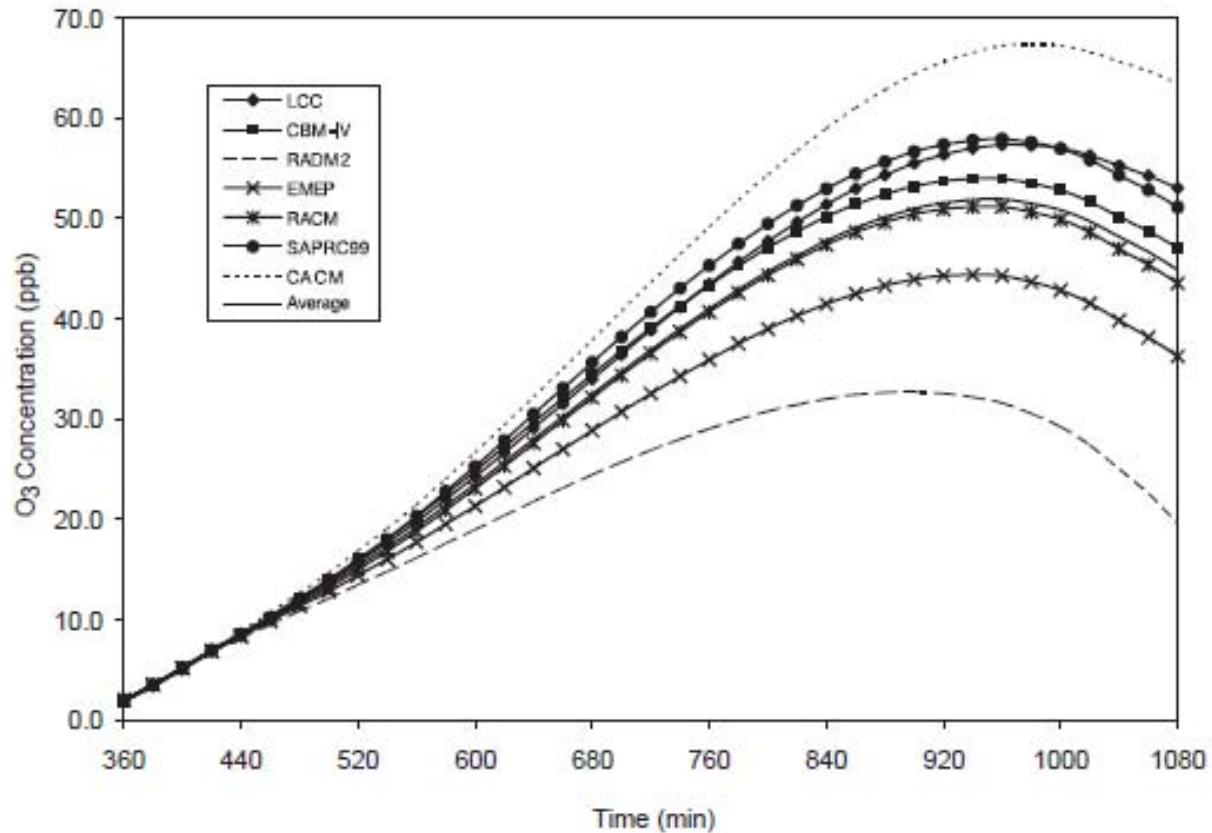
- **Solverpaket KPP** (Kinetical PreProcessor)

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

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

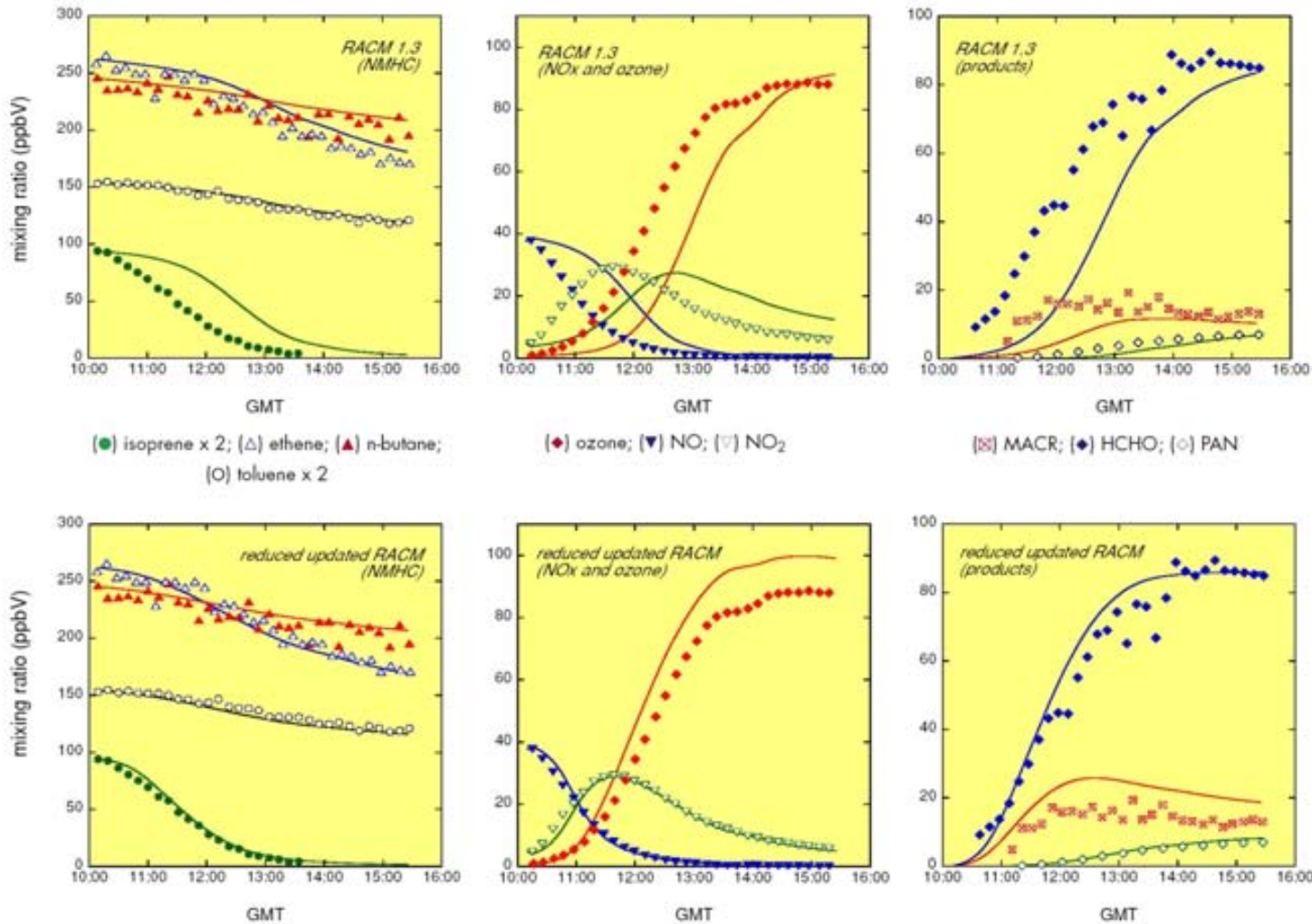
Atmos. Chem. Phys., 6, 187–195, 2006, [www.atmos-chem-phys.org/acp/6/187/](http://www.atmos-chem-phys.org/acp/6/187/)

# Chemiemechanismen: Unterschiede



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

# Beispiel: Ozon und VOC

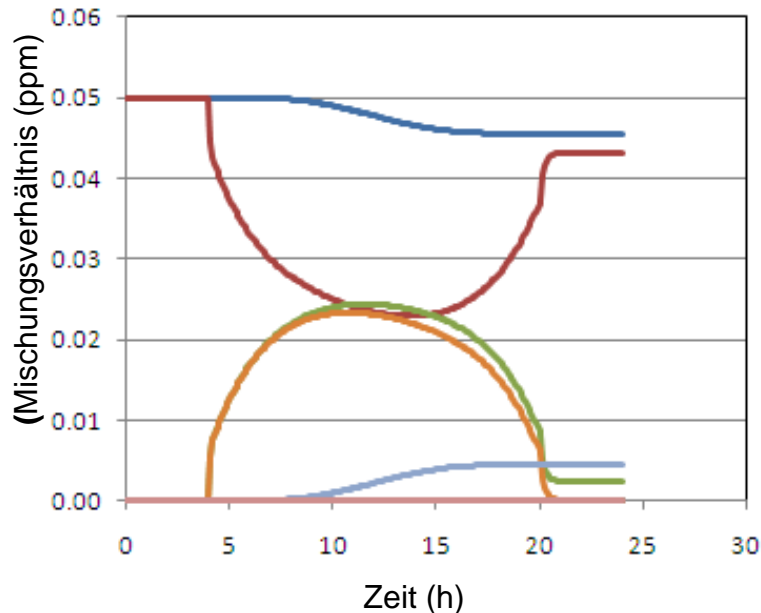


Verbesserung der Isoprenoxidation bei RACM, Vergleich mit Smogkammermessung  
 Geiger et al., Atmospheric Environment 37 (2003) 1503–1519, doi:10.1016/S1352-2310(02)01047-6

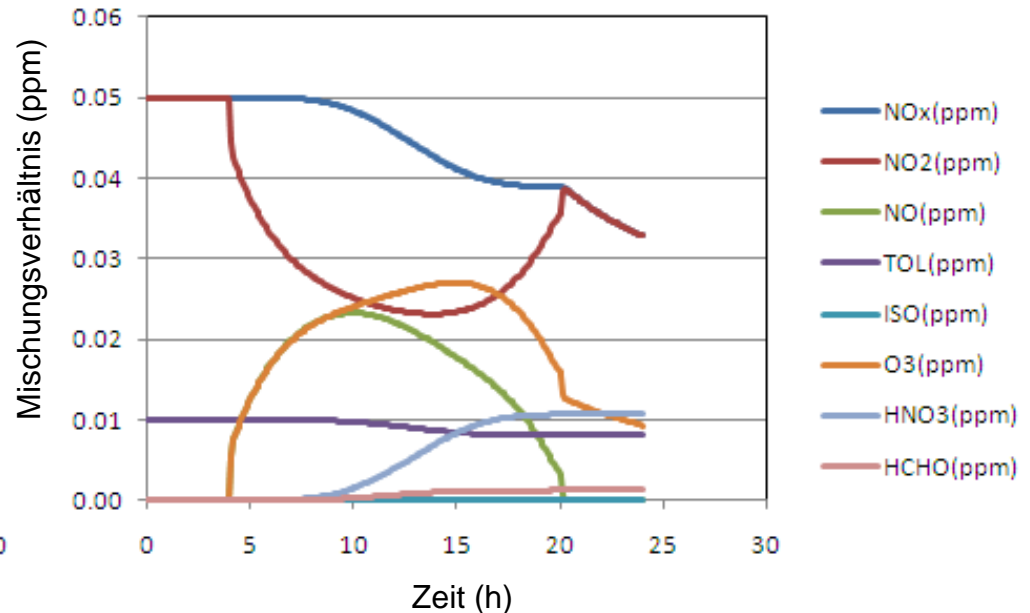


# Anwendungsbeispiel RACM

Programm racm\_box, Anwendung für 24 Stunden  
Anfangskonzentrationen stehen in namelist.txt



