

**VOORTGANGSRAPPORTAGE OVER HET JAAR 2001:  
KLIMAATVERANDERING EN AËROSOLEN**

EEN PROJECT UITGEVOERD IN OPDRACHT VAN HET MINISTERIE VAN  
ECONOMISCHE ZAKEN

H.M. ten Brink, P.J.H. Bultjes, M. Schaap, M. van Loon, A.T. Vermeulen, A. Even,  
J. Slanina, J.W. Erisman en G.J. de Groot

## Verantwoording

Dit onderzoek werd uitgevoerd in opdracht van het ministerie van economische zaken.

## Abstract

De temperatuur op aarde stijgt door de toenemende emissies van broeikasgassen, maar minder dan verwacht. Dat komt door de koelende werking van aerosolen. Aerosolen zijn minuscule "stof" deeltjes die zonlicht weerkaatsen. In Nederland, bij voorbeeld, is het aerosoleffect zo groot dat het koelend effect de opwarmende werking van de broeikasgassen zou kunnen compenseren. Dit komt door een grote bijdrage van de aerosolcomponent nitraat, maar ook door koolstof. In hoeverre dit meer algemeen in Europa geldt wordt nagegaan in dit project.

### ***Werkzaamheden en resultaten in 2001***

De ontwikkeling van de apparatuur voor semi-continu meten van de samenstelling als functie van de grootte van de aerosolen werd afgerond. Er werden metingen uitgevoerd op de meettoren van KNMI in Cabauw nabij Lopik, in het centrum van Nederland. De eerste resultaten ondersteunen conclusies uit eerdere meetcampagnes dat juist op dagen dat het aerosoleffect groot is, n.l. op dagen met veel aerosol en veel zon, nitraat de dominante aerosolcomponent is. Vergelijkbare ECN-apparatuur werd in China ingezet.

Er werd door ons een analyse gemaakt van de eerste Europese meetcampagne waarin de concentraties van de belangrijkste aerosolcomponenten werden vergeleken. Het blijkt dat de problemen bij het verzamelen van koolstofhoudende aerosolen veel groter en moeilijker te overwinnen zijn dan die voor nitraat.

Het gedetailleerde model voor de beschrijving van de aerosolvelden in Europa (LOTOS) werd uitontwikkeld. De velden voor nitraat en sulfaat werden voor een volledig jaar (1995) doorgerekend. Door interpolatie van de gegevens op meetpunten zijn de "gemeten" velden geconstrueerd. Een tweetal zgn. data-assimilatie runs is gedaan waarvan resultaten dichter bij de waarnemingen liggen dan die van het model zonder data-assimilatie.

De mogelijkheid om satellietbeelden te gebruiken voor het vaststellen van de absorptie van zonlicht werd nagegaan.

Het Third Assessment Report van IPCC is uit. Daarin wordt expliciet onze bevinding genoemd dat nitraat in Nederland de dominante aerosolcomponent is.

De instrumentatie voor het meten van methaan en lachgas op vier hoogtes op eerder genoemde meettoren heeft in het verslagjaar volgens verwachting gedraaid. Er is een begin gemaakt met de analyse van de grote serie meetgegevens uit de jaren 2000 en 2001.

Er is een relatie vastgesteld tussen de klimaateffecten en de gezondheidsaspecten van roet-aerosolen. Daarom is de keuze gemaakt ons vooral te richten op assessment van het veld van deze koolstofcomponent.

## INHOUDSOPGAVE

<b>1. ACHTERGROND EN AANPAK</b>	<b>4</b>
1.1 DOELSTELLINGEN	4
<b>2. WERKZAAMHEDEN EN RESULTATEN IN 2001</b>	<b>5</b>
2.1 SAMENVATTING	5
2.2 INSTRUMENTONTWIKKELING	6
2.3 HET NITRAATVELD IN EUROPA GEËXTRAPOLEERD UIT METINGEN	9
2.4 ROET	12
2.5 MODELONTWIKKELING	13
2.5.1 <i>Inleiding</i>	13
2.5.2 <i>Modelverbeteringen</i>	13
2.5.3 <i>Model resultaten en validatie</i>	15
2.5.4 <i>Referenties</i>	22
2.6 SATELLIETWAARNEMINGEN	22
2.7 IPCC EN EUROTRAC	23
2.8 MONITORING VAN NIET-CO <sub>2</sub> BROEIKASGASSEN.	24
2.9 AËROSOLEN EN GEZONDHEID	25
<b>3. PUBLICATIES EN PRESENTATIES</b>	<b>27</b>

## 1. ACHTERGROND EN AANPAK

De temperatuur op aarde stijgt door de toenemende emissies van broeikasgassen. Dit is de hoofdconclusie van het nieuwe Third Assessment Report van het centrale klimaatpanel IPCC. Echter, de temperatuurverhoging is minder dan verwacht. Dat komt door de koelende werking van aerosolen. Aerosolen zijn minuscule "stof"deeltjes die zonlicht weerkaatsen. Aerosolen die door de mens in de lucht worden gebracht geven een onnatuurlijke koeling. De onzekerheid in dit koelende effect is groot, maar de koeling wordt wellicht ook systematisch onderschat. De IPCC schattingen van het aerosoleffect berusten bijna geheel op berekeningen. Wij hebben op die schatting kritiek, omdat de berekeningen getoetst zijn met waarnemingen op plaatsen waar het aerosoleffect klein is. In Nederland, bij voorbeeld, is het aerosoleffect zo groot dat het koelend effect de opwarmende werking van de broeikasgassen zou kunnen compenseren. Dit komt door een grote bijdrage van de aerosolcomponent nitraat. In hoeverre dit meer algemeen in Europa geldt wordt nagegaan in dit project. Daarvoor zijn modellen nodig waar meetgegevens een integraal onderdeel in vormen. Die meetgegevens moeten betrouwbaar zijn. Aerosolen zijn schadelijk voor de menselijke gezondheid. Om deze schade te verminderen zullen emissiebeperkende maatregelen worden genomen waarvan de invloed op aerosolniveaus en klimaateffect niet wordt nagegaan door het IPCC.

