

Seminar

Physik und Chemie der Atmosphäre

Freitag, den 10. 1. 2003

Ein verbessertes troposphärisches NO₂ Produkt von GOME

Hendrik Nüß

Institut für Umweltphysik und
Institut für Fernerkundung
Universität Bremen

Übersicht

Einleitung:

- Bedeutung von NO₂ als Spurengas
- GOME Experiment
- DOAS Methode
- Beobachtungsgeometrie
- Retrieval

Hauptteil:

- Verbesserung des Retrievals
- Block Luftmassen Faktoren
- Ergebnisse
- Ausblick

Troposphärisches NO₂

Quellen

- Emission des Erdreichs
- Blitze
- Verbrennungsprozesse
 - Heizung
 - Verkehr
 - Industrie
 - Biomassenverbrennung

Wirkung

- verursacht sauren Regens (mit SO₂)
- mobilisiert Schwermetalle und Al (als NO₃⁻)
- bildet troposphärisches Ozon (photochemischer Smog)

NO₂ – Messung mit GOME

- Global Ozone Monitoring Experiment an Bord des Satelliten ERS-2
- UV/vis Spektrometer (230 - 800 nm, Auflösung 0.2 - 0.4 nm)
- Bodenpixel Größe 40 x 320 km² (40 x 960 km²)
- Globale Bedeckung (äquatorial) alle drei Tage
- Neben Ozon sind auch O₂, H₂O, NO₂ , SO₂ , HCHO, BrO und OCIO messbar

DOAS Methode

Differentielle Optische Absorptions – Spektroskopie

- Nur **schmalbandige** Strukturen des Spektrums werden für die Bestimmung des Absorbers verwendet
- **Breitbandige** Anteile des Spektrums, die durch Rayleigh- und Mie-Streuung entstehen, werden als Polynom abgezogen

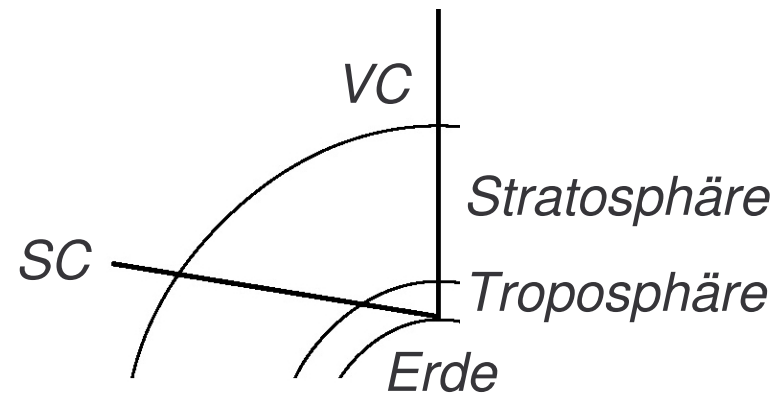
DOAS Gleichung

$$\ln \frac{I_0(\lambda)}{I(\lambda)} = \sum_i \sigma_i(\lambda) \cdot S_i + \sum_p a_p \lambda^p$$

- Die Extinktion von Licht in Materie folgt dem Lambert-Beer-Gesetz
- Die gemessene Intensität $I(\lambda)$ wird mit der eingestrahlten Intensität $I_0(\lambda)$ verglichen
- Das Polynom beschreibt den breitbandigen Anteil des Spektrums
- Die schrägen Säulen (S_i) verschiedener Absorber (mit bekannten Absorptionsquerschnitt σ_i) können parallel bestimmt werden



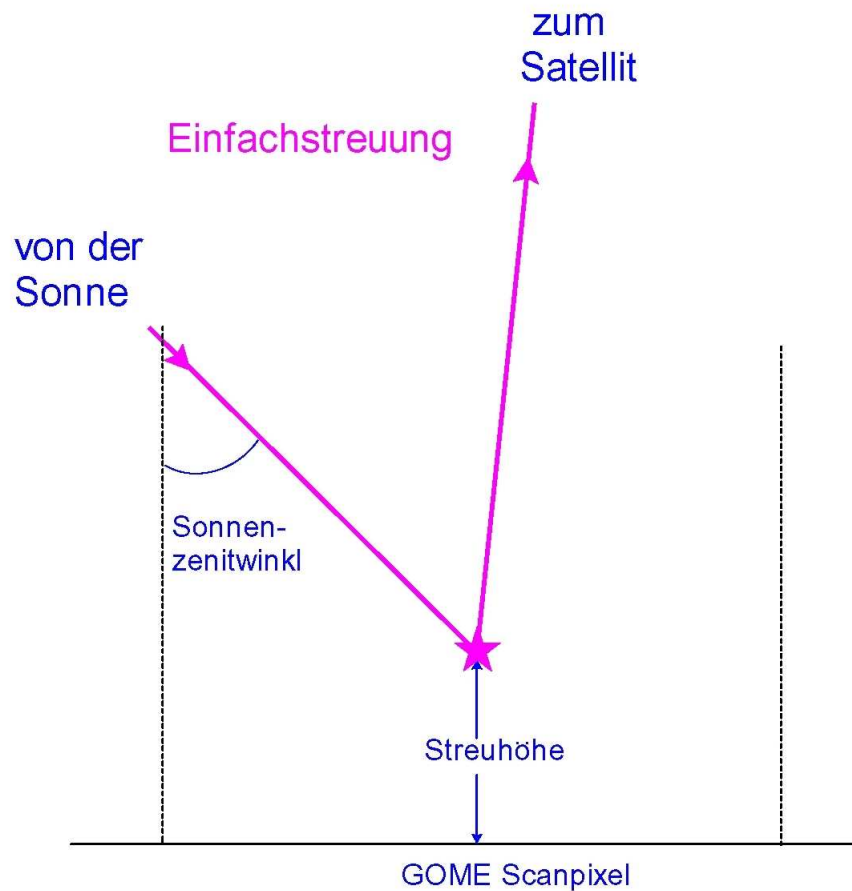
Strahlungstransfer und vertikale Säulen



- Der Weg des Lichts durch die Atmosphäre wird mit einem **Strahlungstransfer-Modell** simuliert
- Ergebnis ist der **Luftmassen Faktor**, der die Absorption bei verschiedenen Sonnenzenitwinkeln gewichtet
- Die **vertikale Säule (VC)** ist die vertikale Dichte des Absorbers