Initialisierung:  
CO<sub>2</sub> 360 ppm, CH<sub>4</sub> 1.7 ppm,  
CO 0.2 ppm und NO<sub>2</sub> 0.05 ppm  
Keine Emissionen

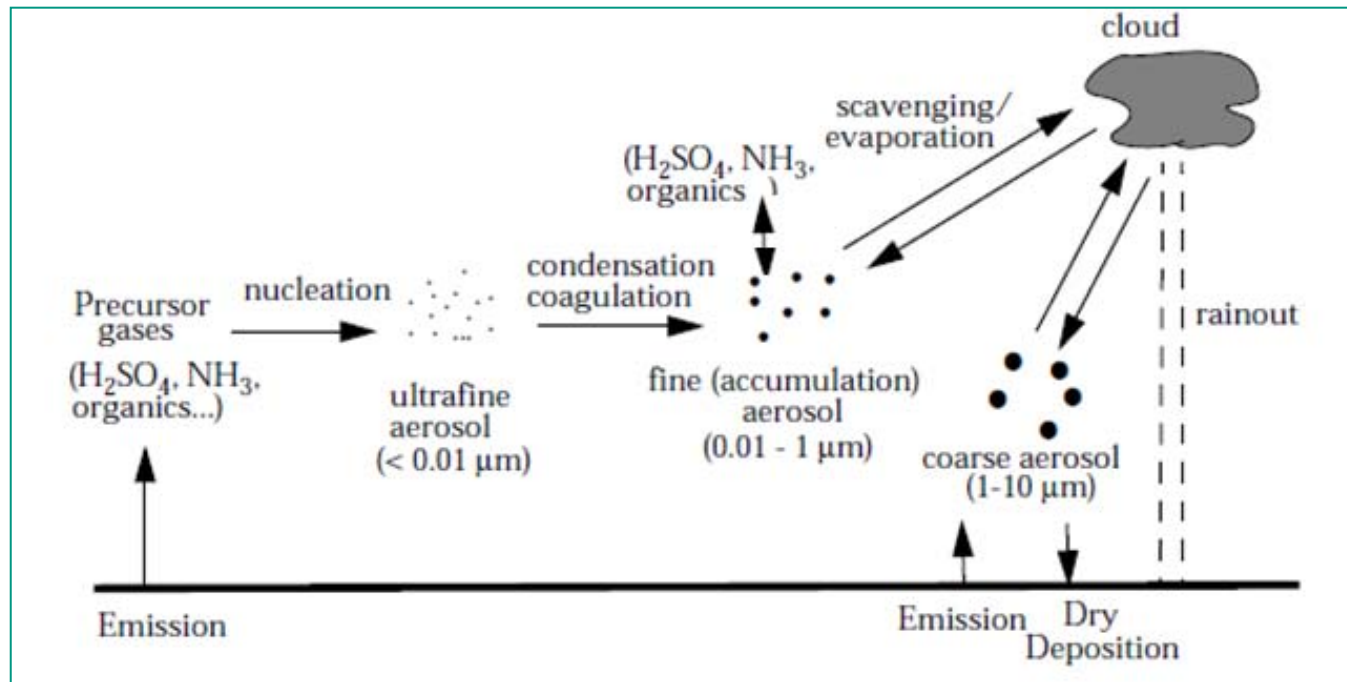


Initialisierung wie links, aber  
mit zusätzlichem Kohlenwasserstoff  
(hier 0.01 ppm Toluol)

**Einfluss von Isopren und Sonnenstand:  
Hausaufgabe**

# Prozessmodelle

## 2) Partikelphase: Aerosol- und Wolkenprozesse



# Beschreibung von Aerosolprozessen

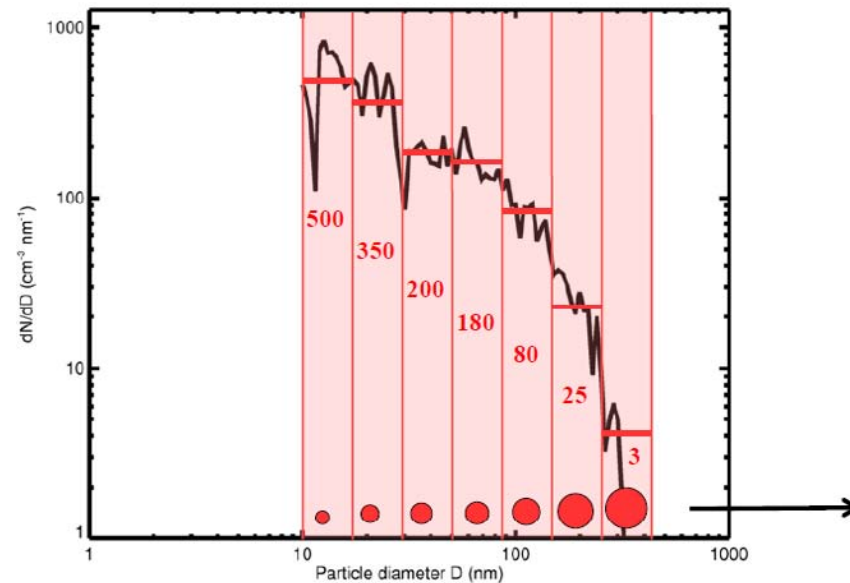
- **„Bulk“: Nur ein repräsentatives Partikel**  
z.B. **Nukleation**, Berechnung des **Gleichgewichts** zwischen Gas- und Partikelphase für Sulfat, Nitrat, Chlorid, Natrium und Wasser;  
in Tropfen auch **chemische Reaktionen** in der Flüssigphase  
Berechnet werden Massenkonzentrationen (und evtl. aus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

Größenverteilung



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

# Beschreibung von Aerosolprozessen

## Modal (Darstellung der Größenverteilung durch Log-Normalverteilungen)

### Prognose der Momente

$$M_k = N D_g^k \exp\left[\frac{k^2}{2} \ln^2 \sigma_g\right]$$

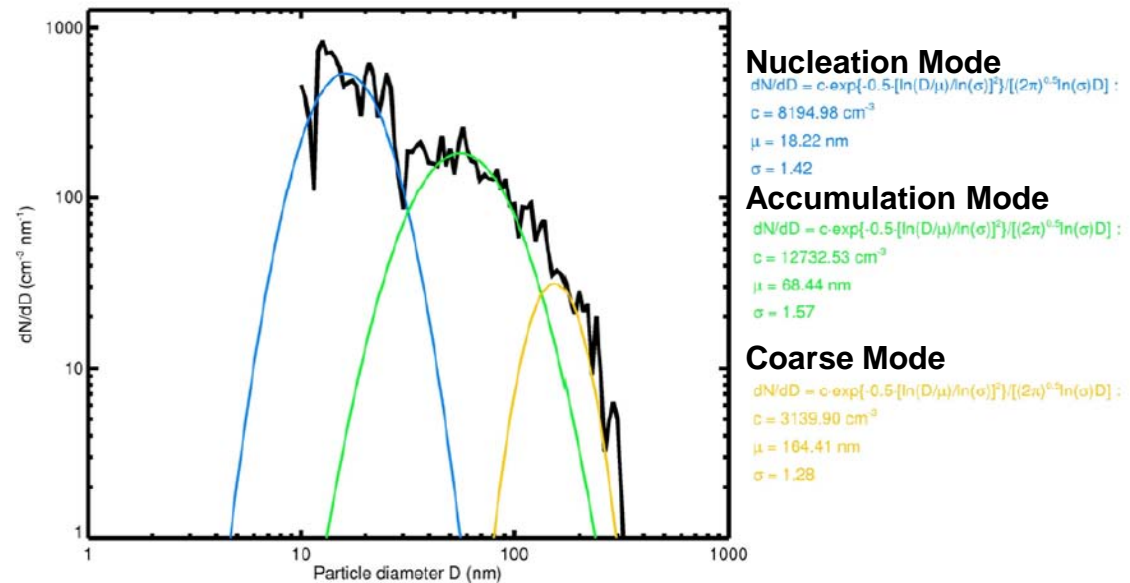
für  $k=0$  (Anzahl),  $k=2$  (Oberfläche),  
 $k=3$  (Volumen)

⇒  $D_g$  (mittl. Durchmesser),  
 $\sigma_g$  (Standardabweichung)

Bei Größenänderung  
Änderung von  $M_k$ , und  
damit von  $D_g$  und  $\sigma_g$

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

### Größenverteilung

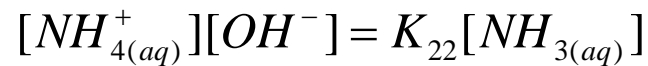
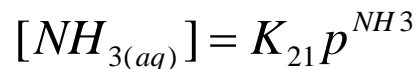
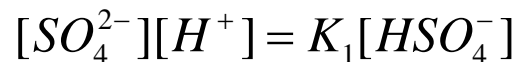
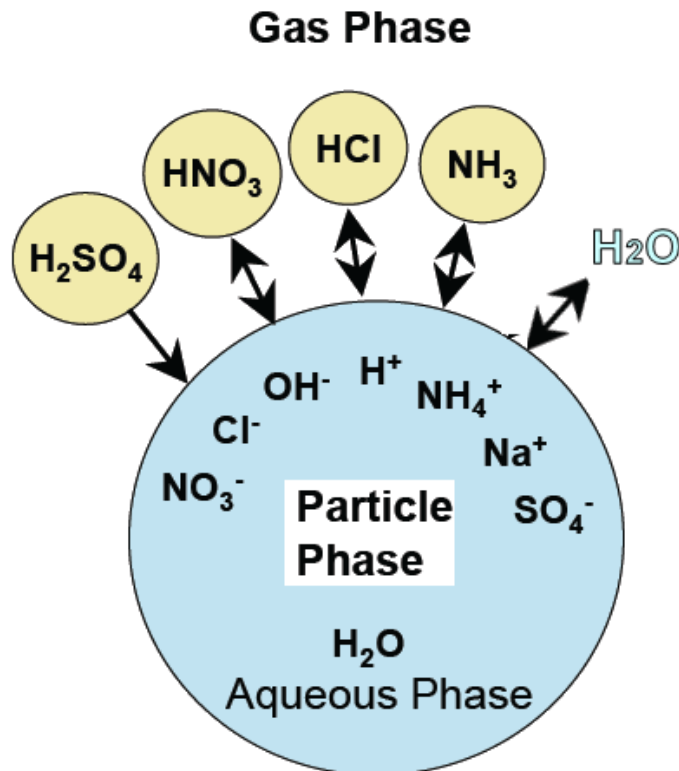