De emissies van broeikasgassen worden momenteel geschat uit officiële opgaven. Verificatie daarvan kan gebeuren aan de hand van metingen van de concentraties op een centraal meetpunt in Nederland.

Noot: in het klimaatonderzoek wordt veelvuldig gesproken over forcering van de stralingsbalans. Deze laatste is de balans tussen inkomende zonnestraling en uitgaande warmtestraling; ze is bepalend voor de temperatuur op aarde. De verstoring van de stralingsbalans door de mens is het startpunt voor de klimaatverandering: een dergelijke verstoring heet "forcering" (Engels: forcing).

### 1.1 Doelstellingen

- a. Vaststellen van de forcering van de stralingsbalans door aerosolen en van de invloed van emissiebeperkende maatregelen daarop, met name in Europa.
- b. Assessment van het effect van aerosolen op de stralingsbalans en, mogelijk, op temperatuur en klimaat.
- c. Voor doelstelling a. is het nodig vast te stellen wat de chemische samenstelling en de grootte is van de aerosolen. De weerkaatsing van zonlicht is n.l. sterk afhankelijk van deze parameters. Ook voor de schade die aerosolen veroorzaken zijn dit de belangrijkste grootheden. Een nevendoelelstelling is dan ook gebruik te maken van de hier verkregen gegevens bij het formuleren van optimale en dus kosteneffectieve bestrijdingsmaatregelen, waarbij rekening wordt gehouden met alle milieuaspecten.
- d. Naast aerosolen wordt ook een betere schatting van de bijdrage van voor Nederland belangrijke broeikasgassen methaan en N<sub>2</sub>O (lachgas) gemaakt; het streven is een nauwkeurigheid van 30% te halen. De schatting wordt verkregen uit metingen van de concentraties in de lucht, die onderdeel vormen van een Europese inspanning voor verbeteren van het emissiebestand.

## 2. WERKZAAMHEDEN EN RESULTATEN IN 2001

### 2.1 Samenvatting

De ontwikkeling van de apparatuur voor semi-continu meten van de samenstelling als functie van de grootte van de aerosolen werd afgerond. Er werden metingen uitgevoerd op de meettoren van KNMI in Cabauw nabij Lopik, in het centrum van Nederland. Er wordt op een hoogte van 200 m gemeten waardoor aerosolen die van lokale afkomst zijn weinig kunnen interfereren. Dergelijke lokale deeltjes zijn n.l. niet representatief voor de grootschalige effecten die optreden. De eerste resultaten ondersteunen conclusies uit eerdere meetcampagnes dat juist op dagen dat het aerosoleffect groot is, n.l. op dagen met veel aerosol en veel zon, nitraat de dominante aerosolcomponent is. In voorjaar 2002 volgt mede op basis van deze eerste analyse een langere meetserie.

De ECN-apparatuur werd in China verder ingezet voor metingen. Door de politieke impasse tussen China en de VS ten tijde van het ACE-Asia project konden de gegevens niet gebruikt worden in dat kader. De bedoeling was dat Amerikaanse vliegtuigen metingen zouden uitvoeren boven de grondstations. Daar kwam geen toestemming voor na het neerhalen van een spionagevliegtuig. De nitraatmetingen die in 1999 in de VS werden uitgevoerd zijn onderdeel van een publicatie samen met het bekende Georgia Tech uit Atlanta.

Er werd door ons een analyse gemaakt van de eerste Europese meetcampagne waarin de concentraties van de belangrijkste aerosolcomponenten werden vergeleken. Het blijkt dat de problemen bij het verzamelen van koolstofhoudende aerosolen veel groter en moeilijker te overwinnen zijn dan die voor nitraat.

Het gedetailleerde model voor de beschrijving van de aerosolvelden in Europa (LOTOS) werd uitontwikkeld met betrekking tot de dominante aerosolcomponenten nitraat en sulfaat. De betreffende velden werden voor een volledig jaar (1995) doorgerekend. Berekende velden moeten nu worden vergeleken met de velden die uit de metingen kunnen worden afgeleid. De constructie van de velden is gedaan voor de wintermaanden van de jaren 1994-1997 door interpolatie van de gegevens op meetpunten. Een publicatie hierover is in druk. Een tweetal data assimilatie runs is gedaan. In simulatie 1 werden satelliet velden van de zgn. Aerosol Optical Depth, grondwaarnemingen van sulfaat, nitraat, ammonium en ozon gebruikt. Omdat aerosolvorming en ozonvorming sterk gekoppeld zijn via hun gasvormige voorlopers, is deze laatste grootheid ook meegenomen in de analyse. In de data-assimilatie werden de emissies van NO<sub>x</sub>, SO<sub>x</sub>, VOC en NH<sub>3</sub> gevarieerd. De resultaten van de runs met data-assimilatie liggen dicht bij de waarnemingen dan die van het model zonder data assimilatie.

De mogelijkheid om satellietbeelden te gebruiken voor het vaststellen van de absorptie van zonlicht werd nagegaan. Verder werd nagegaan op welke dagen in de meest recente jaren aerosolvelden uit satellietbeelden zijn afgeleid en er tevens meetgegevens vanaf de grond beschikbaar zijn.

Het Third Assessment Rapport van IPCC is uit. Daarin wordt expliciet onze bevinding genoemd dat nitraat in Nederland de dominante aerosolcomponent is. De teksten over nitraat zijn aangepast op de punten waarop ECN commentaar heeft geleverd in de review-rondes.

De instrumentatie voor het meten van methaan en lachgas op vier hoogtes op eerder genoemde meettoren in Cabauw heeft in het verslagjaar volgens verwachting gedraaid. Er is een begin gemaakt met de analyse van de grote serie meetgegevens uit de jaren 2000 en 2001. De gegevens zijn geleverd aan JRC-Ispira om gebruikt te worden in de validatie van modelberekeningen met het globale TM5 model. De TM5 concentratievelden zullen gebruikt gaan worden in de regionale modellen die ECN zal toepassen op de meetreeksen om te komen

tot emissieschattingen voor NW-Europa.