$$VC = \frac{SC}{LMF} = \int \rho(z) dz$$

Beobachtungsgeometrie

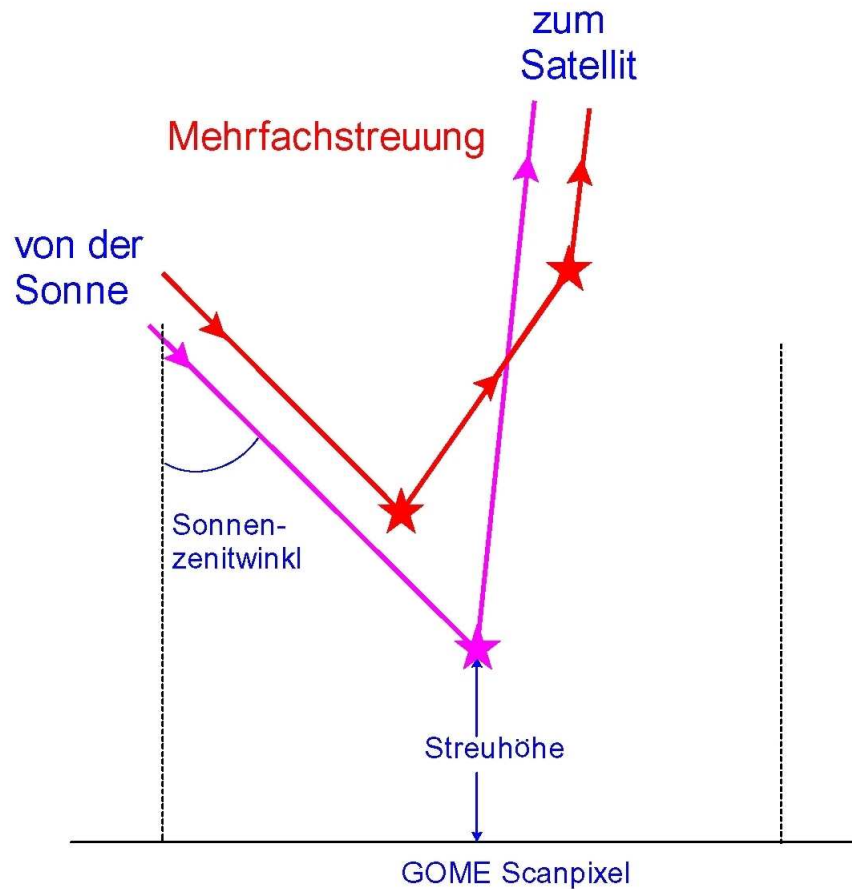


Geometrie

Einflussgrößen auf das Retrieval

- Sonnenzenitwinkel

Beobachtungsgeometrie

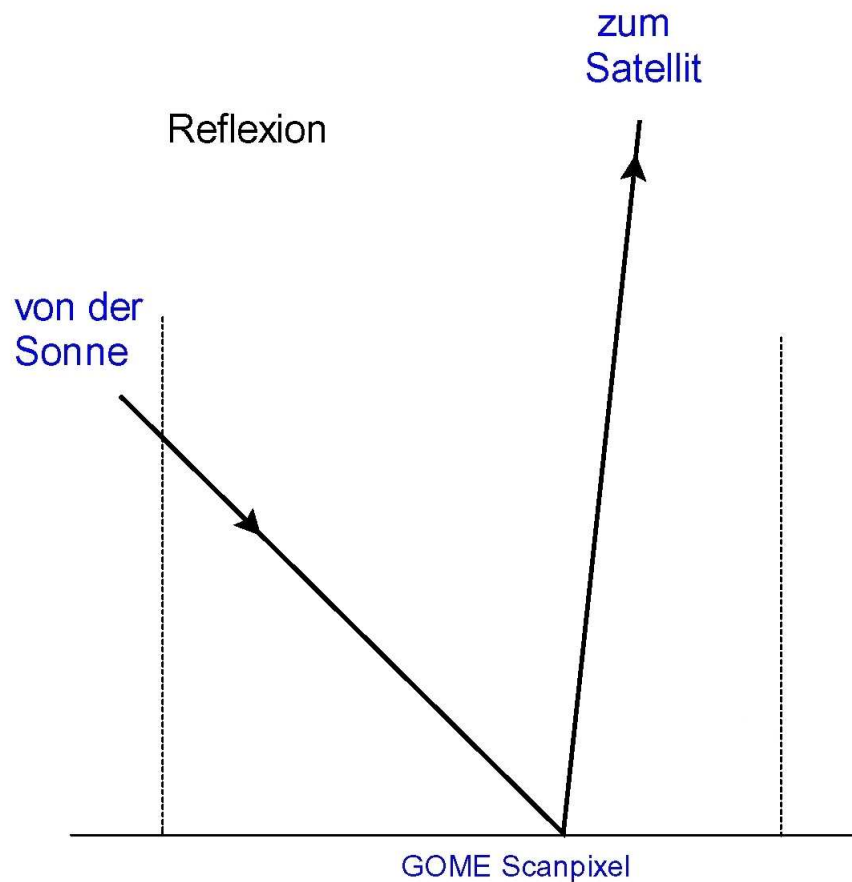


Streuung

Einflussgrößen auf das Retrieval

- Sonnenzenitwinkel
- Streuhöhe

Beobachtungsgeometrie

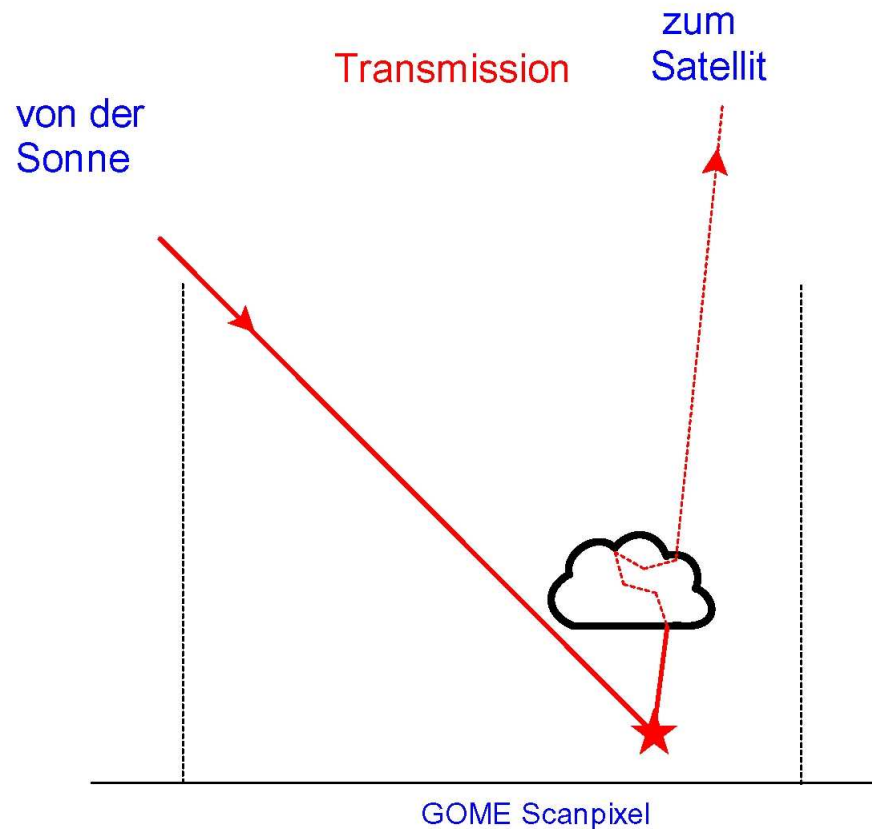


Reflexion

Einflussgrößen auf das Retrieval

- Sonnenzenitwinkel
- Streuhöhe
- Albedo

Beobachtungsgeometrie

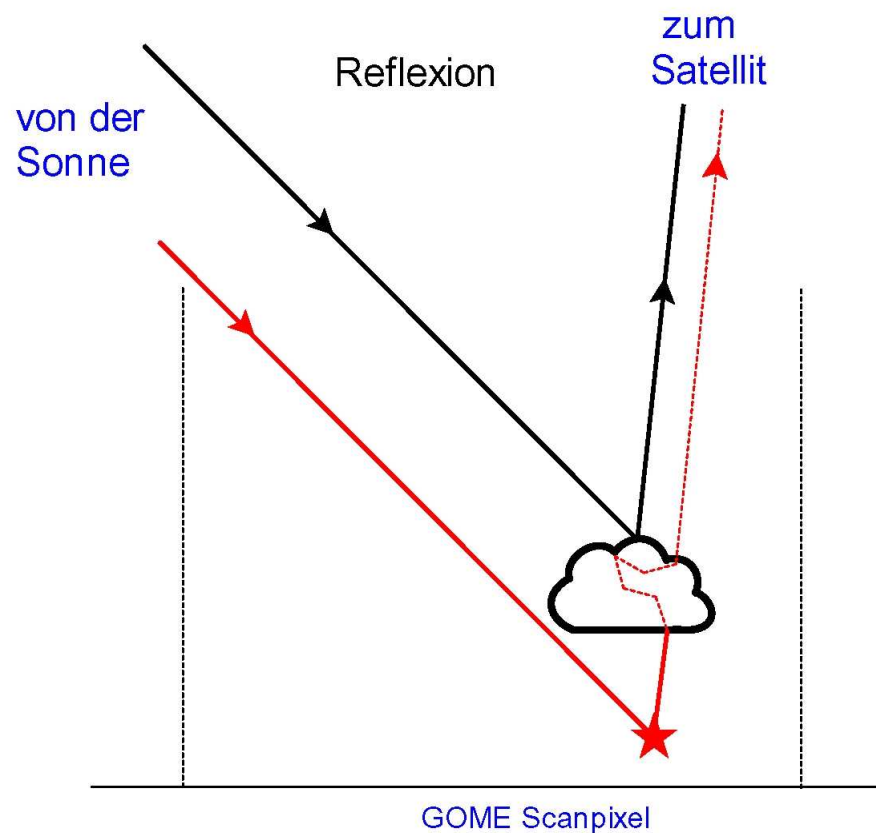


Transmission durch Wolken

Einflussgrößen auf das Retrieval

- Sonnenzenitwinkel
- Streuhöhe
- Albedo
- **Wolkendichte**

Beobachtungsgeometrie

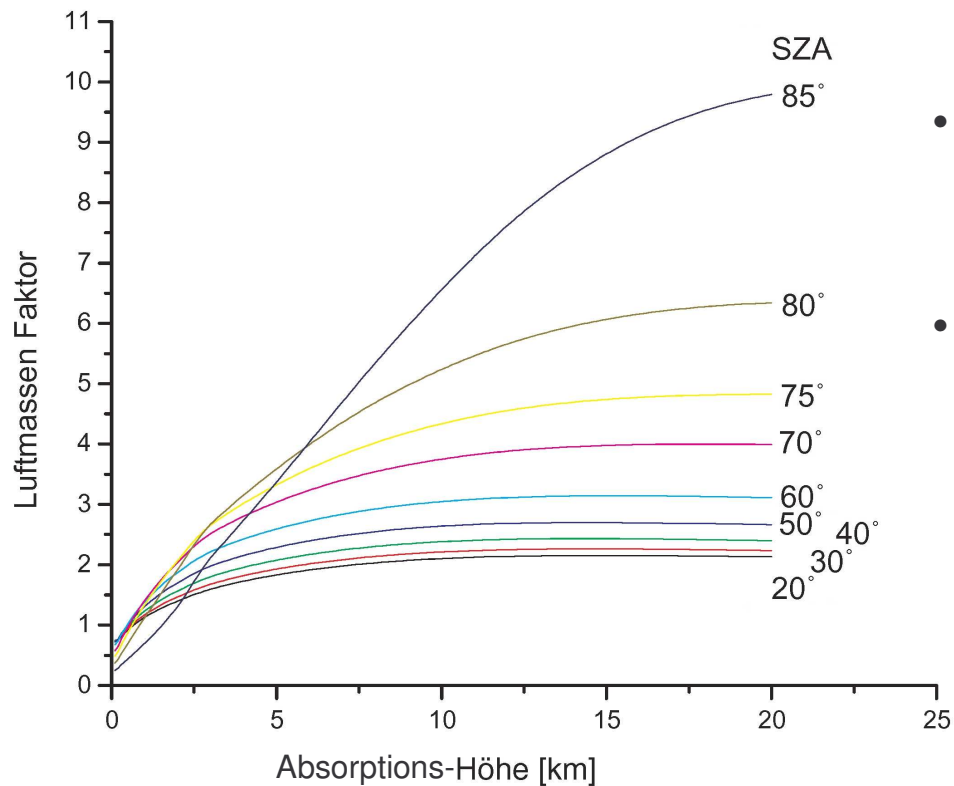


Reflexion an Wolken

Einflussgrößen auf das Retrieval