- Liefert etwas Größeninformation. Wird in CTMs verwendet

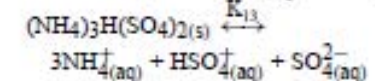
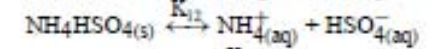
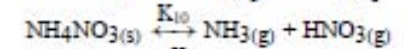
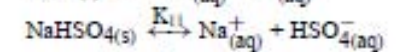
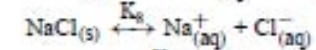
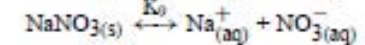
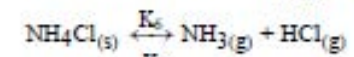
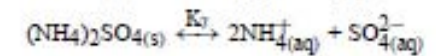
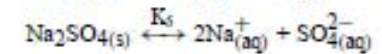
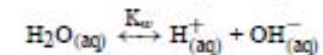
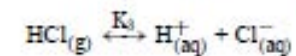
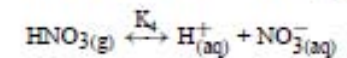
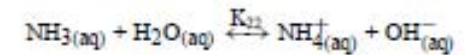
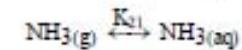
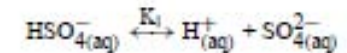
# Beispiel: Gleichgewicht Gas-Partikelphase

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

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

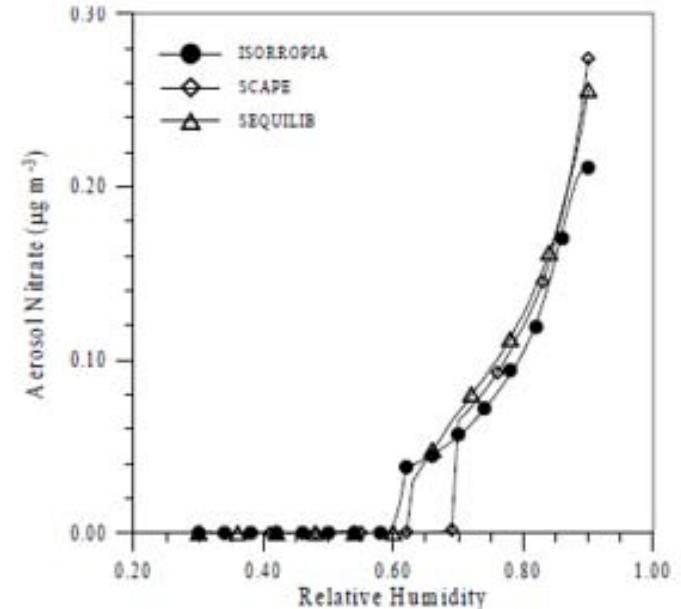
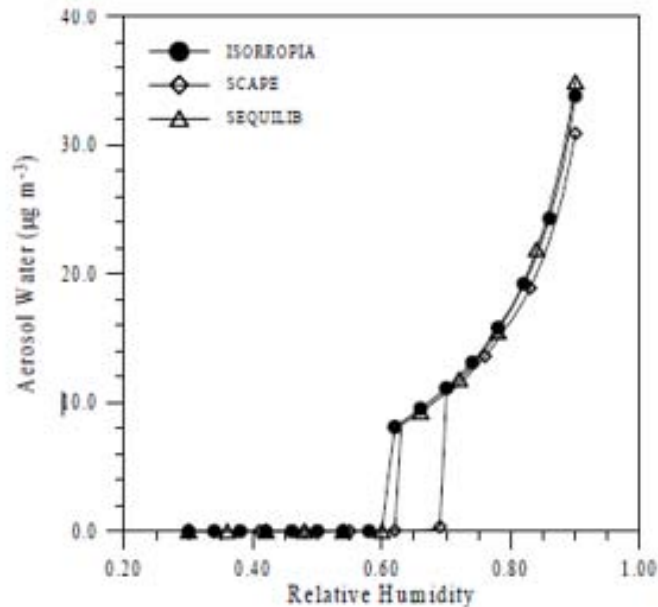


usw., siehe rechts ...



# Anwendungsbeispiel: Isorropia

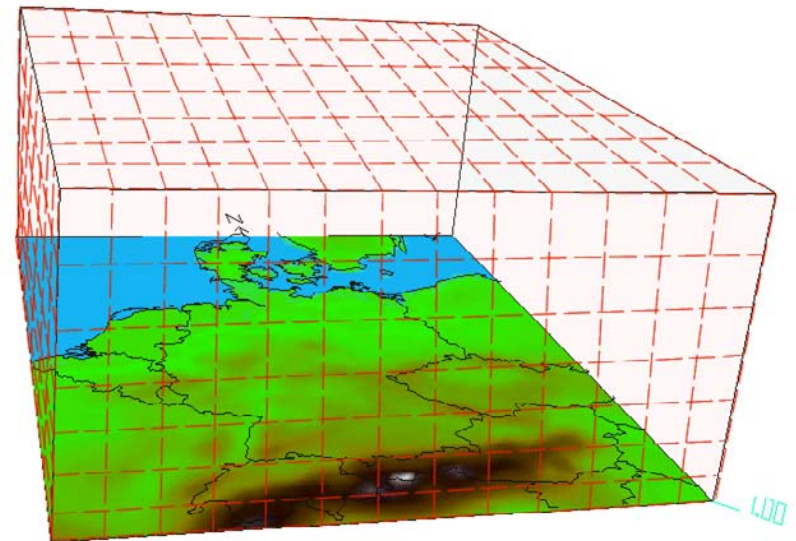
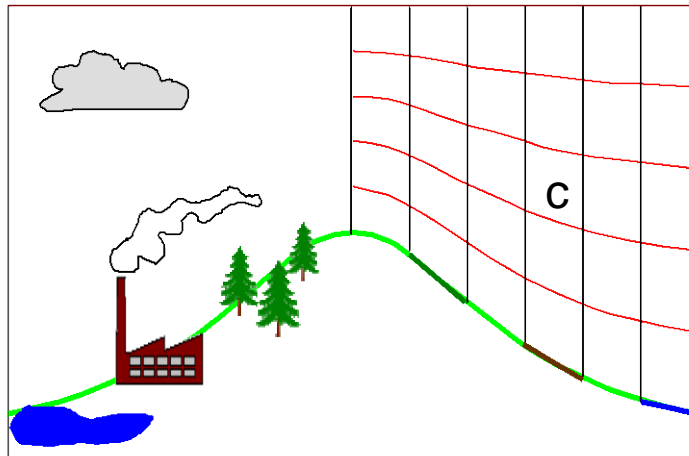
- Wasseraufnahme hängt ab von relativer Feuchte und vorhandenem löslichem Material



Setup: ähnlich wie in DEMO.INP, aber mit festem  $\text{SO}_4$  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](http://nenes.eas.gatech.edu/ISORROPIA/Version2_1/ISORROPIA21Manual.pdf)

# Transportmodelle/Chemie-Transportmodelle (CTMs)

## 1) Eulersche Modelle





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

## ■ Eulersche Betrachtungsweise: Ortsfestes Gitter

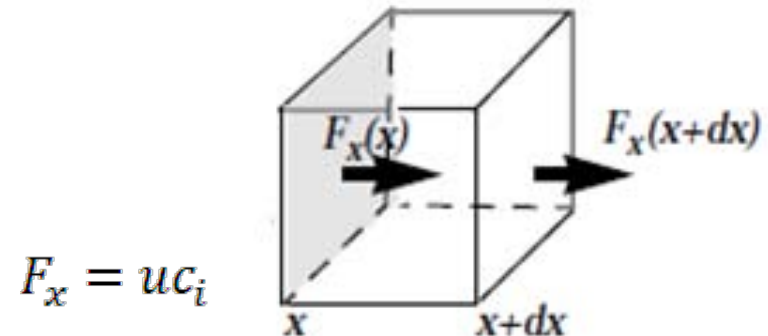
$c_i$  steht hier für das Mischungsverhältnis eines beliebigen Spurengases bzw. für eine reaktive Aerosolkomponente.

Für jede Substanz muss die unten stehende Gleichung an jedem Gitterpunkt gelöst werden.

(d.h. bis zu über 100 Gleichungen;  
Zum Vergleich: Meteorologiemodell etwa 10-20 Gleichungen)

### Bilanz:

Zeitl. Änderung = Transport mit mittl. Wind + turbulenter Transport +  
Chemie + sonst. Quellen u. Senken



# Darstellung der Bilanzgleichung mit Gradientansatz für turbulente Flüsse

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

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

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

$$l(z) = \frac{\kappa z}{1 + \kappa \frac{z}{\lambda}}$$

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

# Weitere Prozesse und Parametrisierungen

**R<sub>i</sub>:** Quellen und Senken durch chemische Reaktionen (Folie 13)  
und Aerosolprozesse

**S<sub>i</sub>:** Quellen (Emissionen)  
Senken (z.B. Deposition)  
Wechselwirkung mit Meteorologie  
- Wolkenprozesse (Auswaschen)  
- Konvektiver Transport

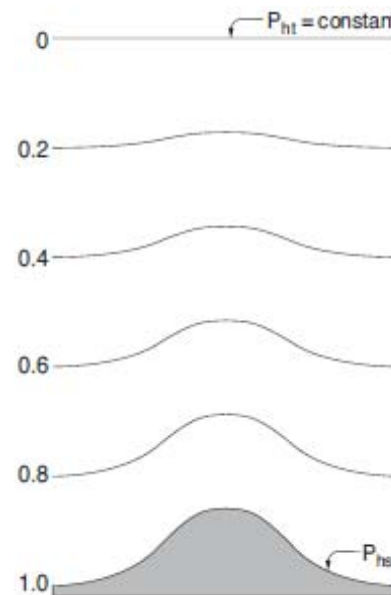
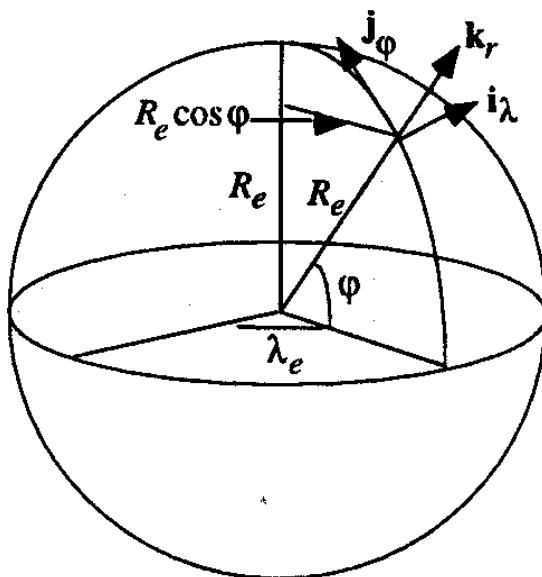
## Operator Splitting

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

# Koordinatentransformation

Darstellung der Bilanzgleichung auf Folie 26: kartesische Koordinaten:

- Für die Anwendung auf der Erde ist bei vielen Anwendungen z.B. die Verwendung von Kugelkoordinaten sinnvoll.
- In der Vertikalen: Topographiefolgendes Koordinatensystem, Druckkoordinaten (Vorteil: unten „dünne“ Schichten, oben dickere)



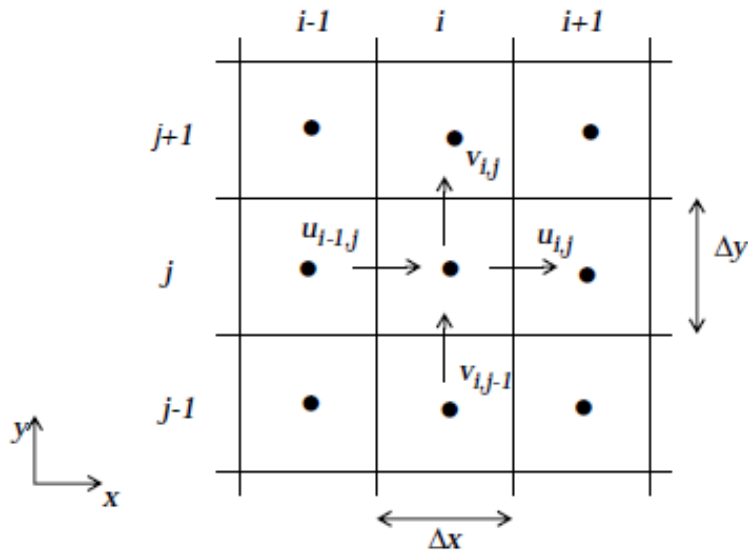
$$dx = (R_e \cos \varphi) d\lambda_e$$

$$dy = R_e d\varphi$$

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

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

Weiteres z.B. siehe Jacobson



Einfachster Algorithmus für die Advektion von  $n$  für kartesische Koordinaten

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

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) (Meteorologische Felder werden (z.B. stündlich) eingelesen und müssen vorher bereitgestellt werden.)

