

Regional scale impacts of changing anthropogenic emissions on aerosols

Doctoral Thesis

Author(s):

Knote, Christoph

Publication date:

2012

Permanent link:

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-007179320>

Rights / license:

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#)

Diss. ETH No. 20227

Regional scale impacts of changing anthropogenic emissions on aerosols

A dissertation submitted to
ETH ZURICH

for the degree of
Doctor of Sciences

presented by
CHRISTOPH KNOTE
Dipl. Umweltwiss., Univ. Trier
born 13 January 1981
citizen of Germany

accepted on the recommendation of
Prof. Dr. Ulrike Lohmann, examiner
Dr. Dominik Brunner, co-examiner
Dr. Martijn Schaap, co-examiner

2012

Abstract

Man-made emissions of air pollutants and their precursors have decreased substantially in Europe over the last decades, owing to emission reduction measures as part of programs to reduce air pollution and the anthropogenic contribution to climate change. The reactions of the atmospheric system to such measures are complex, non-linear, sometimes counter-intuitive and still not fully understood. Dynamics, radiation, clouds, trace gases, and particles interact in numerous ways, which makes estimates on the outcome of a certain measure difficult. Besides gaseous pollutants, particles in the atmosphere are a major concern. They are a health issue, lead to acidification and eutrophication of the environment, and interact with the climate system through their influence on radiation and clouds. Therefore, aerosols represent a direct link between air pollution and climate.

The steps to set up a comprehensive numerical modeling system which describes the major source, transport, transformation and removal processes are outlined. A comprehensive evaluation of the system against a large number of measurement datasets in all seasons shows that the model is well able to represent concentrations, spatial distribution and diurnal evolution of the major gaseous tropospheric air pollutants under current conditions. Averaged bulk mass, time evolution of particle mass, and time-averaged number concentration size distributions of ambient aerosols are reasonably represented. Notable differences to observations are found for sulfate (underestimation) and nitrate (overestimation) aerosol components. It is concluded that two missing processes, namely wet scavenging of gases and aqueous-phase chemistry, are responsible for these discrepancies.

A detailed coupling to a wet scavenging and aqueous-phase chemistry scheme is presented, with the focus on a description of the scavenging process that is consistent with the cloud microphysics module of the driving meteorological core. The online-coupling of the model system used, i.e. the simultaneous integration over time of meteorological together with chemistry and aerosol processes, allows for an explicit description of the transport of the chemical composition of cloud liquid and rain water content, and further makes the inclusion of cloud and rain droplet evaporation, including a description of aerosol processing, possible. Aerosol processing by clouds refers to the collection and combination of several aerosol particles, including newly oxidized mass from the gas-phase, in a single particle on evaporation of the cloud or rain droplet, and is associated with a net shift of the observed particle size distributions towards larger diameters. This is clearly observed in the simulations with the extended system. It is found that the newly oxidized mass contributes substantially to the mass of the newly formed particles. Sulfate aerosol mass is on average increased through aqueous-phase oxidation in droplets, while nitrate mass is reduced due to the inclusion of wet deposition for nitric acid, its gaseous-phase precursor, in the new scheme. Comparison with measurements of precipitation chemical composition reveals considerable scattering for the short period investigated, however, on average very good agreement is found for nitrates and ammonium, while sulfate wet deposition is underestimated.

Changes in aerosol composition are investigated with the extended system over the domain of Europe for the years 1990 and 2009. A statistical assessment of the observed trends in wet deposition of nitrate, ammonium and sulfate within the EMEP measurement network is conducted. Sulfate aerosol mass decreased significantly at almost all stations investigated for this periods which is consistent with an uniform decrease in sulfur dioxide emissions over Europe. While also nitrates and ammonium show statistically significant decreases of wet deposited mass at a number of stations, the trend and its spatial variability is much less uniform than that of sulfates due to a more heterogeneous development of the respective precursor emissions over Europe. Lower absolute reductions also lead to a worse signal-to-noise ratio which decreases statistical significance of trends found. Sensitivity simulations considering only changes in selected air pollutant precursor emissions give insight into the contributions of each component to the composition changes observed. Reductions in sulfur dioxide are, as expected, responsible for the majority of changes in sulfate aerosols. For the other components interactions between different emission changes were observed. Particularly interesting was the role of changes in nitrogen oxide emissions, which were found to counteract reductions in aerosol mass due to reductions in other precursor emissions in very polluted regions like the Po basin.

Zusammenfassung

Die vom Menschen verursachten Emissionen von Luftschadstoffen und deren Vorläufern haben sich in den vergangenen Jahrzehnten durch Programme zur Reduktion der Luftverschmutzung und zur Verringerung des menschengemachten Beitrags zum Klimawandel stark reduziert. Wie die Atmosphäre auf solche Veränderungen reagiert ist komplex, nicht-linear, teilweise entgegen den Erwartungen und noch nicht vollständig verstanden. Dynamik, Strahlung, Wolken, Spurengase und Partikel interagieren über eine Vielzahl von Prozessen, was die Vorhersage des Einflusses einer bestimmten Massnahme sehr schwierig macht. Neben Spurengasen sind Partikel in der Troposphäre, sog. Aerosole, von grosser Wichtigkeit. Sie können gesundheitsschädlich sein, führen zu Versauerung und Eutrophierung der Umwelt, und beeinflussen das Klima durch ihre Interaktionen mit Strahlung und Wolken. Aerosole stellen damit eine direkte Verbindung von Luftqualität und Klima.