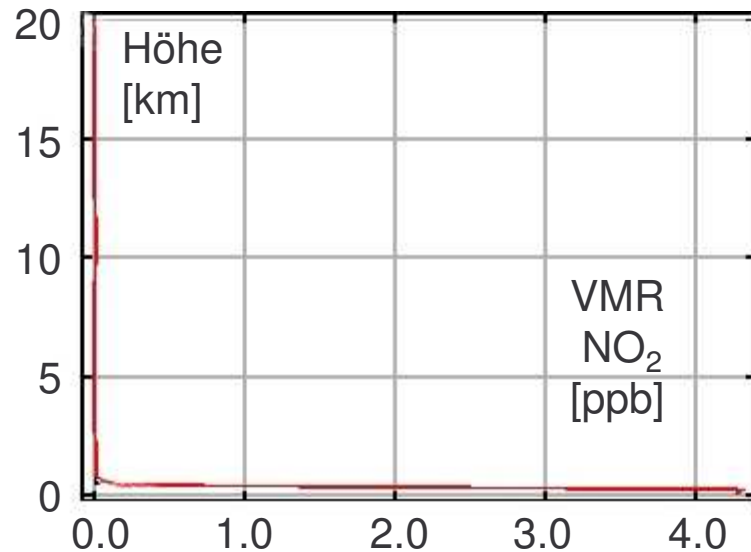
- Sonnenzenitwinkel
- Streuhöhe
- Albedo
- Wolkendichte
- **Wolkenbedeckung und -höhe**

Höhenabhängigkeit der Empfindlichkeit

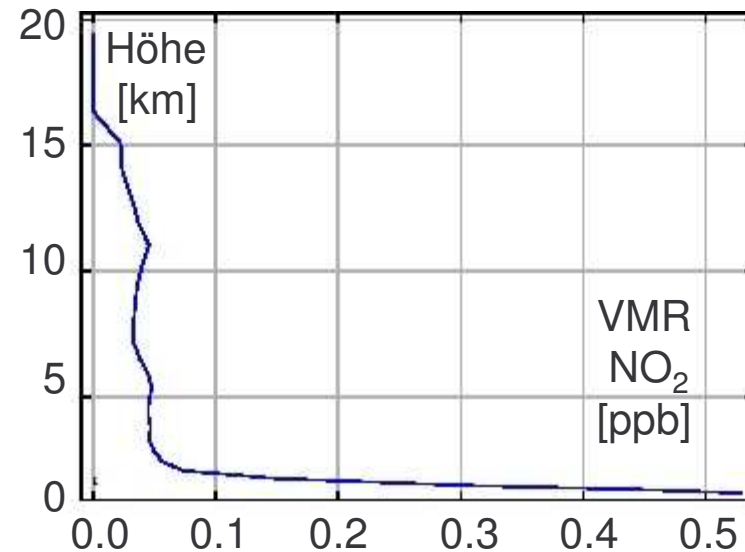


- Je größer der Sonnenzenitwinkel desto stärker die Höhenabhängigkeit
- In kleinen Höhen geht der Luftmassen Faktor gegen Null – die Empfindlichkeit der Messung auch

Vertikale Verteilung des NO₂



NO₂-Profil über anthropogenen Quellen



NO₂-Profil über natürliche Quellen

Die NO₂ Profile sind von den Quellen und ihren Orten abhängig

- **anthropogene Quellen:** Das gesamte NO₂ ist in den untersten Schichten, dort ist die Messempfindlichkeit klein – **kleiner LMF** ist erforderlich
- **natürliche Quellen:** Die Höhenverteilung gleichmäßiger – **großer LMF** erforderlich.