## ■ Online gekoppelte Meteorologie-Chemiemodelle:

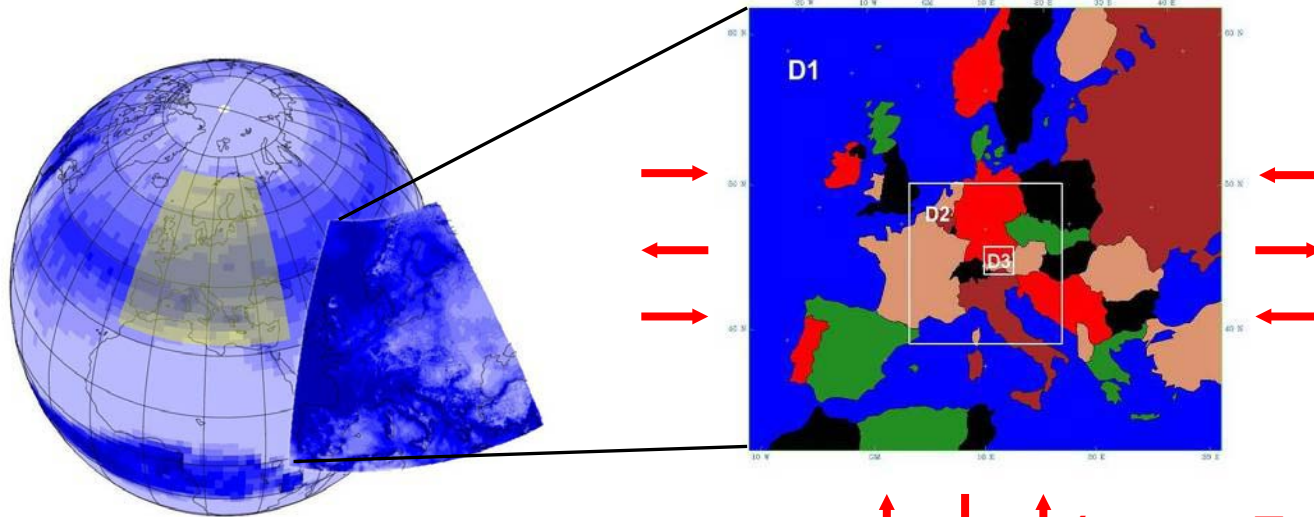
Berechnen meteorologische Größen  $T$ ,  $q$ ,  $u$ ,  $v$ ,  $w$  an allen Gitterpunkten unter Berücksichtigung von advektivem und turbulentem Transport + Quellen und Senken (Wettervorhersagemodell)

### **im gleichen Modelllauf**

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

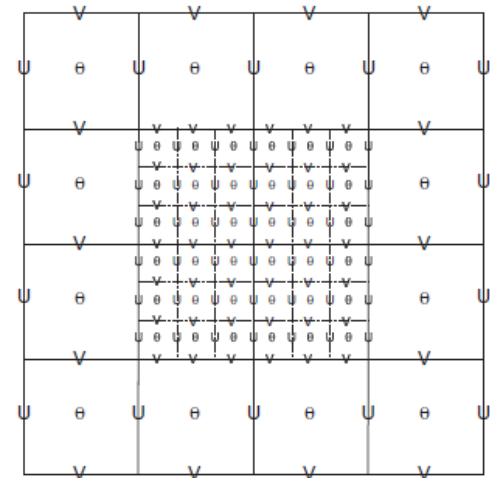
↑ ↓ ↑ (u, v, w, T, q, p)  
(C<sub>1</sub>, ..., C<sub>n</sub>)

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

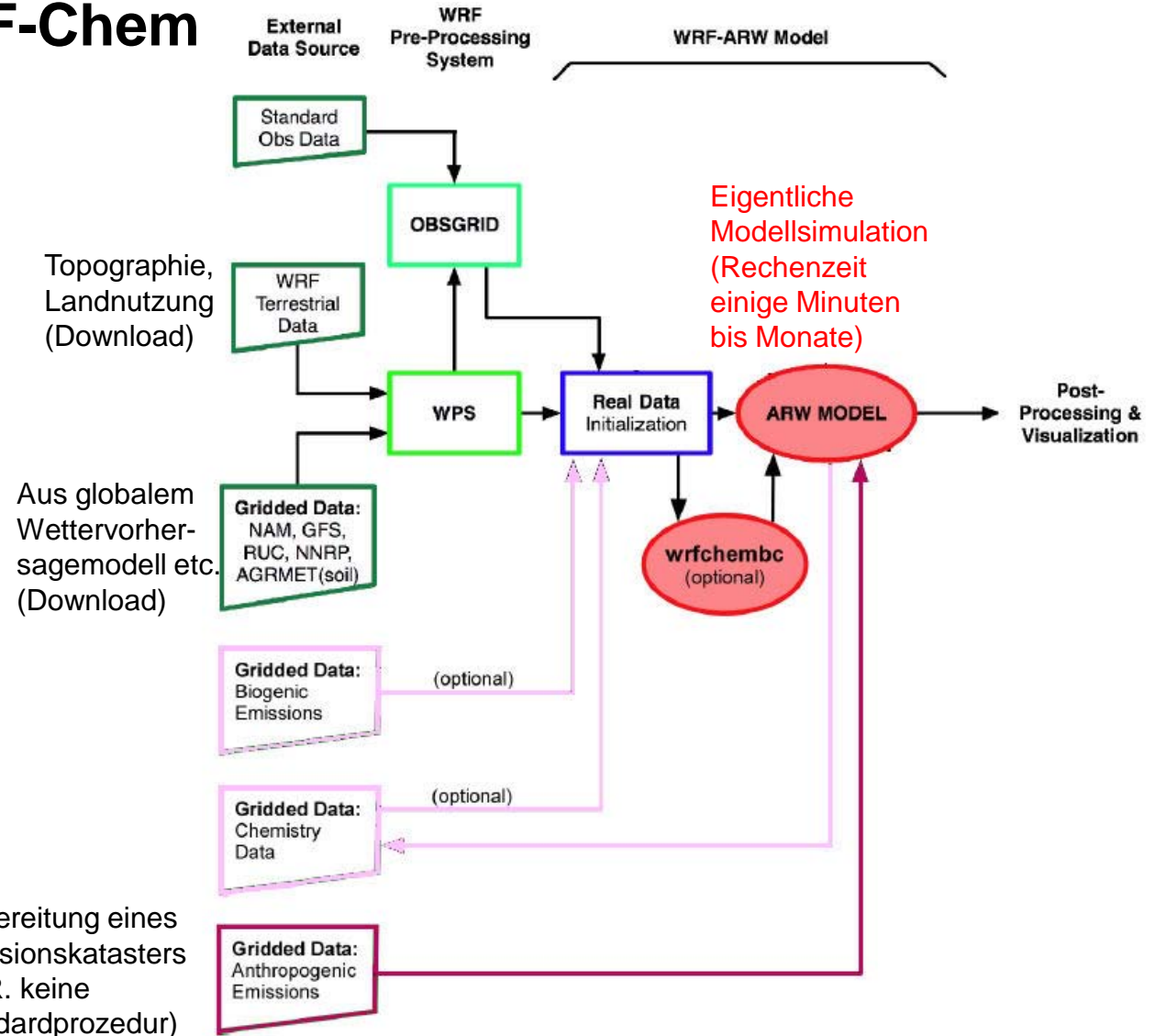
- 3-d Felder aller chemischen Spezies
- bei Meteorologie-Chemiemodellen:  
3-d Felder aller chemischen Spezies und  
3-d-Felder der meteorologischen Größen