In sectie 2.9 wordt de relatie tussen de klimaateffecten en de gezondheidsaspecten van aerosolen aangegeven. Een centrale component in deze cross-cutting issue is roet. Het is zelf schadelijk voor de menselijke gezondheid of geassocieerd met stoffen die schadelijk zijn. Roet absorbeert zonlicht en is daarmee een belangrijke broeikascomponent. Dat is de reden dat wij de keuze gemaakt hebben ons vooral te richten op het ontwikkelen van een goede meetmethode en de modellering van roet.

Ook wordt kort het grote "Eurotrac"-programma besproken. Daarin is momenteel het onderzoek op ons terrein gebundeld. TNO/ECN speelt daarin een centrale rol.

## 2.2 Instrumentontwikkeling

### *Organisch koolstof*

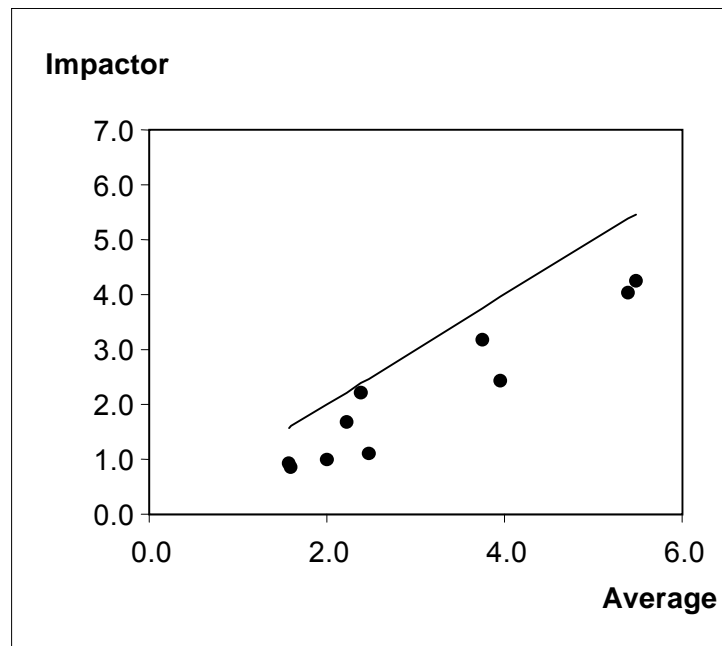
De ontwikkeling van de methode voor meting van organische componenten met de in eerdere rapporten beschreven Steam Jet Aerosol Collector (SJAC) is vrijwel voltooid wat betreft de analysekant. "Organisch" reflecteert zonlicht, maar hoeveel is niet bekend vanwege de grote problemen deze component te kunnen meten. ECN heeft een nieuwe aanpak waarbij het aerosol via een SJAC direct in water wordt verzameld en via natchemisch destructie wordt bepaald. In dit jaar is aandacht besteed aan twee onderdelen: teststoffen die relevant zijn voor buitenlucht aerosol, en een vergelijking van analyseresultaten van buitenluchtmetingen verricht met deze directe methode en off-line filtermethodes. Het bleek verder dat door de monsterbehandelings-tijd te verlengen ook de minst reactieve componenten zoals humuszuren, kunnen worden omgezet in een meetbare component, zonder dat daarbij het zgn. elementaire koolstof wordt omgezet. Het resultaat van deze studie is dat de on-line analyzer geschikt is voor metingen op achtergrondlocaties. Deze bevindingen zijn vastgelegd in een artikel dat opgestuurd is naar International Journal of Environmental Analytical Chemistry.

Het systeem is voor het eerst getest in een veldvergelijking waar elf Europese instituten aan deelnamen die alle klassieke filtermethodes gebruikten. Daarbij werd nog een mild reagens gebruikt. De resultaten van de vergelijkingsmetingen zijn in 2001, onder leiding van ECN, geanalyseerd. Deze werkzaamheden worden gedaan in het kader van het Eurotrac-AEROSOL, zie sectie 2.7. ECN is trekker van het onderdeel koolstof. In februari waren alle gegevens in de database opgenomen en is begonnen met de evaluatie en vergelijking van de resultaten. De meeste methoden correleren goed, ook met onze eigen SJAC, al zijn de concentraties gemeten met deze laatste lager. Bij afwezigheid van een referentiemethode voor koolstofmetingen is niet duidelijk of wij te weinig meten of de anderen te veel. Voor totaal-koolstof variëren de resultaten van de labs tussen 70% en 130% van het gemiddelde, zie figuur 1. Deze spreiding is minder groot dan verwacht, maar er zit toch nog bijna een factor twee tussen hoogste en laagste waarde. Dit komt door de problemen bij het verzamelen. Verschillen voor zwart koolstof ("roet") varieerden tussen 50% en 160% van het gemiddelde. Dit is aan verschil in analysemethoden te wijten. De verschillen werden uitgebreid besproken tijdens een speciale workshop op de Europese Aerosol Conferentie in Leipzig.

Er werd een gezamenlijk abstract voor genoemde conferentie gemaakt en de betreffende lezing werd gepresenteerd door ECN. Naast ECN deden aan het project mee: IfT (Leipzig, Germany), NIC (Ljubljana, Slovenia), JRC (Ispra, Italy), ISAO - C.N.R. (Bologna, Italy), RUG - IfNS (Gent, Belgium), IEP (Wien, Austria) en IAC - VUT (Vienna, Austria). Dit zijn de toonaangevende instituten op gebied van meting van koolstofaerosol in Europa.

Verder werd meegedaan aan een vergelijkingsonderzoek om roet resp. zwart koolstof te bepalen. De methode die wij gebruiken voor analyse ligt dicht bij het gemiddelde van wat de meer betrouwbare methodes lijken. Resultaten van uitgerekend een methode die gebruikt wordt in het Duitse meetnet voor roet, zie ook sectie 2.8, wijken sterk af van de rest. Deze methode is ook de minst doordachte techniek.

De nieuwe promovenda is verder gegaan met haar onderzoek dat er op gericht is de SJAC-methode verder te ontwikkelen zodat ook zwart koolstof gemeten kan worden. Dat gebeurt door de lichtabsorptie te meten, dat is geen kwantitatieve methode en er wordt nu een chemische bepaling aan gekoppeld.



Figuur 1. De hoeveelheid verzameld koolstof blijkt afhankelijk van de methode van verzamelen van het aërosol: een inertiaal-impactor of een filter. Preferente adsorptie van koolstofhoudende gassen in een filter is de meest waarschijnlijke reden.