Atmosphärische Modelle

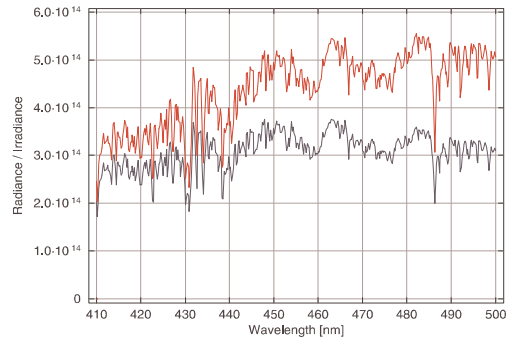
- OSLO CTM-2
 - globales troposphärisches 3D Chemie- und Transportmodell
 - Auflösung: $2.8^\circ \times 2.8^\circ$ mit 40 Schichten
 - entwickelt von Universität i Oslo, Norge

- MOZART (Model of OZone And Related Tracers)
 - globales troposphärisches 3D Chemie- und Transportmodell
 - Auflösung: $2.8^\circ \times 2.8^\circ$ mit 31 Schichten
 - entwickelt von
 - National Center of Atmospheric Research in Boulder, Colorado
 - General Fluid Dynamics Laboratory, Princeton, New Jersey
 - Max-Planck-Institute für Meteorologie, Hamburg, Deutschland

Atmosphärische Modelle

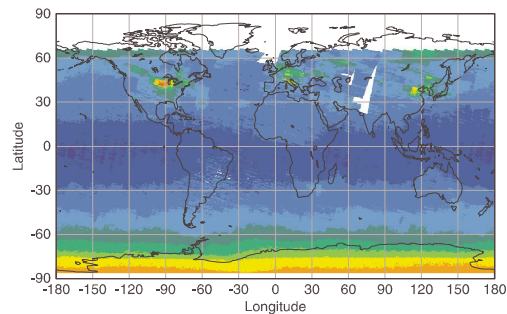
- TOMCAT
 - globales troposphärisches 3D Chemie- und Transportmodell
 - Auflösung: $2.8^\circ \times 2.8^\circ$ mit 31 Schichten
 - entwickelt von
 - University of Leeds, UK
 - Cambridge University, UK
 - Meteo-France, Toulouse, France.
- SLIMCAT
 - globales stratosphärisches 3D Chemie- und Transportmodell
 - Auflösung: $5^\circ \times 7.5^\circ$ mit 18 Schichten
 - entwickelt von
 - University of Leeds, UK
 - Cambridge University, UK
 - Meteo-France, Toulouse, France.

Retrieval



Spektrum

DOAS Fit

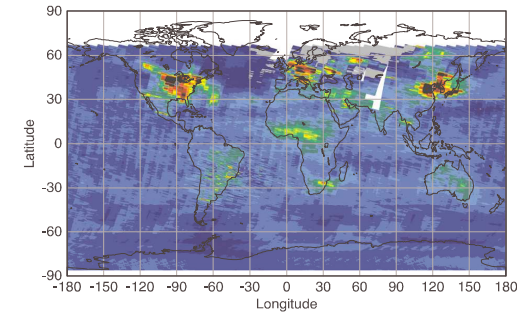


schräge Säule

- 1 vertikales Profil
- 1 SZA
- 1 Albedo
- 1 Aerosole
- 1 Wolken

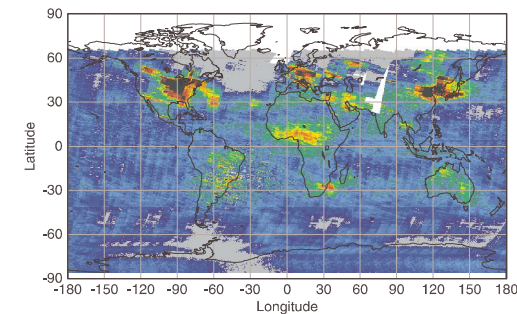


Abschätzung des stratosphärischen NO₂ - Anteils



troposphärische vertikale Säule

Luftmassen Faktor



troposphärische schräge Säule

Standard Luftmassen Faktor

Probleme

- vertikales Profil nicht aus der Messung zugänglich
- 2.5 d Strahlungstransfer-Rechnung für einen Tag mit Modellauflösung auf einem Standard-PC

Daher bisher

- Verwendung eines Standard Luftmassen Faktors

Verbesserung des Retrievals durch

- Profil-Informationen aus Atmosphärischen Modellen
- Ersatz der Strahlungstransfer-Rechnung durch tabellierte Werte, die Block Luftmassen Faktoren

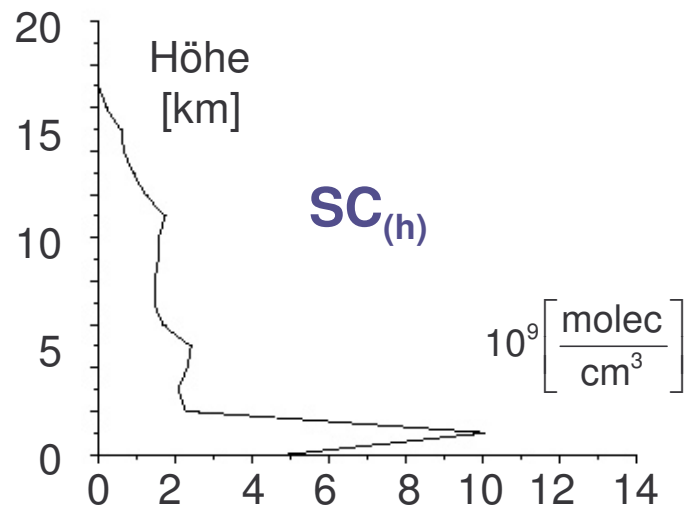
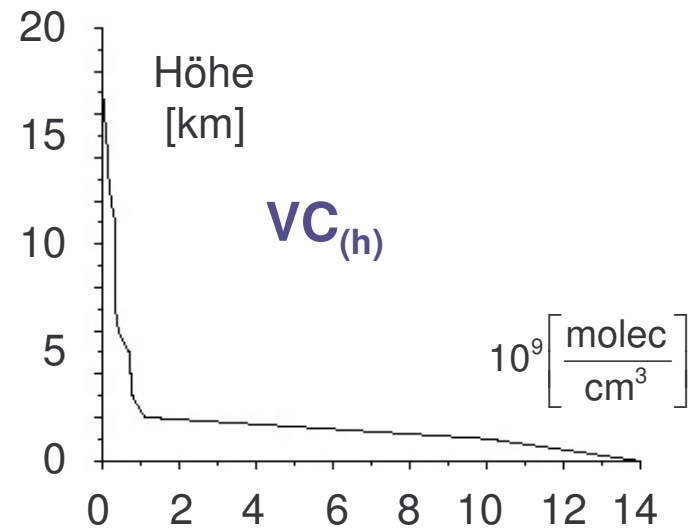
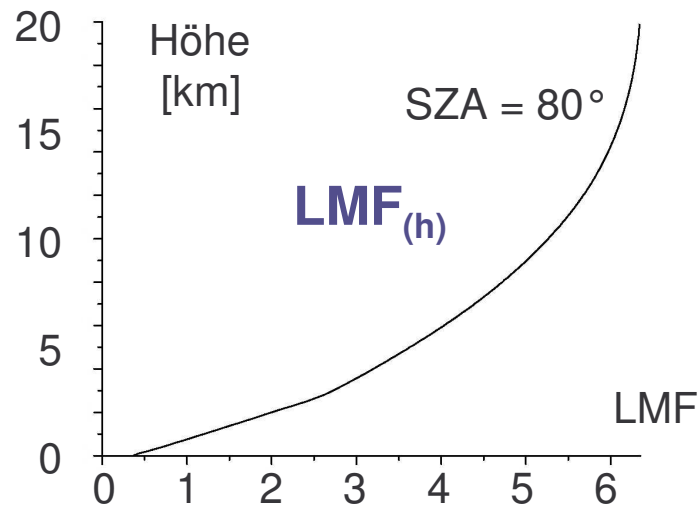
Block Luftmassen Faktor