# Flussdiagramm für Meteorologie-Chemiemodell am Beispiel WRF-Chem

<http://www.mmm.ucar.edu/wrf/users>

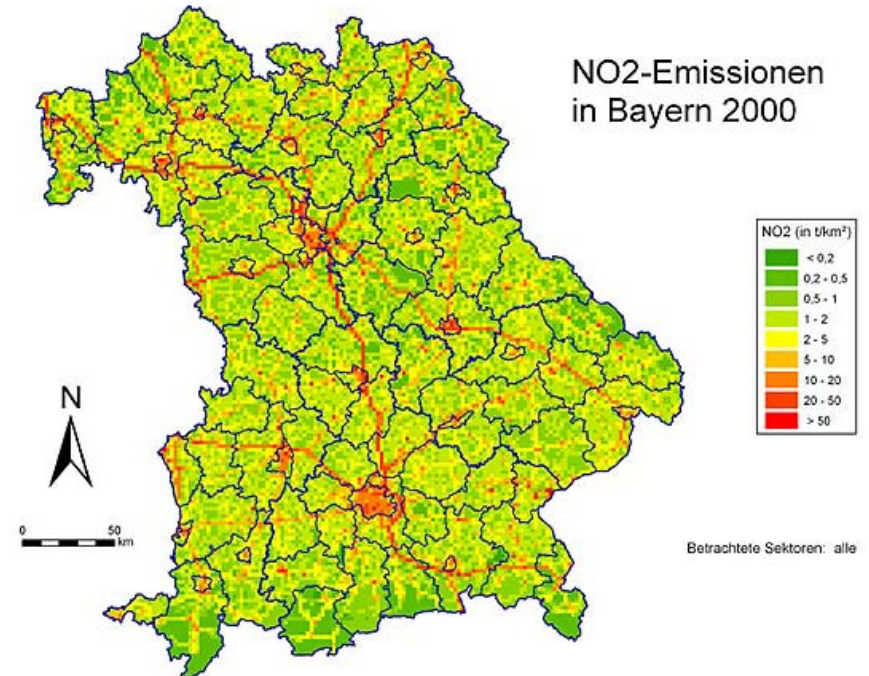
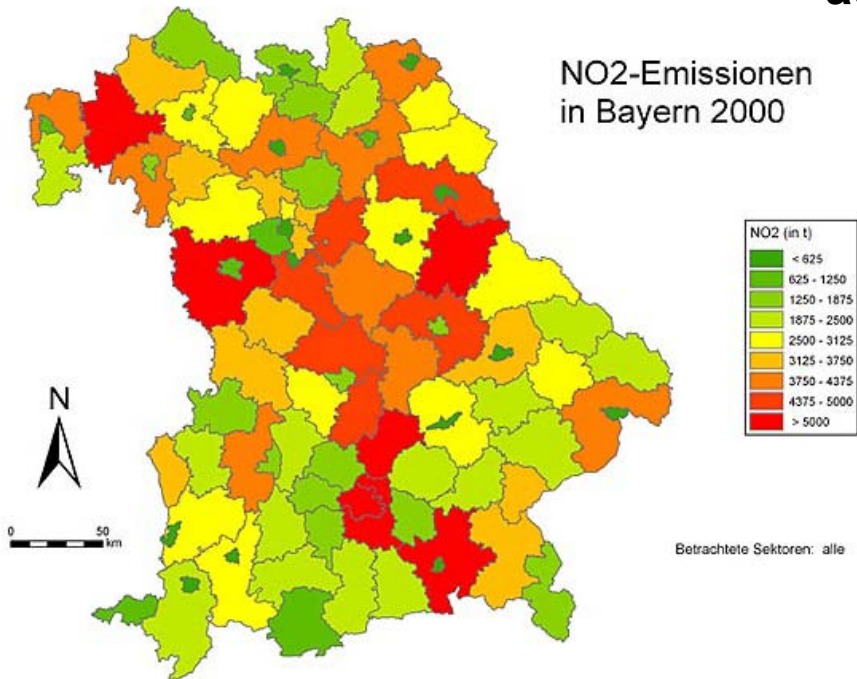
<http://ruc.noaa.gov/wrf/WG11>



# 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

# Aufbau von Emissionskatastern

## Einteilung der Emittenden in Sektoren

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

z.B. **IPCC**

1. Energy
2. Industrial Processes
3. Solvents and Other Product Use
4. Agriculture
5. Land Use Change and Forestry
6. Waste

Korrespondenz zwischen IPCC- und SNAP-Kategorien

[http://www.eea.europa.eu/publications/EMEPCORINAIR3/BSVI\\_B.pdf/view/view](http://www.eea.europa.eu/publications/EMEPCORINAIR3/BSVI_B.pdf/view/view)

# Datenquellen und Emissionsmodelle

Beispiele für Datenquellen anthropogener Emissionen:

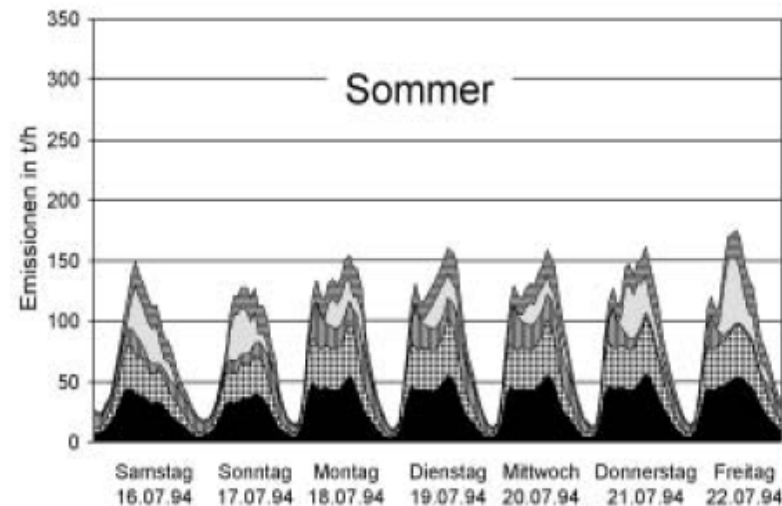
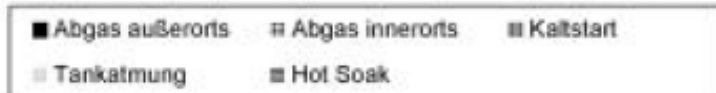
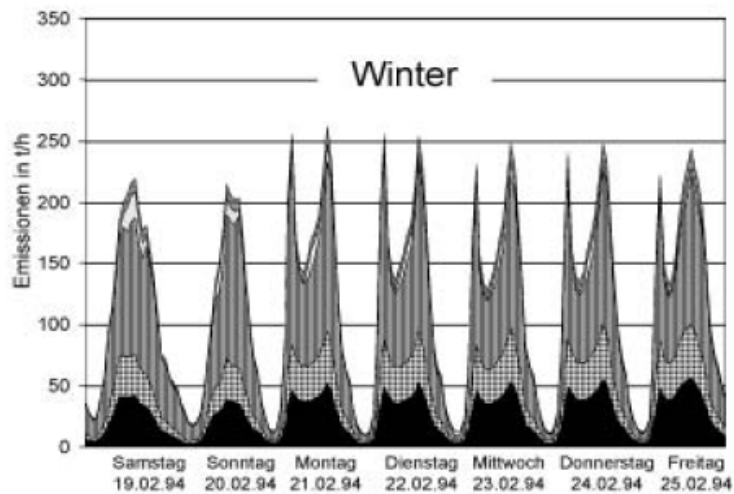
- Verkehrsemissionen auf der Basis von Verkehrsdaten und spezifischen Fahrzeugemissionen unter Berücksichtigung von Fahrzyklen
- Verkehrsemissionen und Verdunstung von Treibstoffen aus Verkaufs- und Lagermengen
- Lösemittelverbrauch z.B. aus Verkaufsdaten

Programme zur Erstellung von Emissionsdaten (speziell Verkehr)

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

# Emissionsdaten für Luftchemiemodelle

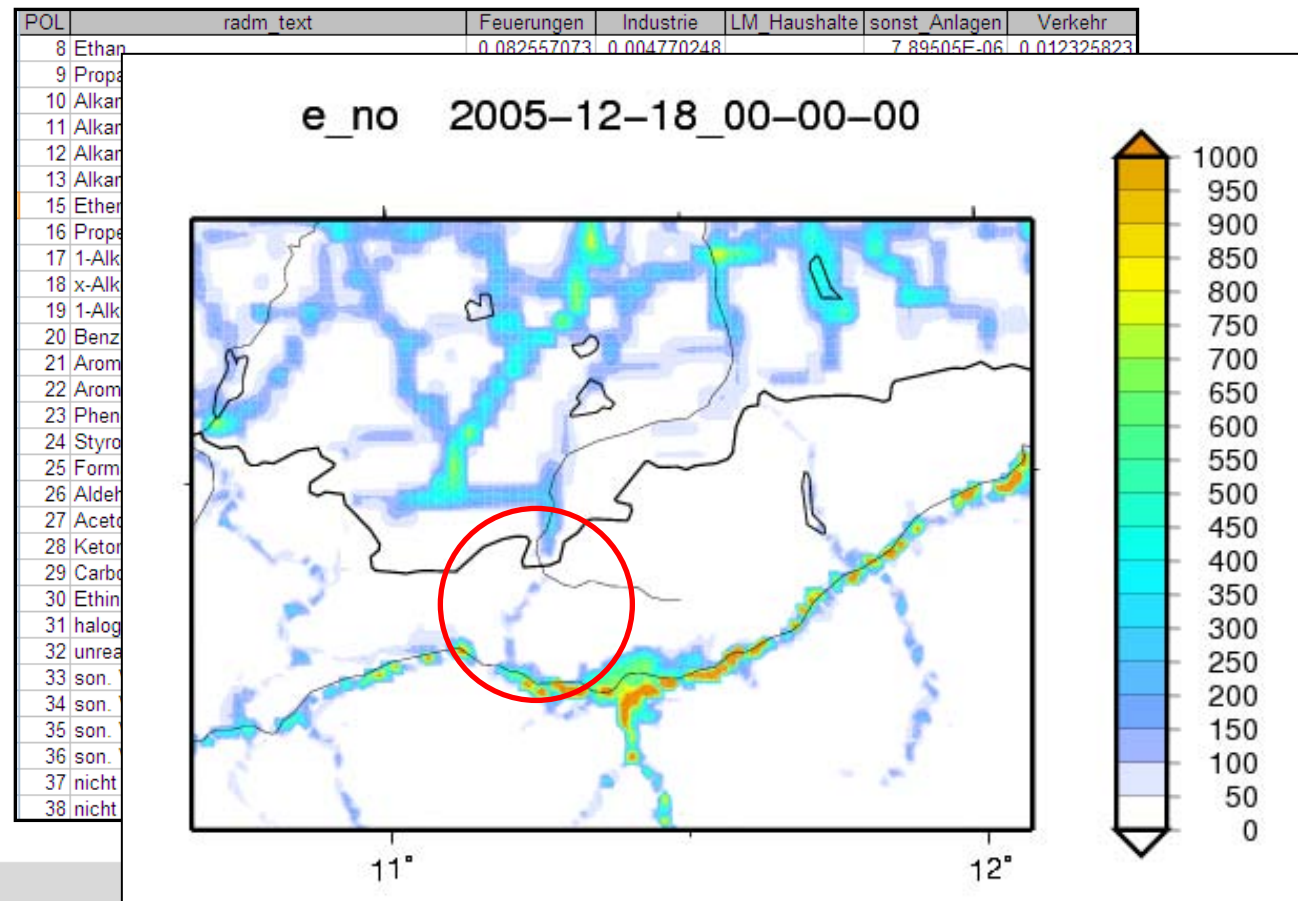
- Sollten flächendeckend für alle Sektoren vorhanden sein
- sollten für alle chemischen Spezies vorhanden sein
- sollten zum verwendeten chemischen Mechanismus passen
- sollten realistischen Jahres-, Wochen- und Tagesgang aufweisen (hat großen Einfluss auf das Modellergebnis)