Die nötigen Schritte zum Aufbau eines numerischen Modellsystems das alle wichtigen Emissions-, Transport-, Konversions- und Senkenprozesse zur Beschreibung atmosphärischer Aerosole und Spurengase beinhaltet werden beschrieben. Ein Vergleich des Systems mit einer grossen Anzahl verschiedener Beobachtungsdaten in allen Jahreszeiten zeigt die Fähigkeit, die mittleren Konzentrationen, räumlichen Verteilungen und Tagesgänge der wichtigsten gasförmigen Luftschadstoffe darzustellen. Die gemittelten Partikelmassenkonzentrationen und ihre zeitliche Entwicklung, sowie eine zeitlich gemittelte Verteilung der Partikelanzahlkonzentrationen werden gut wiedergegeben. Ein Vergleich mit Messungen der chemischen Zusammensetzung der Aerosole zeigt jedoch eine Überschätzung von Nitrat und eine Unterschätzung von Sulfat. Verantwortlich dafür sind zwei fehlende Prozesse im Modell, die Auswaschung von Gasen und die Nassphasenchemie.

Eine detaillierte Kopplung mit einem Schema zur Beschreibung dieser Prozesse wurde realisiert, mit Fokus auf einer Darstellung des Auswaschungsprozesses die konsistent mit dem existierenden Wolkenmikrophysikmodul des meteorologischen Kerns ist. Die "online"-Kopplung des verwendeten Modells, das heisst die simultane Integration der meteorologischen sowie Chemie- und Aerosolprozesse über die Zeit, erlaubt eine explizite Beschreibung des Transports der chemischen Zusammensetzung des Wolken- und Niederschlagswassers, sowie die Beschreibung der Wolkenprozessierung von Aerosolen über eine Darstellung der Evaporation von Wolken- und Niederschlagströpfchen. Mit Wolkenprozessierung von Aerosolen ist das Sammeln und Zusammenführen von mehreren Aerosolteilchen, und zusätzlich von frisch oxidierte Masse aus der Gasphase, innerhalb eines einzelnen Tropfens gemeint, welche bei der Evaporation des Tropfens nur ein einziges Partikel hinterlässt. Dieser Prozess ist verbunden mit einer Verschiebung der Partikelmassenkonzentrationen hin zu grösseren Teilchendurchmessern, was in den Simulationen mit dem erweiterten Modell sehr gut beobachtet werden konnte. Es zeigte sich ausserdem dass die Oxidation gasförmiger Vorläufersubstanzen in den Tropfen merklich zur Masse der neu-formierten Teilchen beiträgt. Generell erhöhte sich in der Simulation mit dem neuen Schema der Schwefelanteil im Aerosol durch Ox-

idation in der Nassphase, während der Nitratanteil als Folge der Auswaschung von Salpetersäure, dem Vorläufer von Nitrat in der Gasphase, zurückging. Der Vergleich einer Simulationsperiode mit Messungen der nassen Deposition zeigt zwar eine merkliche Streuung, welche jedoch im Mittel eine sehr gute Übereinstimmung für Nitrat und Ammonium ergibt. Die Sulfatdeposition wird im Mittel unterschätzt.

Mit dem nun erweiterten Modellsystem wurden Veränderungen in der chemischen Zusammensetzung der Aerosole zwischen 1990 und 2009 untersucht. Die beobachteten Trends für Nitrat, Ammonium und Sulfat in der nassen Deposition gemessen von Stationen des EMEP Netzwerks wurden statistisch analysiert. Die Abnahme von Sulfat ist an fast allen Stationen signifikant nachzuweisen, was mit einer Abnahme der Schwefeldioxidemissionen während der Untersuchungsperiode in ganz Europe übereinstimmt. Während eine Reihe von Stationen ebenfalls signifikant negative Trends für Nitrat und Ammonium zeigt sind die Trends und ihre räumliche Verteilung hier sehr viel variabler, was auf eine heterogenere Entwicklung der Emissionen ihrer Vorläufersubstanzen zurückzuführen ist. Die geringeren absoluten Trends führen zusammen mit einer Variabilität die ähnlich der von Sulfat ist zu einem schlechteren Signal-Rausch-Verhältnis, was das Aufzeigen eines statistisch signifikanten Trends erschwert. Sensitivitätsstudien bei denen nur die Veränderungen in den Emissionen bestimmter Vorläufersubstanzen berücksichtigt wurden geben Aufschluss über die jeweiligen Beiträge zu den beobachteten Veränderungen im Aerosol. Die Reduktionen der Emissionen von Schwefeldioxid erwiesen sich wie erwartet als die Hauptverantwortlichen für die Reduktionen von Sulfat. Für die anderen Komponenten wurden Interaktionen zwischen den Veränderungen der Emissionen der einzelnen Vorläufersubstanzen entdeckt. Besonders interessant war die Rolle der Stickstoffemissionen und der Auswirkungen ihrer Veränderungen zwischen 1990 und 2009. Es zeigte sich dass diese Veränderungen in stark verschmutzten Regionen wie der Po-Ebene den Reduktionen in der Aerosolmasse aufgrund Veränderungen in anderen Emissionen entgegenwirkten.