- Annahme: Die Atmosphäre ist optisch dünn bezüglich des Absorbers
- Die Atmosphäre wird in Schichten zerlegt
- Für jede Schicht wird ein individueller LMF_i berechnet
- Für die schräge Säule gilt:

$$SC = \sum_i LMF_i \cdot VC_i$$

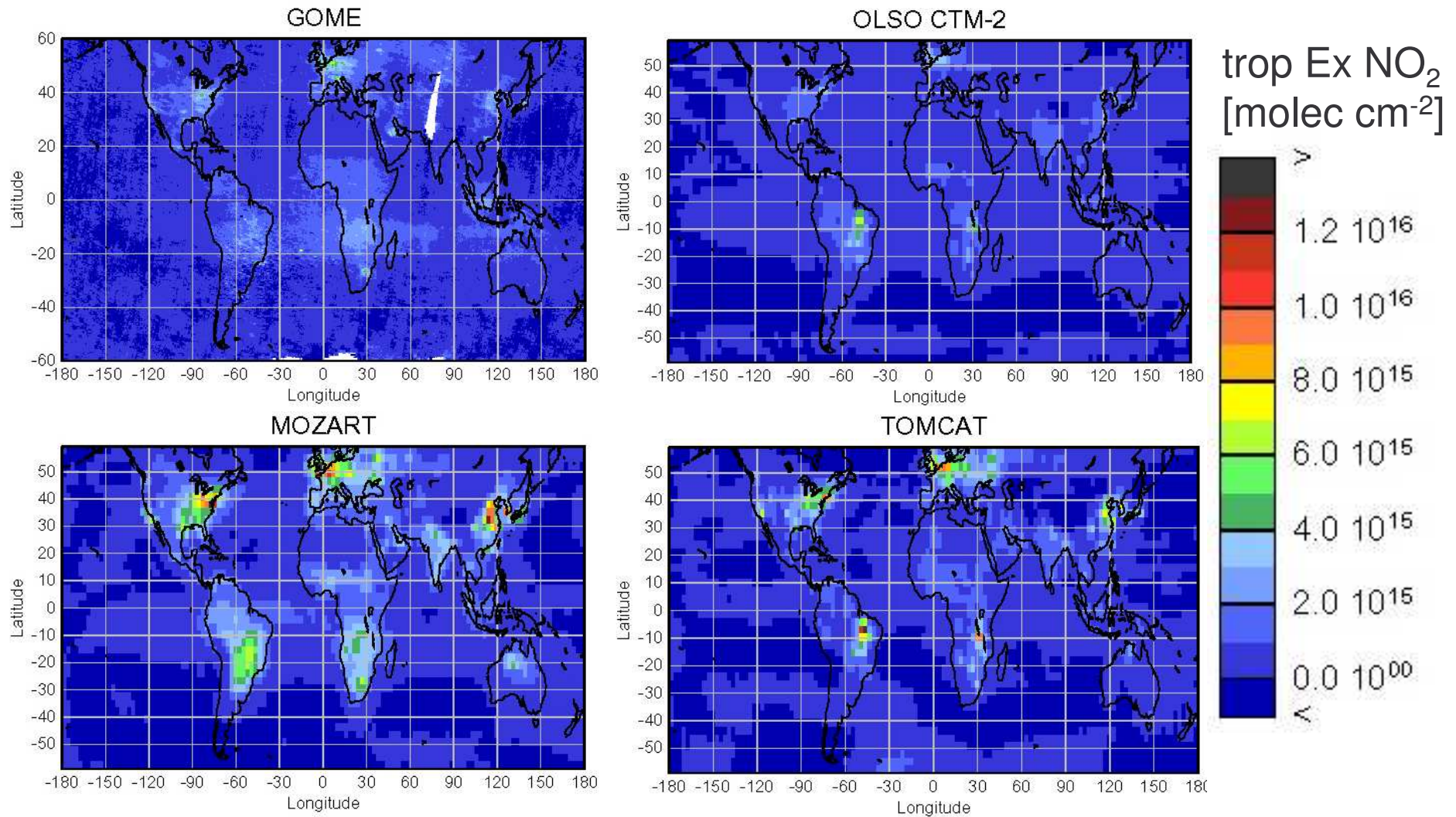
- Die LMF_i müssen berechnet für unterschiedliche
 - Bodenhöhen (Karte)
 - Sonnenzenitwinkel (Beobachtungsgeometrie)
 - Aerosole (Modell-Emissionsgebiete)
 - Albeden (GOME-Daten)
 - Wolkenbedeckungen (GOME-Daten, FRESCO)