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

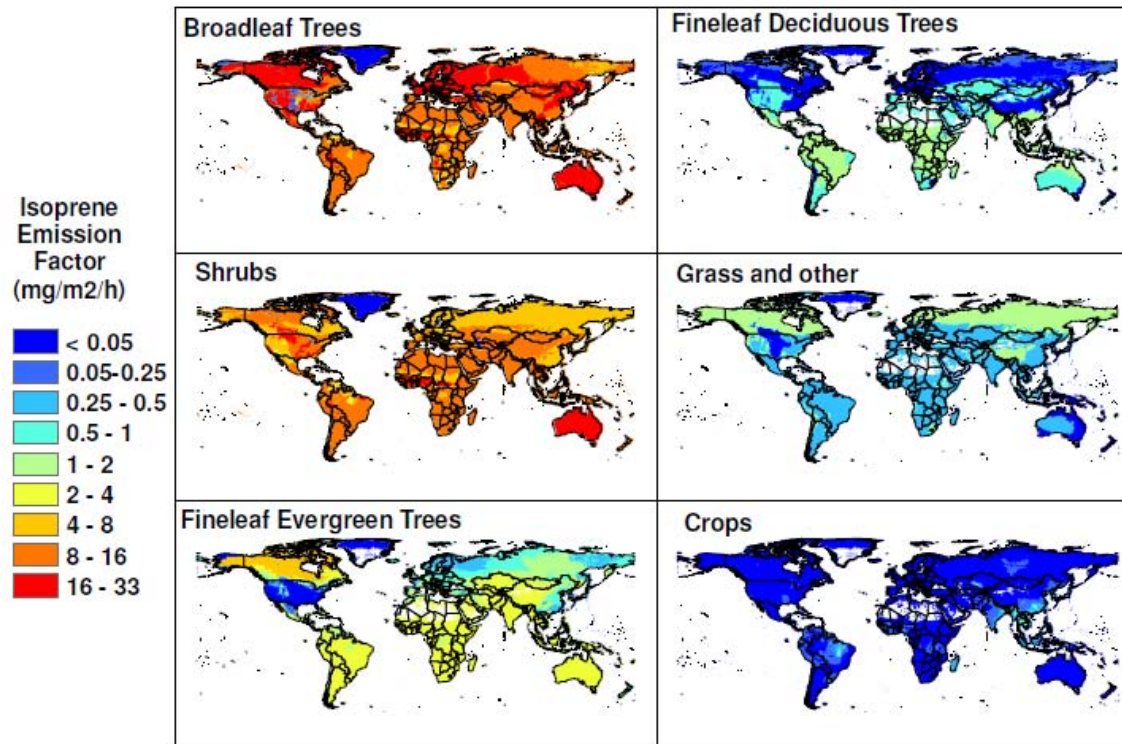


Fig. 3. Global distribution of isoprene emission factors for the MEGAN PFTs.

Isoprenemissionen  
mit MEGAN  
(Beispiel für b))

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

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

# 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: meist Fortran 90, Betriebssystem Linux/Unix

# Beispiele für weitere Eulersche Modelle

## Mikroskalige Modelle / Straßenschluchtmodelle

- **MISKAM** (online gekoppeltes mikrosk. Met.-CTM mit Gebäudestruktur, Windows-Version ca. 7000 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](http://www.mpch-mainz.mpg.de/~lawrence/MATCH/match_overview.html)

- **MOZART** (offline CTM, frei verfügbar, download)

<http://www.acd.ucar.edu/gctm/mozart/>

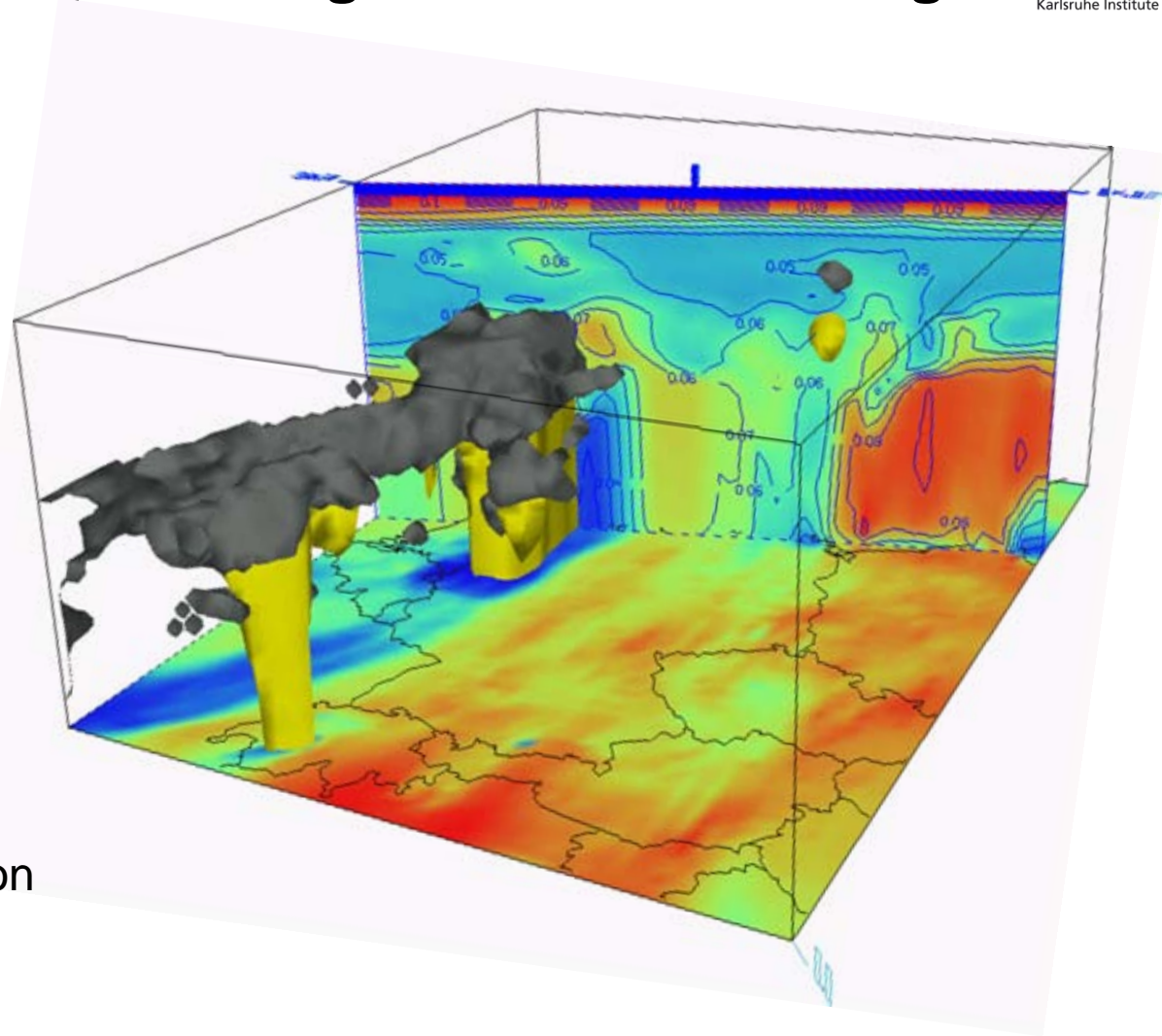
## Eindimensionale Modelle („Single column“-Modelle)

- **Bestandmodell CACHE** (Met. + Chemie, frei verfügbar, Anfrage)

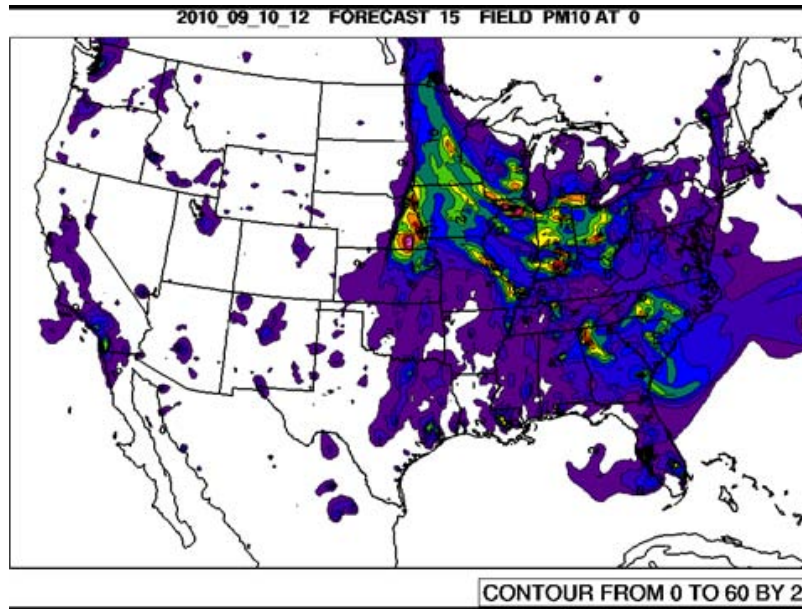
<http://imk-ifu.fzk.de/825.php>

... und viele weitere

# Anwendungsbeispiele: Regionale Modellierung



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



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

## Feedback Luftchemie-Meteorologie (WRF/chem)

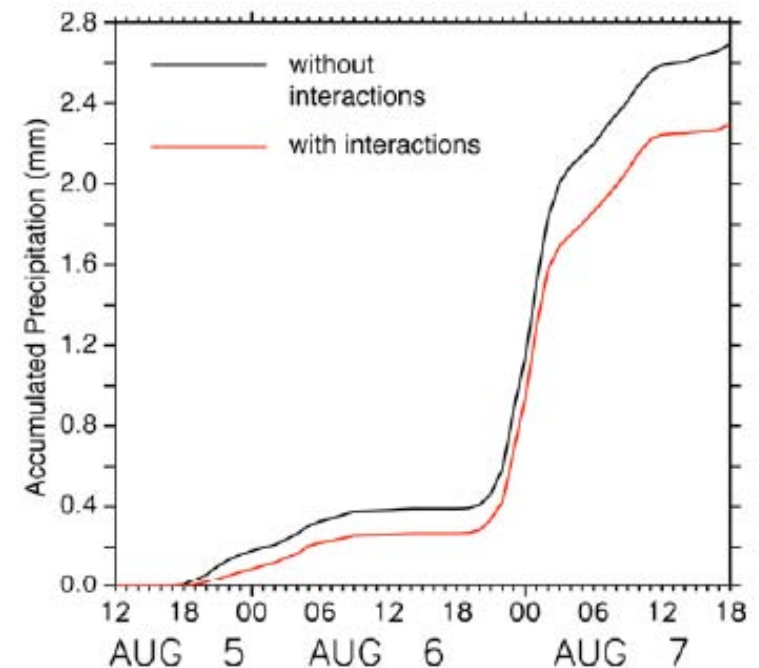
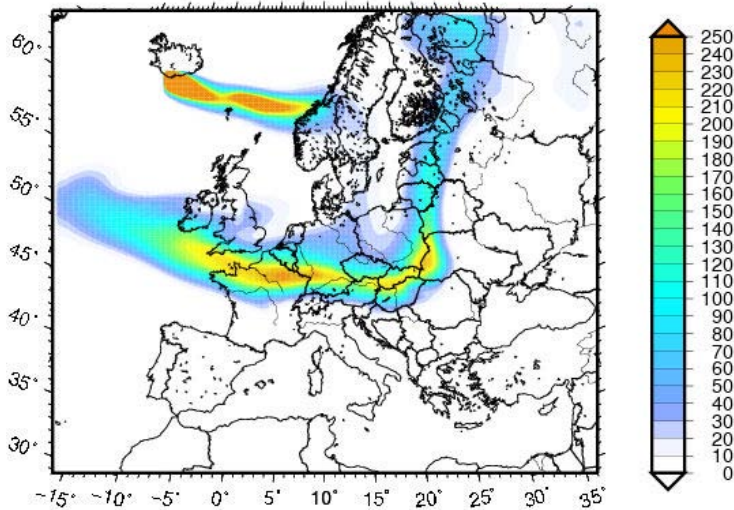