#### *Samenstelling van aërosol als functie van grootte*

Omdat de invloed van aërosolen sterk afhankelijk van de grootte is meting van de samenstelling als functie van de grootte nodig. Indien, zoals nog in het IPCC-rapport van 1995 werd aangenomen, nitraat voorkomt in deeltjes die groter zijn dan  $2 \mu\text{m}$  dan weerkaatst het weinig zonlicht. Nitraat dat  $0,5$  tot  $1 \mu\text{m}$  groot is, verstrooit het zonlicht maximaal. De reden is dat die deeltjes even groot zijn als de golflengte waarbij het zonlicht haar maximale intensiteit heeft. Eerdere, kortdurende, metingen met handmatige instrumenten leken aan te geven dat het nitraat inderdaad klein is maar er is een langere tijdreeks nodig om dit zeker te stellen. Ook voor de verblijftijd van aërosolen in de lucht speelt de deeltjesgrootte een grote rol. Kleinere en grotere aërosolen blijven niet lang in de lucht hangen, maar juist de deeltjes van  $0,5$  tot  $1 \mu\text{m}$  hebben de langste verblijftijd en oefenen dus het langst hun koelende werking uit.

Tot slot is de chemische samenstelling van aërosolen ook van belang in de "fijn-stof" problematiek, omdat hier geldt dat alleen kleine deeltjes in de longen doordringen en dus schadelijk zijn, zie ook sectie 2.8.

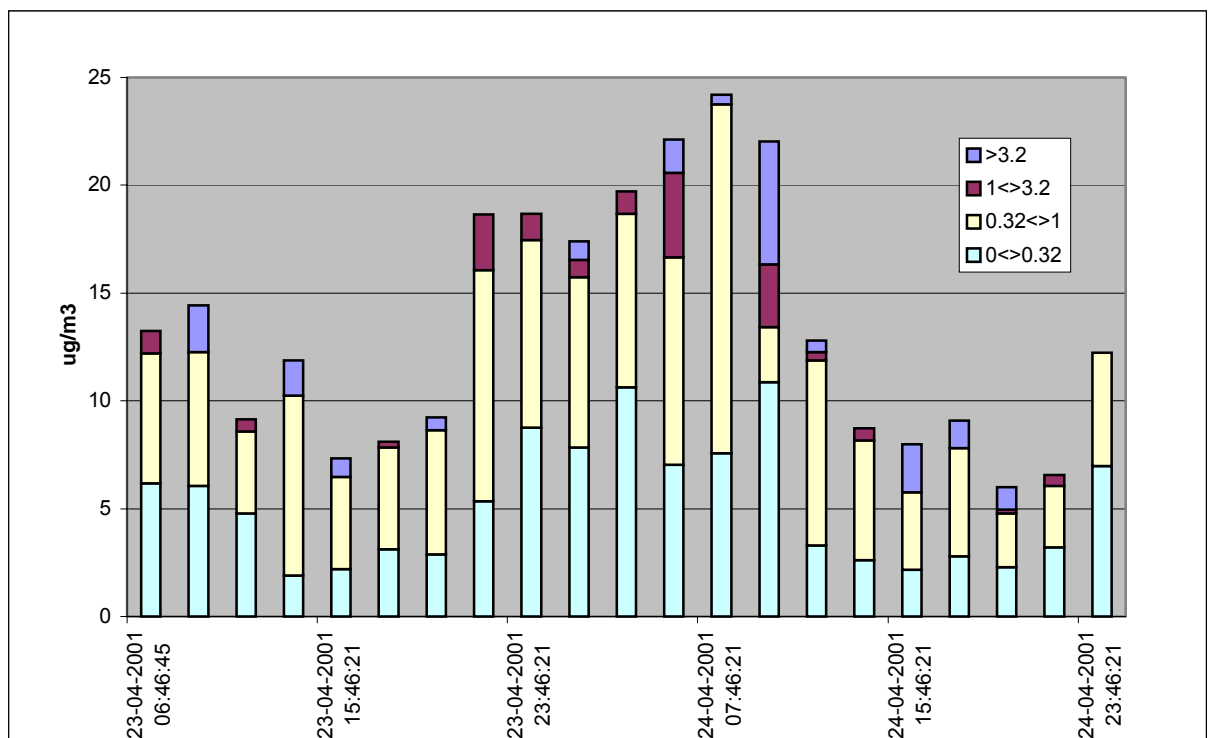
De methode om met de SJAC de chemische samenstelling als functie van de deeltjesgrootte te meten is uitontwikkeld. Het principe van de groottescheiding is afbuiging o.i.v. een centrifugale kracht in een zgn. impactor. Daarin worden deeltjes die te zwaar zijn uitgeslingerd en alleen van de doorgaande fractie wordt de samenstelling geanalyseerd. Daarvoor is een commerciële cascade-impactor omgebouwd, waarna de afscheidingskarakteristieken opnieuw getest zijn. In de nieuwe opzet zijn de trappen parallel geschakeld en de aanzuiglucht naar de SJAC wordt afwisselend door een van de impactoren geleid. Ieder kwartier wordt automatisch overgeschakeld. De impactoren hebben een verschillende afscheidingsdiameter waardoor

andere aërosolfracties worden doorgelaten naar de SJAC. Daarbij wordt telkens de samenstelling bepaald van deeltjes die kleiner zijn dan de afscheidingsdiameter van de gebruikte impactor. De samenstelling in grootteklassen wordt verkregen door het verschil te nemen in de doorgelaten fracties; figuur 2 kan hierbij dienen als voorbeeld van de uitwerking van deze metingen.

Verliezen door depositie van aërosolen zijn tegengegaan door gebruik van brede leidingen en grote kranen. Het verlies van aërosolen is getest en blijkt inderdaad verwaarloosbaar klein. De nieuwe methodiek voor meten van de samenstelling als functie van deeltjesgrootte is met succes getest voor de aërosolcomponent ammonium. Deze kan via de bij ECN ontwikkelde techniek zelfs continu gemeten worden.