Block Luftmassen Faktor



$$LMF = \frac{SC}{VC} = \frac{\sum_i VC_i \cdot LMF_i}{\sum_i VC_i}$$

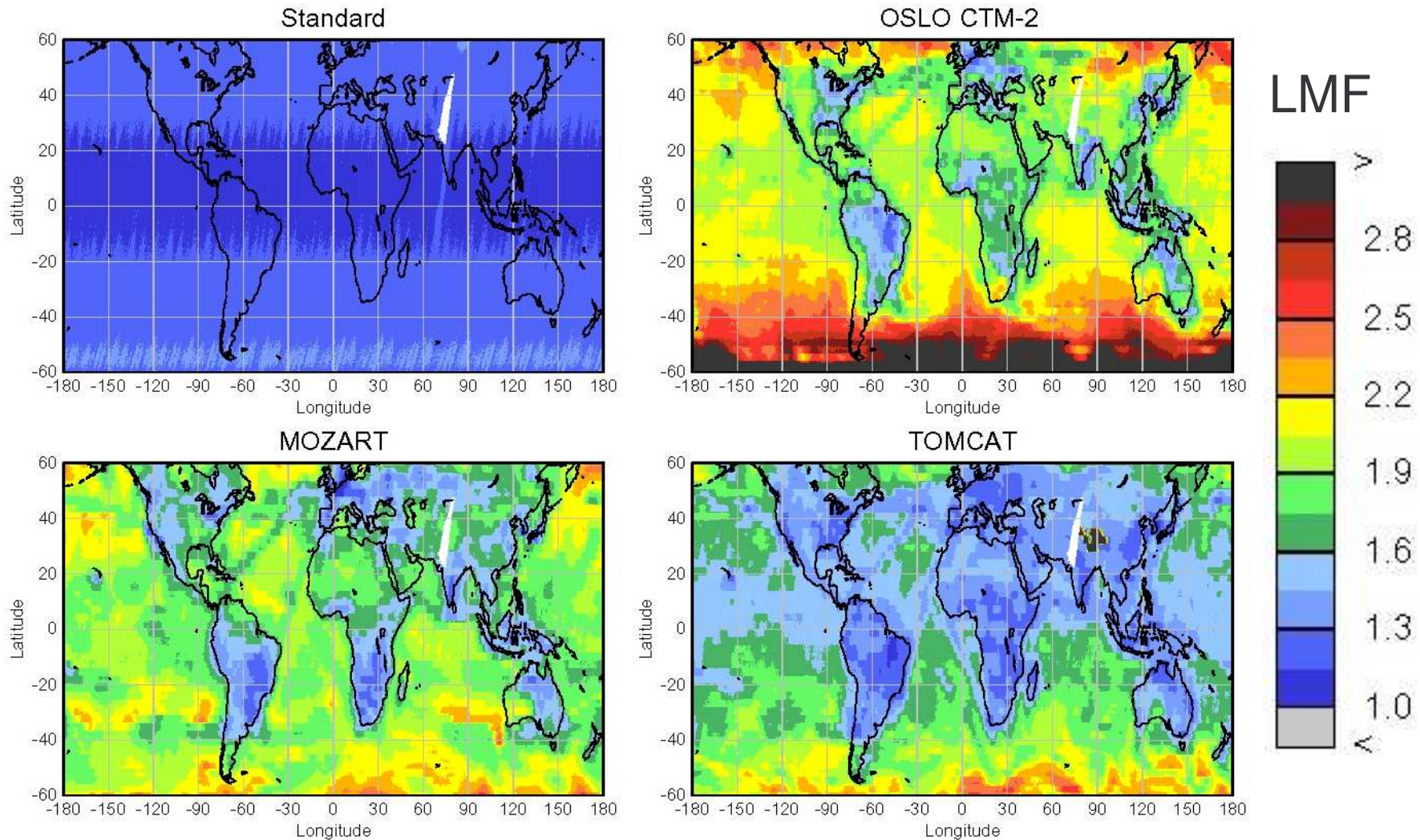
Troposphärischer NO₂ – Exzess September 1997



Vergleich Modelle vs. Messung

- MUSTER
 - Modelle gehen von ähnlichen anthropogenen Quellen aus
 - OSLO CTM-2 und TOMCAT stimmen auch bei natürlichen Quellen gut überein
 - gleiche Emissionskataster
 - Alle Modelle unterscheiden sich vom Standard-Retrieval
- WERTE
 - Modelle durchgängig höher als GOME
 - OSLO CTM-2 zeigt die beste Übereinstimmung mit GOME
 - MOZART und TOMCAT doppelt so groß wie GOME
 - halb so hohe Depositions-Geschwindigkeit wie in OSLO CTM-2

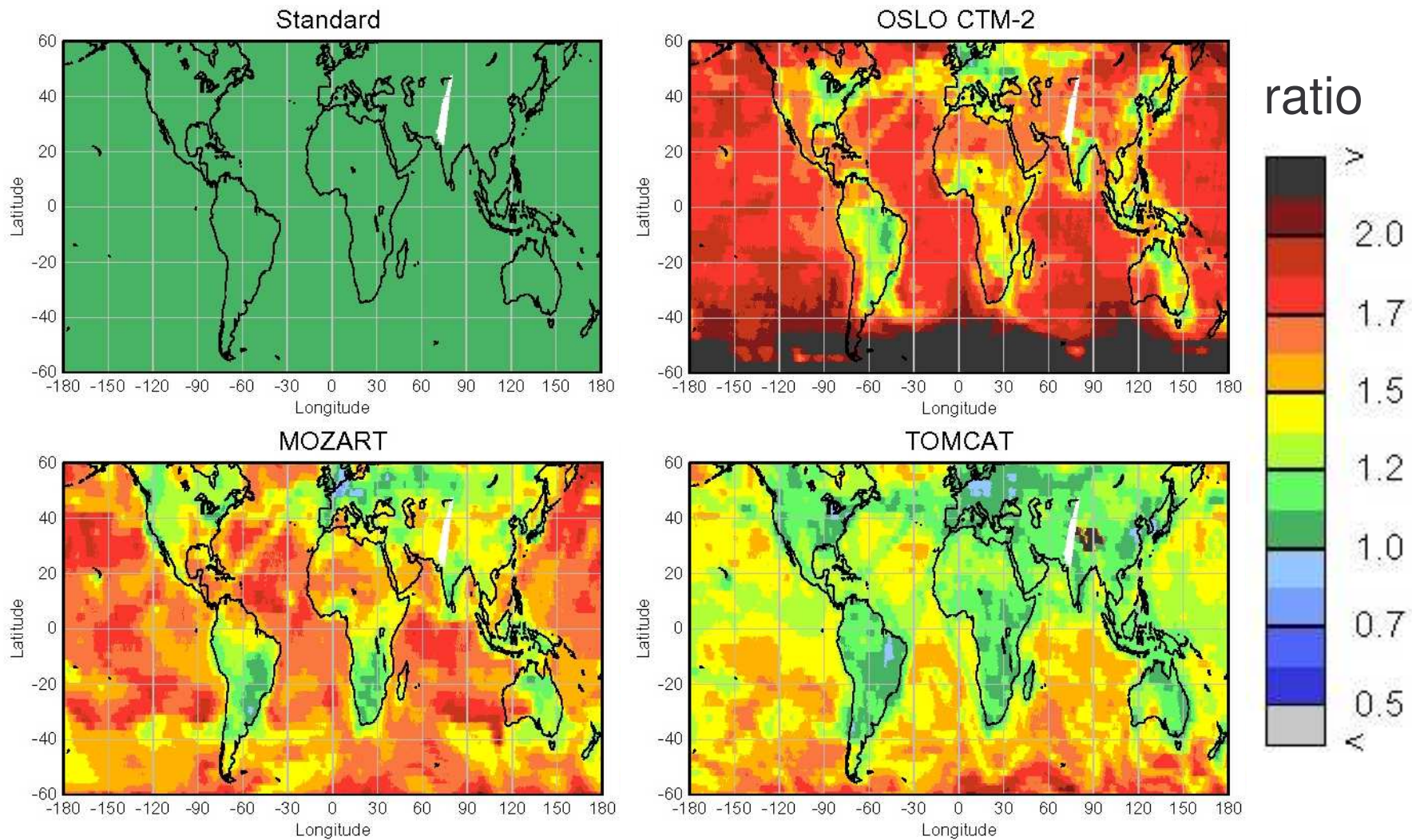
Mittlere Luftmassen Faktoren September 1997