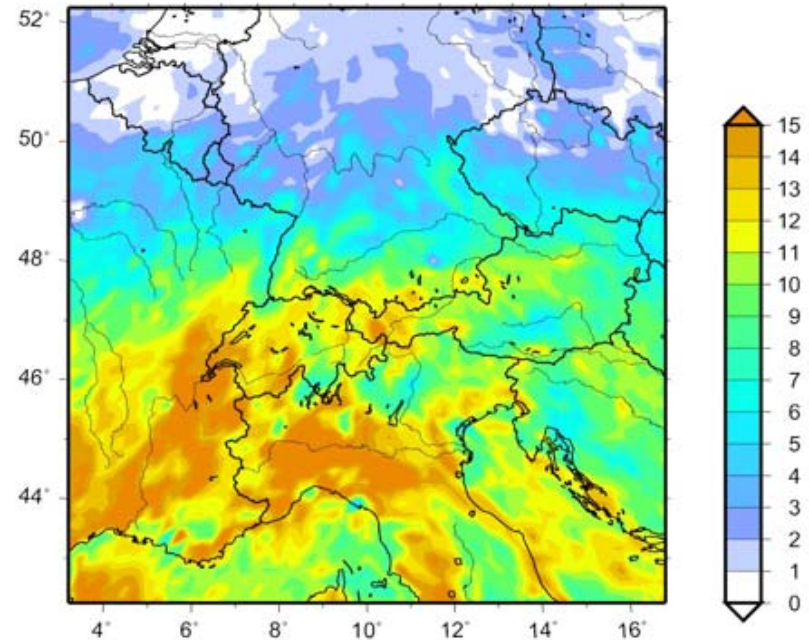
Fig.2. Difference in accumulated precipitation averaged over domain 3 for the simulations with and without cloud-aerosol interactions.

# Anwendungsbeispiele: Regionale Modellierung



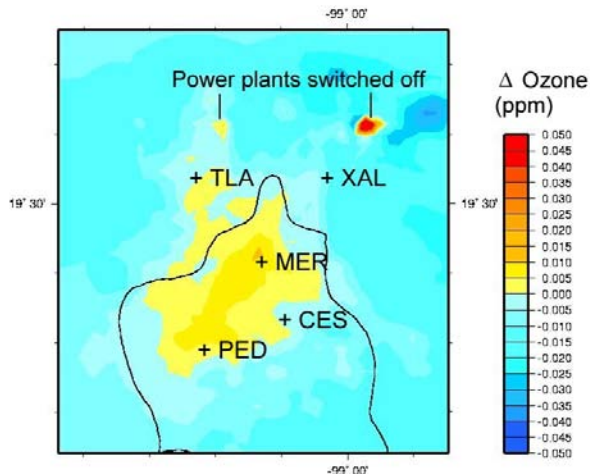
Transport einer Vulkanaschewolke

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



Regionale Klima-Chemie-Simulation über 2x10 Jahre mit MCCM:  
Zunahme der Tage mit Grenzwert-  
überschreitungen für bodennahes Ozon

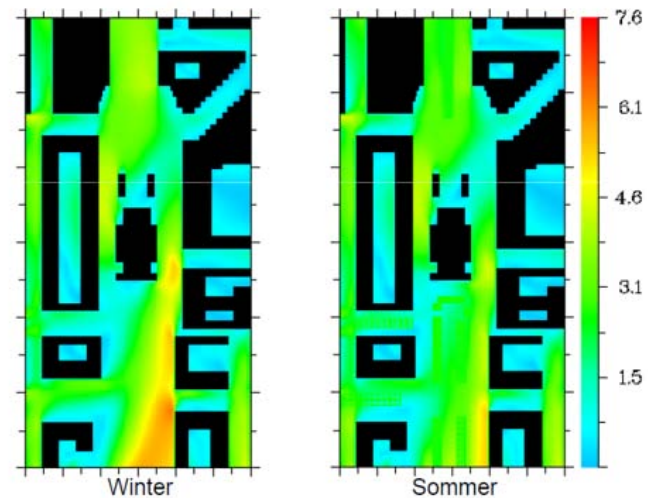
Szenario-  
simulation  
(MCCM)



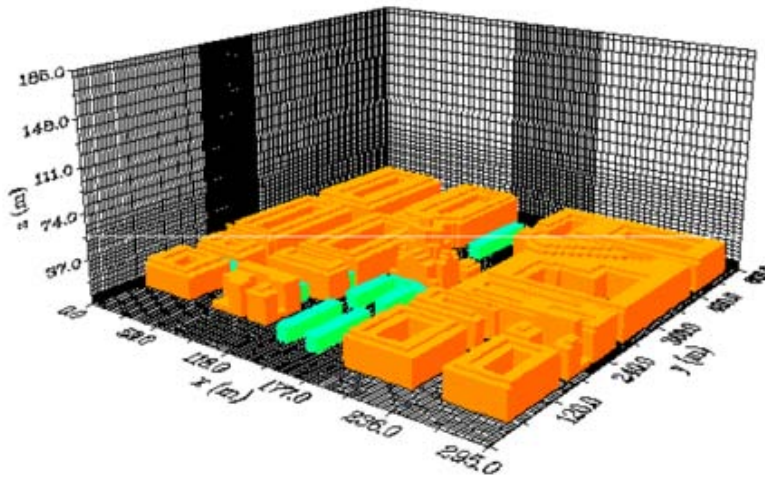
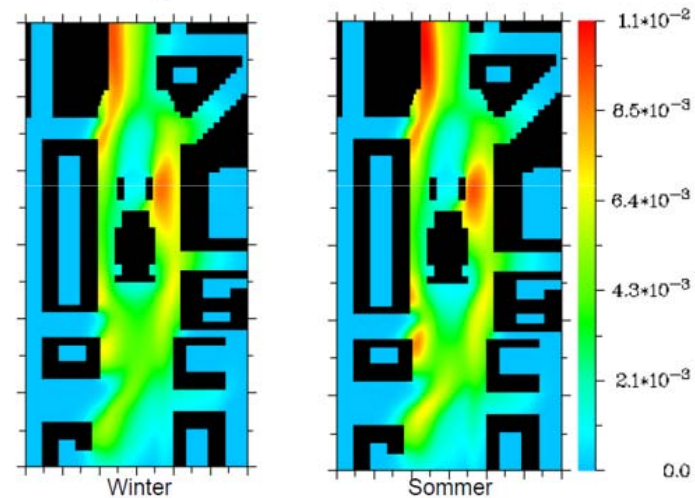
# Anwendungsbeispiel: Mikroskalige Modellierung

Anwendung von MISKAM  
auf einen Straßenzug in Mainz

Windgeschwindigkeit in 14 m Höhe  
Windrichtung aus 245°

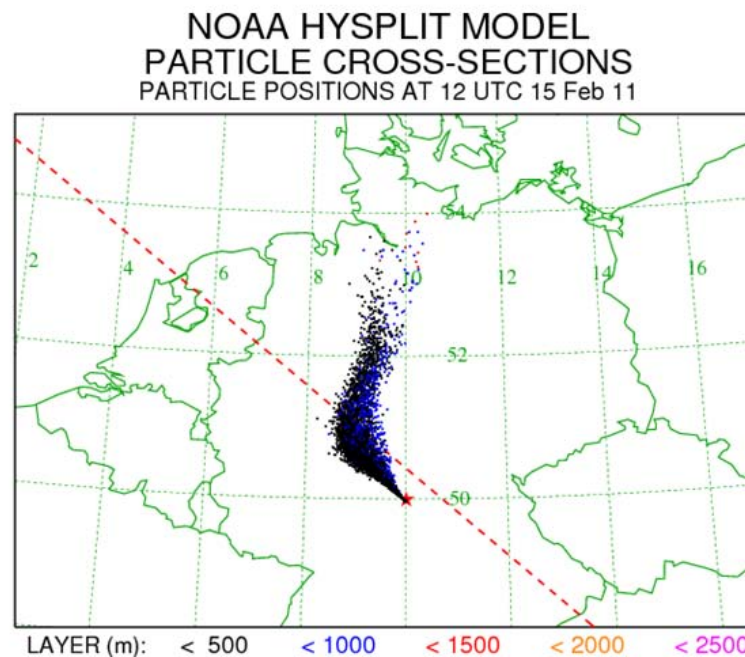


Schadstoffbelastung in 14 m Höhe  
Windrichtung aus 245°



# Transportmodelle/Chemie-Transportmodelle (CTMs)

## Lagrangesche Modelle

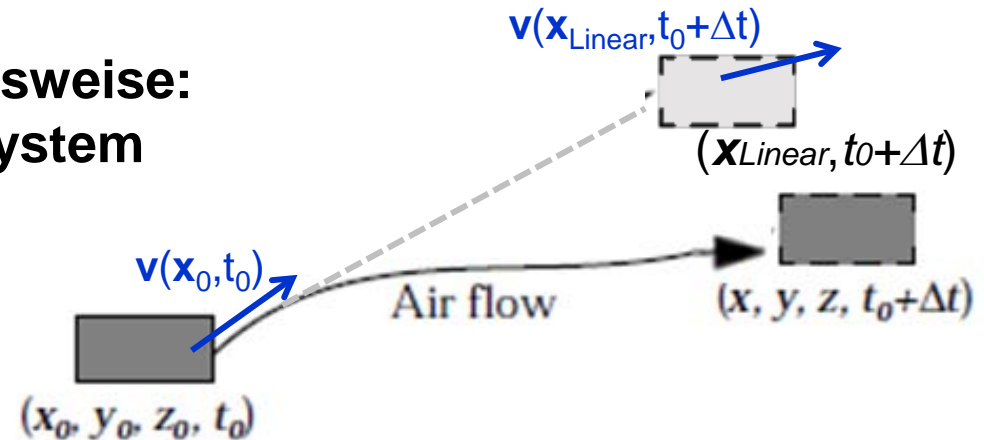




# Advektion im Lagrangeschen Bezugssystem

- 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  $\sigma$  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  $\sigma$  die Verbreiterung der Wolke beschrieben)

$\sigma$  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  $\sigma$

# 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 versch. 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)
- Berechnungen nur dort, wo sich Partikel befinden ⇒ besonders vorteilhaft bei einzelnen Punktquellen