De componenten nitraat en sulfaat worden met een Ion Chromatograaf gemeten, wat een meer bewerkelijk analysesysteem is dan het analyseapparaat voor ammonium. Het monster wordt nu eerst verzameld voor het geanalyseerd kan worden. Dat kan leiden tot meer complicaties en inderdaad is er meer data-uitval.

Er werden initiële metingen uitgevoerd op de meettoeren van KNMI in Cabauw. Deze mast staat in het centrum van Nederland nabij Lopik. Er wordt op een hoogte van 200 m gemeten waardoor lokale emissies van fijn stof minder interfereren. Dergelijke lokale deeltjes zijn niet representatief voor de grootschalige effecten waar we mee te maken hebben. De eerste resultaten ondersteunen conclusies uit eerdere meetcampagnes dat nitraat juist op dagen met veel aërosol en veel zon de meest dominante aërosolcomponent is. Niet alleen is de concentratie hoog maar het nitraat ook juist voor in de deeltjes die het zonlicht het best weerkaatsen. De verandering in de tijd van de concentratie en grootte van het nitraat wordt momenteel geanalyseerd. Daarbij wordt allereerst de herkomst van de lucht waarin zich de deeltjes bevinden nagegaan. In voorjaar 2002 volgt mede op basis van deze eerste analyse een langere meetserie.



Figuur 2. Concentratie nitraat in aërosol op de aangegeven tijd in aërosol van de aangegeven grootte. Van beneden naar boven geven de kleuren aan: de concentratie in aërosol kleiner dan 0.32  $\mu\text{m}$ , dan dat in de in de fractie 0.32 tot 0.1  $\mu\text{m}$  etc. De totale lengte van de staaf komt overeen met de totale concentratie nitraat.



### *China*

Nitraat komt voornamelijk voor als calciumnitraat maar in het voorjaar is er ook ammoniumnitraat. Uit recente publicaties en privé-informatie blijkt dat ammoniumnitraat ook belangrijk is op Taiwan, in Korea en in Japan.

Door de politieke impasse tussen China en de VS ten tijde van het grote "ACE-Asia" project konden de gegevens niet gebruikt worden in dat kader. De bedoeling was dat Amerikaanse vliegtuigen metingen zouden uitvoeren boven de Chinese grondstations. Daar kwam geen toestemming voor na het neerhalen van een spionagevliegtuig van de VS. De metingen die in 1999 in de VS werden uitgevoerd met de SJAC zijn onderdeel van een publicatie samen met het bekende Georgia Tech uit Atlanta, waarmee ook in China wordt samengewerkt.

## 2.3 Het nitraatveld in Europa geëxtrapoleerd uit metingen

### *Data-interpolatie*

Het belangrijkste werk in de verslagperiode was de constructie van het veld van nitraataërosol in Europa. Dit veld is gebaseerd op een interpolatie van die meetgegevens waarvan de betrouwbaarheid werd getest. Er is nagegaan over welke afstand de nitraatconcentraties met elkaar correleren. Die afstand blijkt in de winter meer dan 400 km te bedragen en daarmee groter te zijn dan de afstand tussen de meetstations. Vandaar dat interpolatie van de concentraties in de winter toegestaan is. In de zomer is de correlatieafstand te klein voor interpolatie.

Een ingekort manuscript over de constructie van het nitraatveld is naar het tijdschrift Atmospheric Environment ingestuurd. Het ECN-rapport waarop de publicatie is gebaseerd bevat extra gegevens. Het relatief geringe commentaar van de reviewers is verwerkt in de herziene versie.

Op basis van het manuscript en eerdere publicaties is een "letter to Nature" geschreven met als titel "Nitrate the new atmospheric coolant in Europe. Er zijn daarvoor extra gegevens uit Oostenrijk en Hongarije geanalyseerd waarmee het veld weer is uitgebreid. Het manuscript is door Nature afgewezen met als motivering dat een modelonderzoek het belang van nitraat al zou hebben aangetoond. Het probleem daarbij is juist dat de modellen niet geverifieerd zijn. Wij zijn de eersten die uitgaan van meetgegevens. Er is echter geen mogelijkheid tot weerwoord. Het artikel wordt omgewerkt tot een manuscript voor het tijdschrift Geophysical Research Letters. De gevonden concentratievelden voor zowel nitraat als sulfaat staan weergegeven in figuur 3.

Het belangrijkste evenement in de afgelopen periode was het symposium waarmee het Nationaal Onderzoeksprogramma, NOP-2, werd afgesloten. Dit liep van 1995 tot medio 2001. ECN was coördinator van twee grote projecten. De uitkomst van ons onderzoek werd op het symposium als derde genoemd in de rij van belangrijkste Nederlandse bijdrages aan het internationale klimaatonderzoek. Het betreft de bevinding dat nitraat minstens zo belangrijk is als sulfaat voor het afkoelende effect van aërosolen in onze regio. Het boek met integratie/samenvatting van het fysische deel van het klimaatonderzoek in NOP-2 werd gepubliceerd. Ook daarin, en in een Nederlandstalige samenvatting van het gehele NOP-programma, wordt volop aandacht aan nitraat gegeven.

Er is verder over ons onderzoek een publicatie geschreven die is verschenen in het blad Change getiteld "Aerosols a matter of cooling and warming". In hetzelfde nummer staat ook een samenvatting van het wolkenonderzoek met ECN als co-auteur.