Vergleich der Luftmassen Faktoren

- Block Luftmassen Faktoren über Wasser größer als über Land
- Block LMF im allgemeinen größer als Standard LMF
- Über dem Atlantik sind die Schiffs- und Flugzeugrouten klar auszumachen.
- Oslo CTM-2: Hohe Werte in hohen Breiten haben wenig Einfluss auf das Retrieval, da Flächen klein und zumeist unter das Wolkenkriterium fallen
- Je nach Block LMF sind völlig unterschiedliche Werte zu erwarten, da
 - das Retrieval linear vom LMF abhängt und die
 - Block LMF um bis zu 200% variieren

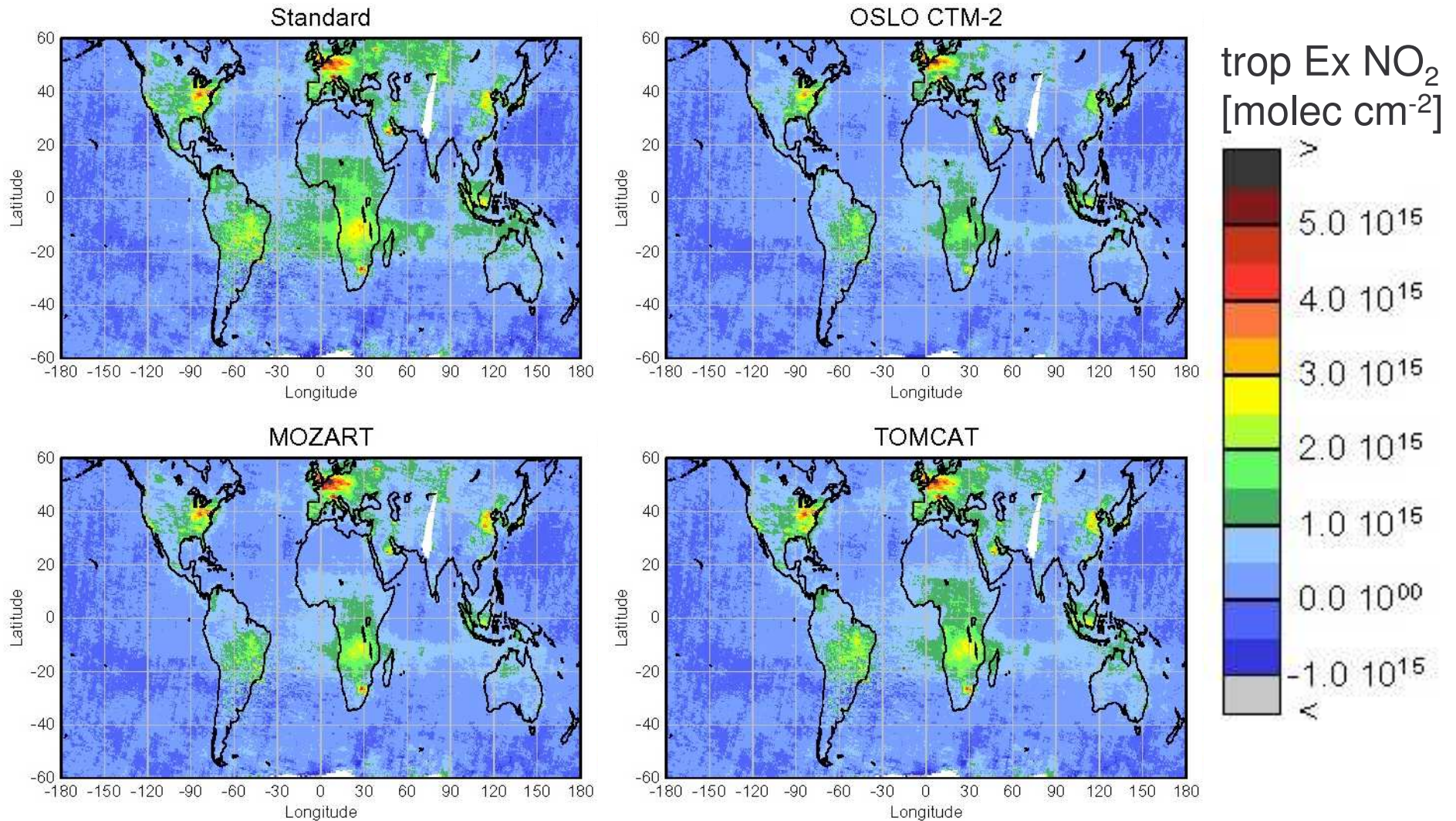
Relative Änderung der Luftmassen Faktoren



Einfluss des Modells auf den Luftmassen Faktor

- Das Retrieval ist abhängig vom jeweiligen Atmosphären-Modell
- Die LMF über Wasser sind stets hoch (geringer Einfluss auf das Retrieval, da über Wasser kaum troposphärisches NO₂)
- Emissionsgebiete haben, je nach NO₂-Profil, unterschiedliche LMF
 - Biomassenverbrennung → große LMF ([NO₂] im Profil verteilt)
 - Verbrennung fossiler Brennstoffe → kleine LMF ([NO₂] bodennah)

Einfluss des Luftmassen Faktors auf das Retrieval



Einfluss des Luftmassen Faktors auf das Retrieval

GOME-Retrieval mit **Standard** Luftmassen Faktor

- höhere Werte über Gebieten mit natürlichen Emissionen
- höhere Werte über Südatlantik und Indischem Ozean

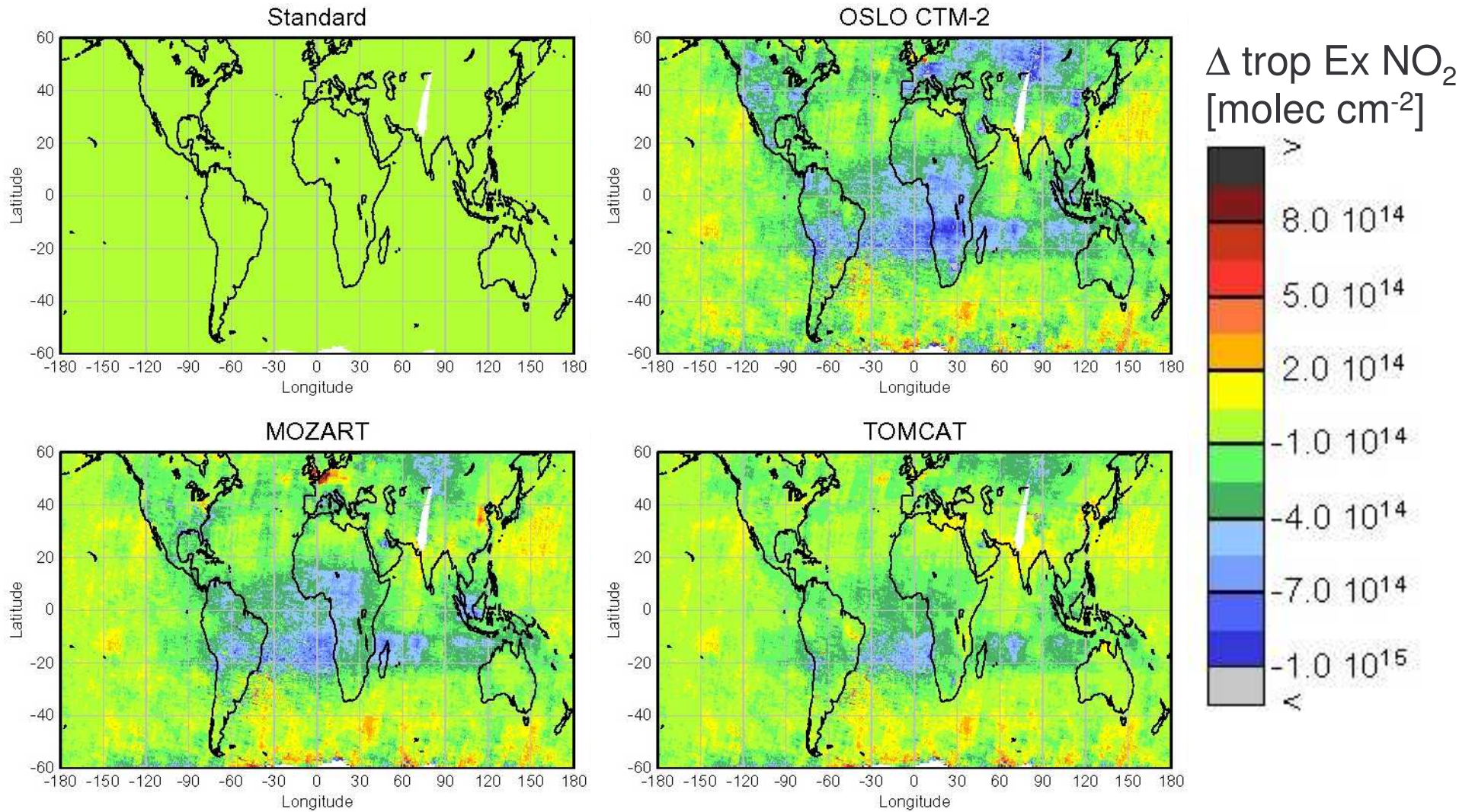
GOME-Retrieval mit **MOZART-** und **OSLO-Block** Luftmassen Faktor