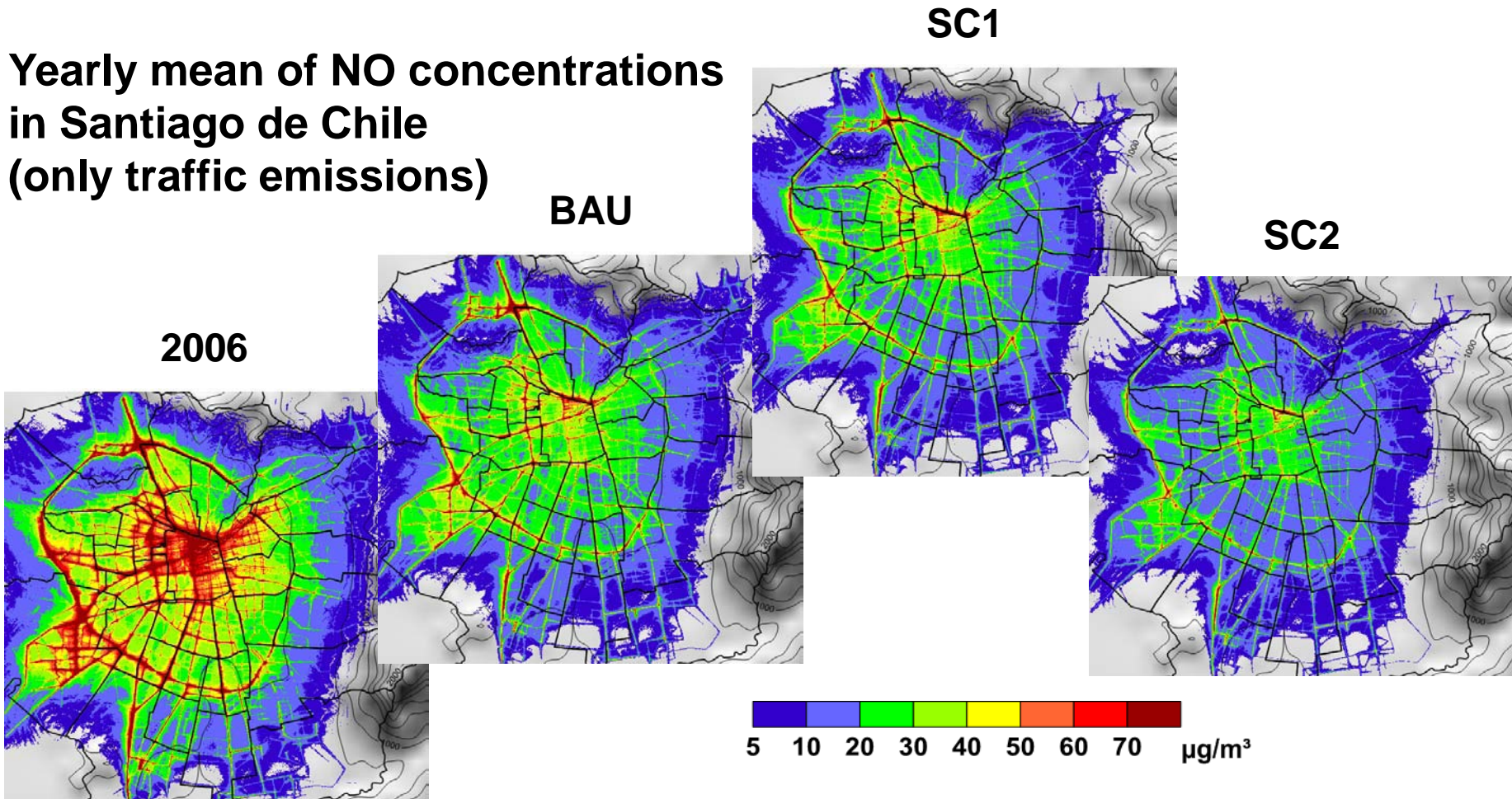
# Einige Lagrangemodelle (meist ohne Chemie!)

- **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](http://pandora.meng.auth.gr/mds/showlong.php?id=133&MTG_Session=606aa8d7e2db8c5da8fb318ebd7a804a)
- **ATLAS** <http://www.geosci-model-dev.net/3/585/2010/gmd-3-585-2010.pdf>
- **CiTTYCAT** <http://www.geosci-model-dev.net/5/193/2012/gmd-5-193-2012.html>
- **Und viele weitere mehr ...**

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

# Anwendungsbeispiele: GRAL

Yearly mean of NO concentrations  
in Santiago de Chile  
(only traffic emissions)

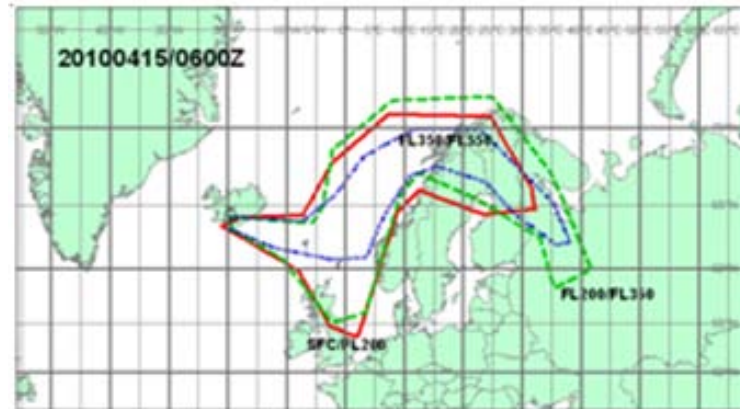


Distribution of yearly mean of NOx concentrations (only traffic emissions), present situation (2006) and future scenarios, based on the micro scale air quality model GRAL

→ meteorological conditions are based on the reference year 2006

# Anwendungsbeispiele: NAME

Volcanic ash product,  
VAAC London



# Anwendungsbeispiel: HYSPLIT

## Modell-Download oder **HYSPLIT-WEB**

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

<http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php>

## Vorwärts- und Rückwärtstrajektorien

(z.B: woher kommt eine Luftmasse?)

## HYSPLIT-WEB (Internet-based)

➤ Run HYSPLIT Trajectory Model:

[http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT\\_traj.php](http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT_traj.php)

Parameter auswählen:

Trajektorienzahl,

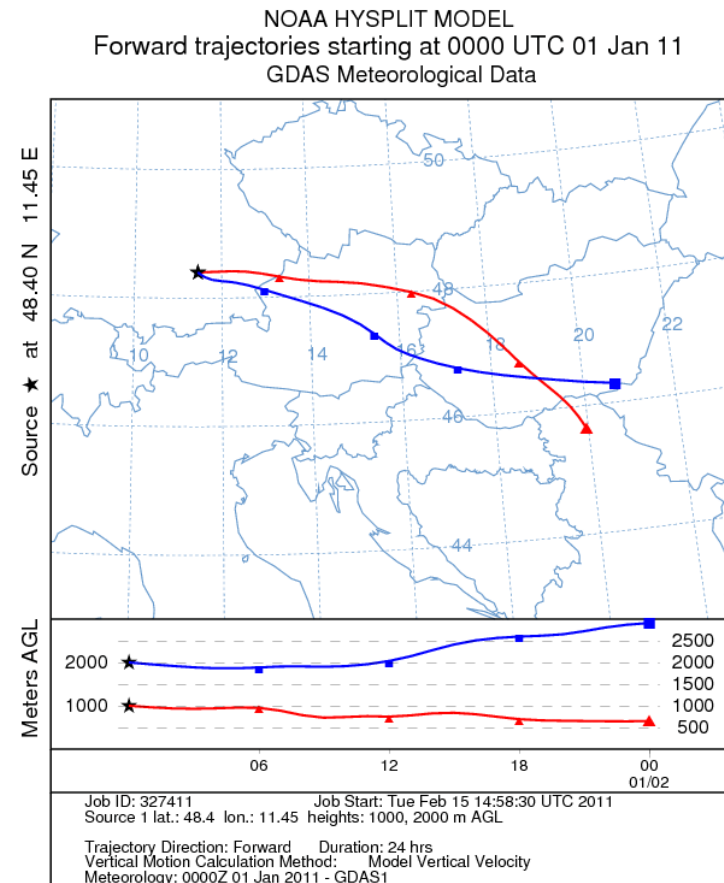
Koordinaten des Start/Zielpunktes,

Met. Datensatz (muss zur gewählten Episode passen)

vor-/rückwärts, Höhe, Start bzw. Zielpunkt,

Darstellung

**Rückwärtstrajektorie: Hausaufgabe**



# Anwendungsbeispiel: HYSPLIT

Run HYSPLIT Dispersion Model  
Ausbreitung von Partikelwolken

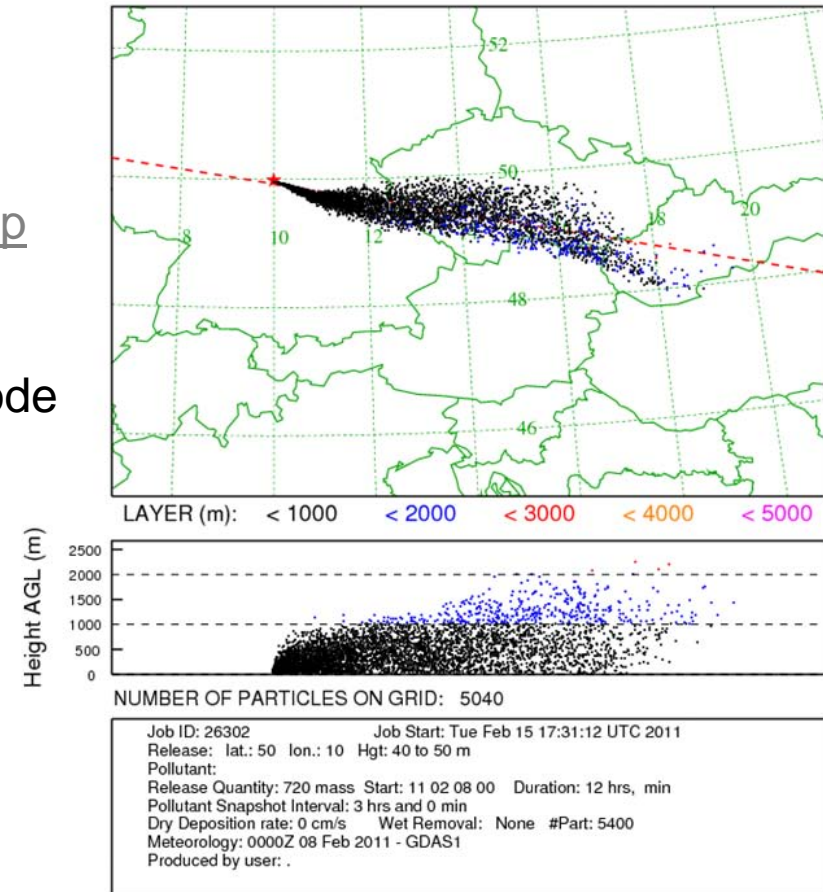
## HYSPLIT-WEB (Internet-based)

➤ Run HYSPLIT Dispersion Model:  
[http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT\\_disp.php](http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT_disp.php)

Parameter auswählen:  
Koordinaten des Start/Zielpunktes,  
Met. Datensatz (muss zur gewählten Episode passen)  
Emissionsdauer und –höhenbereich,  
Länge der Simulation, etc.,  
Darstellung

**Emittierte Wolke: Hausaufgabe**

NOAA HYSPLIT MODEL  
PARTICLE CROSS-SECTIONS  
PARTICLE POSITIONS AT 12 UTC 08 Feb 11





# 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 (derzeit sehr aktuelle wissenschaftliche Fragestellung)

## ■ Lagrange

- Geringerer 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 spezielle Detailstudien (z.B. Chemiemechanismen) oder für erste Abschätzungen sinnvoll sein

**Hängt immer von der Problemstellung ab**



**Danke für Ihre Aufmerksamkeit**