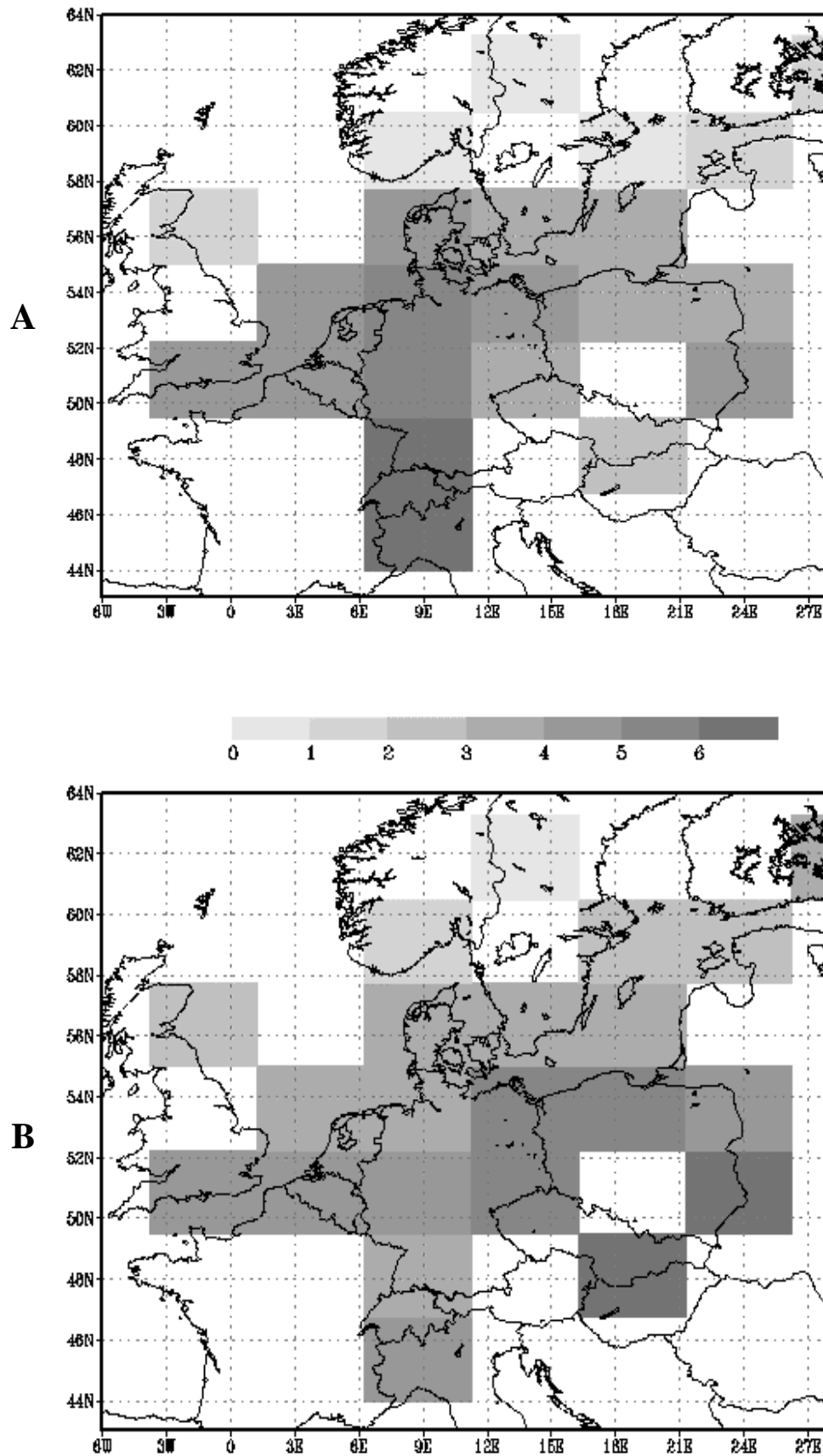
Er is begonnen met de evaluatie van de Europese vergelijkingsmeting van nitraat. Deze vergelijkingsmeting is onderdeel van een grotere serie metingen in "INTERCOMP" een initiatief van Eurotrac-AEROSOL. ECN heeft een begin gemaakt met de evaluatie, hoewel dit eigenlijk het werk is van een groep uit Berlijn. De resultaten worden op het Eurotrac-symposium van maart 2002 gepresenteerd. De extended abstract voor de meeting vormt de

basis van een manuscript voor publicatie.

De kritische analyse van de nitraatgegevens heeft verder geleid tot een evaluatie van sulfaatdata. Het lijkt er sterk op dat in Duitsland de sulfaatconcentraties door de monitoringinstanties systematisch met bijna een factor twee worden onderschat!

Eerder werd gemeld dat de concentraties nitraat hoog zijn in Europa ten noorden van de Alpen, maar de hoogste concentraties worden ten zuiden ervan aangetroffen: in de Po-vlakte blijken zelfs overdag in de in de zomer hoge concentraties nitraat voor te komen. Dat was niet verwacht bij de hoge temperaturen die daar heersen. Het wijst op een grotere hogere stabiliteit van deze halfvluchtige component dan de modellen voorspellen.

Figuur 3 (A) Concentratieveld van nitraat in Europa, in  $\mu\text{g m}^{-3}$ ; (B) Idem voor sulfaat. Voor de witte vakjes zijn geen gegevens beschikbaar.



Het blijkt dat de stabiliteit van de vluchtige nitraatcomponent, ammonium nitraat, eigenlijk onvoldoende bekend is. Daarom is er experimenteel onderzoek verricht in 2000 in de ECN-klimaatkamer (CHIEF) om deze stabiliteit voor het eerst ter wereld experimenteel te bepalen. De data zijn in 2001 uitgewerkt. Het lijkt er sterk op dat de stabiliteit van het nitraat toeneemt als het voorkomt in combinatie met sulfaat. Er is een planning voor gerichte vervolgmetingen in de buitenlucht in een periode met hoge temperaturen waarvoor dit het meest relevant is.

Noot: in het oosten van de VS komt (ook) veel nitraat voor. Echter, de nitraatvelden zijn daar geconstrueerd middels metingen die in totaal een week duren. In die tijd vindt veel verdamping van nitraat plaats en de vraag is hoe juist de gerapporteerde waardes zijn. Verder blijkt dat de filters een hoge nitraat blanco kennen. Wij zijn door onze deelname aan een pilotstudy in Atlanta goed op de hoogte van de in de VS gebruikte methodes en de (betrekkelijke) waarde van de gegevens.