- höhere Werte über Gebieten mit anthropogenen Emissionen
- niedrigere Werte über Gebieten mit natürlichen Emissionen
- niedrigere Werte über Südatlantik und Indischem Ozean

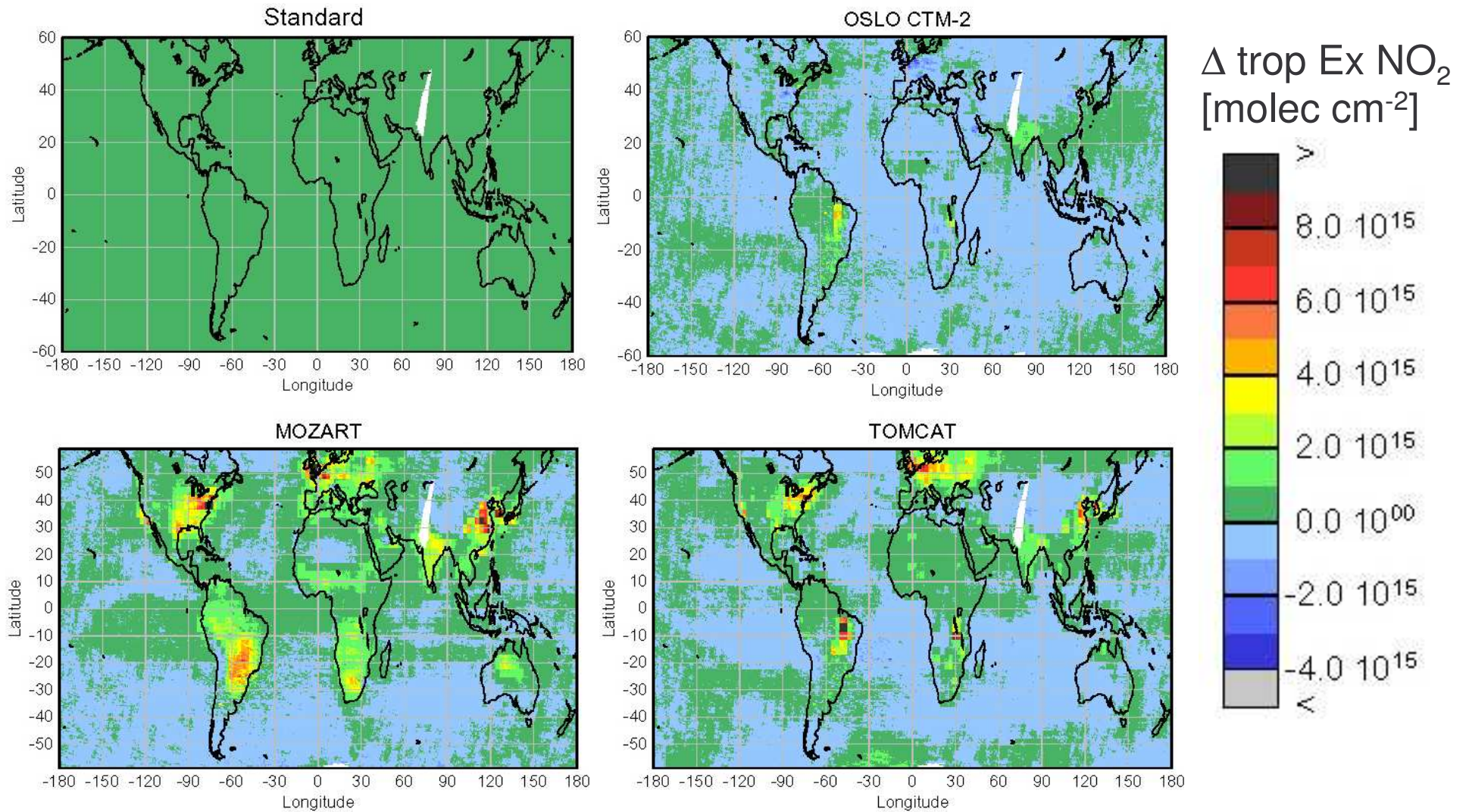
GOME-Retrieval mit **TOMCAT-Block** Luftmassen Faktor

- ähnliche Werte über Gebieten mit anthropogenen Emissionen
- niedrigere Werte über Südatlantik und Indischem Ozean

Δ Retrieval für die LMF



NO₂ Modell – NO₂ Retrieval mit Block LMF



Selbstkonsistenz

OSLO CTM-2 Modell

- allgemein gute Übereinstimmung von Modell und Retrieval
- über anthropogenen Quellen ist das Retrieval höher als das Modell

TOMCAT

- über anthropogenen Quellen ist das Modell wesentlich höher als das Retrieval

MOZART

- über allen Quellen ist das Modell wesentlich höher als das Retrieval

Ergebnisse

- Für jeden Messpunkt und für jeden Tag wird ein individueller LMF auf Grundlage der Modell Profile bestimmt
- Die globale Bestimmung der LMF für einen Tag $< 1s$
- Das Retrieval hängt stark vom verwendeten Modell ab
- Für MOZART und TOMCAT wurden die Daten für 1997 bearbeitet:
Es zeigt sich ein starker Jahresgang

Ausblick

Urbanes Aerosol nach den Emissions-Katastern der Modelle integrieren

Wolkenbehandlung

- Wolkenhöhe und –bedeckungsgrad mit FRESCO (Fast Retrieval Scheme for Clouds, KNMI, Niederlande) bestimmen
- Block LMF für verschiedene Wolkenhöhen erzeugen
- proportional zum Bedeckungsgrad Block LMF für Wolkenhöhen und Modellgitterpunkt einsetzen

Unterschiedliche Albeden – zusätzliche Dimension für Block LMF neben

- Sonnenzenitwinkel
- Bodenhöhe
- Aerosol-Typ