## 2.4 Roet

Roetdeeltjes (zwart-koolstof, de naam zegt het al) absorberen licht. Door de absorptie warmt de lucht waarin ze zich bevinden op. Wanneer roet zich boven een wit oppervlak bevindt, zoals sneeuw of wolken dan is het sterk opwarmend. Dat betekent ook dat de opwarming door roet op andere tijden en plaatsen gebeurt dan de afkoeling door bijvoorbeeld sulfaat waarmee het vaak samen voorkomt. Dat sulfaat heeft een koelende werking die juist maximaal is boven donkere oppervlakken als zeeën en bossen. Roet heeft een sterk regionaal karakter. Ze geeft een sterke opwarming van de atmosfeer die een orde van grootte meer is dan die van de (extra) broeikasgassen. Een betreuwenswaardige maar geslaagde proef waren de oliebranden in Koeweit tijdens de Golfoorlog. De vraag is of dergelijke verschillen, die zo kenmerkend zijn voor de aerosolen, invloed hebben op het klimaat; die vraag is nog niet beantwoord.

Opvallend is dat een aerosoleffect dat met roet samenhangt en in EEN klap een einde zou maken aan een discussie over geleidelijke klimaatverandering ontbreekt in de IPCC-rapporten. Dat is het fenomeen van de nucleaire winter, vernoemd naar de duisternis die de branden bij een kernoorlog veroorzaken.

### ***Wat is roet***

Roet ontstaat bij onvolledige verbranding van fossiele brandstoffen. Roet is zeer complex van aard. Elk roetdeeltje is opgebouwd uit een conglomeraat van kleinere kiemen. De absorptie van licht door een dergelijk deeltje is niet eenvoudig te berekenen omdat we de ruimtelijke structuur niet kunnen bepalen. Verder is het een onmogelijke zaak elk roetdeeltje op deze wijze te karakteriseren. In de praktijk wordt daarom niet in dergelijk detail afgedwaald, maar wordt de absorptie door alle deeltjes samen gemeten. Echter, door het verzamelen van het roet op een filter wordt de roetstructuur aangetast en verder wordt het roet ingebed in de vezels van het filter. De absorptie die we dan meten is niet representatief voor de echte absorptie en het verschil wordt op minstens een factor twee geschat. De absorptie van zonlicht door roetdeeltjes is minder afhankelijk van de grootte dan de lichtverstrooiingen.

Vaak wordt verondersteld, en dat suggereert figure 3 van de Summary for Policy makers van de IPCC-TAR ook, dat sulfaat- en koolstofaerosolen aparte deeltjes vormen. De vraag of dat zo is, of dat roet en sulfaat samen voorkomen in een en hetzelfde aerosoldeeltje, lijkt een probleem voor vakidioten, maar is wel degelijk van praktisch belang. Roetdeeltjes die ingesloten zijn in een sulfaatmantel absorberen meer licht, omdat het sulfaat als lens werkt en het licht op het roet focuseert. De absorptie kan daardoor wel tot een factor drie hoger zijn dan dat van puur roet en daarmee is ook verklaard waarom in de meest recente literatuur een hogere waarde dan de  $+0.2 \text{ Wm}^{-2}$  van IPCC voor de forcering door roet wordt berekend. De reden dat het roet in het sulfaat is opgenomen is goed te begrijpen. Sulfaat wordt niet als deeltje uitgestoten maar ontstaat in de lucht en condenseert op al bestaande aerosolen, zoals roetdeeltjes. Omdat de hoeveelheid sulfaat in de lucht veel groter dan die van roet verdringt het roetdeeltje na enige tijd in het

sulfaat. Het opwarmende effect van roet kan groter zijn dan dat van methaan. Dit is echter onzeker, wij zijn daarom gestart met een evaluatie van meetmethodes om de onzekerheid in de roetgetallen en de corresponderende absorptie te verkleinen. Daarvoor is contact met andere instituten in Europa die op dit terrein werken. Vanuit Duitsland zijn na herhaalde verzoeken onzerzijds de gegevens beschikbaar gesteld van vergelijkingsmetingen met verschillende methodes om roet te meten. Deze unieke gegevens worden gebruikt bij de evaluatie van de gegevens die voor de modevaluatie gebruikt gaan worden.

Er is een eerste overleg geweest met de emissiegroep van TNO-MEP naar een inventarisatie van de emissies van roet. De werkzaamheden aan de roetmissies worden medio januari 2002 gestart. Daarna volgt een modelrun voor het jaar 1995.

### *Twee opmerkingen*

- Zelfs als roet uit de lucht verdwijnt is het nog altijd actief als vervuiler en als opwarmer. Zo draagt het roet dat in de sneeuw is opgenomen er toe bij dat gletsjers door de toegenomen absorptie van zonlicht sneller afsmelten.
- Prof. Crutzen, Nobelprijswinnaar, benadrukt het belang van roet voor klimaatverandering. Onderzoek naar roet was een hoofdonderwerp in de petitie die hij in september opstelde voor het Europese parlement voor meer atmosfeeronderzoek in het 6<sup>de</sup> kaderprogramma van de EU. De petitie werd aangenomen. In de draft-versie van het programma, uit najaar 2001, kwamen aerosolen prominent voor, maar in het definitieve programma helaas niet meer.

## 2.5 Modelontwikkeling

### *2.5.1 Inleiding*

Hoofddoel van dit deel van de studie is het vaststellen van de concentratie in massa, chemische en fysische samenstelling van aerosolen in de troposfeer, en dus ook op grondniveau over Europa. Dit doel wordt bereikt door het ontwikkelen van een state-of-the-art atmosferisch chemisch transport model. Dit model legt de relatie tussen emissies van primaire aerosolen ( $PM_{10/2.5}$ ) en precursor emissies die leiden tot de secundaire aerosolen en optredende concentraties. Metingen van aerosolen op leefniveau, en metingen van de Aerosol Optical Depth (AOD) worden gebruikt om het model te toetsen, en zo nodig te verbeteren. Het op deze wijze gevalideerde modelsysteem kan vervolgens worden gebruikt om de bijdrage van de verschillende broncategorieën aan de concentratie niveaus te bepalen en om scenarioberekeningen uit te voeren. Door de modelresultaten en de metingen te integreren via data-assimilatie worden aerosolvelden over Europa verkregen die de basis vormen voor het bepalen van een aerosolklimatologie over Europa t.b.v. luchtkwaliteit en klimaat.

### *2.5.2 Modelverbeteringen*

#### *Model resolutie*

Het LOTOS-long term ozon simulatiemodel, ook geschikt voor aerosolen, is in 2001 operationeel gemaakt voor het rekenen op een rooster over Europa van  $0.25^\circ \times 0.5^\circ$  latitude/longitude (latlon). Het verticale domein is ca. 3.5 km, met 4 verticale lagen. Alle invoergegevens zijn nu ook op dit rooster beschikbaar. Tevens is verder gewerkt aan een zogenaamde LOTOS-zoom versie, in feite een vervanging van het reeds bestaande UAM-Urban airshed model. Deze LOTOS-zoom versie is direct koppelbaar met LOTOS, en zal als kleinste resolutie  $1 \times 1 \text{ km}^2$  hebben, en een verfijndere verticale resolutie. Doel van deze versie is een betere aansluiting bij de satelliet-data die een kleinste resolutie hebben van  $1 \times 1 \text{ km}^2$ , maar met name de mogelijkheid tot berekeningen van aerosolconcentraties over stedelijke gebieden.

### *Meteorologische invoer*

Meteorologische invoer is beschikbaar gekomen voor de jaren 1995 en 1997 en delen van 2001. Voor het jaar 1995 is verdere detaillering van wolken informatie ontvangen t.b.v. de omzettingberekeningen van SO<sub>2</sub> naar sulfaat (zie beneden).

### *Emissiedata invoer*

Medio 2001 is de nieuwe emissie-invoer gereed gekomen. De database voor de emissie van primair PM<sub>10</sub> en PM<sub>2.5</sub> is vervaardigd in het kader van het EMEP-CEPMEIP-project voor het basisjaar 1995. deze emissies zijn op de rooster resolutie 0.25<sup>0</sup>×0.5<sup>0</sup> latlon gebracht, met een onderscheid per grid in oppervlakte- en puntbronnen. Deze informatie is gebruikt om, voor zover mogelijk, de op CORINAIR data gebaseerde totale emissies van SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>, NMVOC, CH<sub>4</sub>, CO en NH<sub>3</sub> op het zelfde grid te brengen. Tevens zijn update factoren naar de jaren 1996-2001 bepaald (in relatie met een lopend UBA-project). Tenslotte zijn de tijdsfactoren van de broncategorieën in overeenstemming gebracht met het EU-project TROTREP. Een begin is gemaakt met het nagaan van de mogelijkheid om het percentage black carbon in de primaire PM<sub>2.5</sub> emissies te schatten.

### *Secundair anorganisch aërosol*

De routine om de oxidatie van SO<sub>2</sub> naar sulfaat in wolken te beschrijven is getest en ingebouwd in LOTOS. Hoewel de meteorologische invoer nu gedetailleerdere informatie omtrent de top en basis van de wolken bevat, is dit nog onvoldoende voor een volledige beschrijving van de oxidatie van SO<sub>2</sub> in wolken. Afgezien van het feit dat de informatie over wolkentop en -basis nog steeds incompleet is, is ook de liquid water content (de hoeveelheid water in de wolk) niet gegeven. Op de FU Berlin wordt hieraan momenteel gewerkt. De berekening met een 'constante' omzetting van SO<sub>2</sub> naar sulfaat is dus nog altijd een beter alternatief. Wanneer de additionele wolkeninformatie over 1995 beschikbaar komt zal met de volledige routine worden gerekend. De formatie van HNO<sub>3</sub> vindt deels op het oppervlak van aërosolen plaats en is dus afhankelijk van de aërosol concentratie. Dit proces is in LOTOS ingebracht -aan de hand van het gemodelleerde aërosol oppervlak onder aanname van een grootteverdeling en een reactie waarschijnlijkheid- en vervangt daarmee de constante omzetting in het CBM-IV mechanisme.

### *Organisch aërosol*

Voor een volledige modellering van aërosolen moet ook de berekening van het secundair organisch aërosol worden meegenomen. In het kader van de samenwerking met FORD-Aachen is de module SORGAM ontvangen. Om SORGAM (onderdeel van MADE, *Schell, 2000*) bij LOTOS aan te sluiten, is het aantal gasfase componenten in LOTOS met een achttal organische componenten uitgebreid. Deze componenten zijn in evenwicht met de aërosolfase, zodat voor elk van deze acht componenten twee extra componenten in de aërosol fase moesten worden toegevoegd. In totaal werden dus nog 16 extra aërosol componenten toegevoegd. Dat per toegevoegde gasfase component twee aërosolcomponenten moesten worden toegevoegd heeft te maken met het feit dat er binnen MADE met twee modes wordt gerekend (zie het kopje "Grootte verdelingen"). Deze factor twee geldt algemeen en dus ook voor sulfaat, nitraat en ammonium.

Wel moet worden opgemerkt dat deze uitbreiding van het model voor organische aërosolcomponenten onevenredig groot is ten opzichte van de anorganische (secundaire) componenten. In totaal werden 24 componenten toegevoegd. Daar komt nog bij dat de organische bijdrage aan het secundair aërosol relatief klein is, zie de Sectie "Model resultaten en validatie".

Voor een tweetal organische componenten moesten emissies worden gemodelleerd, te weten limoneen en  $\alpha$ -pineen. Dit is gedaan volgens de formuleringen in *Schell, 2000*, uitgaande van het landgebruik en temperatuur.

### *Grootte verdelingen*

Met het gekoppelde systeem MADE/SORGAM kunnen via de modale aanpak tevens grootteverdelingen worden berekend. Het systeem bestaat uit 3 modes: de nucleatie-, de accumulatie en de grove mode. Deze laatste wordt alleen gebruikt voor het primair aërosol, zodat er bij secundaire componenten steeds met twee modes gerekend wordt.

### *Droge depositie*

De droge depositie in LOTOS wordt berekend via de atmosferische weerstand  $R_a$ , viscous sublayer weerstand  $R_b$  en oppervlakte weerstand  $R_c$ . De oorspronkelijk in LOTOS gebruikte tijdsafhankelijke  $R_c$  waarden per land-use categorie zijn vervangen door onmin berekeningen met behulp van de module DEPAC. In deze benadering is de  $R_c$  afhankelijk van een aantal meteorologische parameters, waaronder de globale straling. Daarnaast wordt rekening gehouden met eventuele sneeuwbedekking en natheid van het oppervlak. Tevens is de verhouding tussen  $SO_2$  en  $NH_3$  van belang.

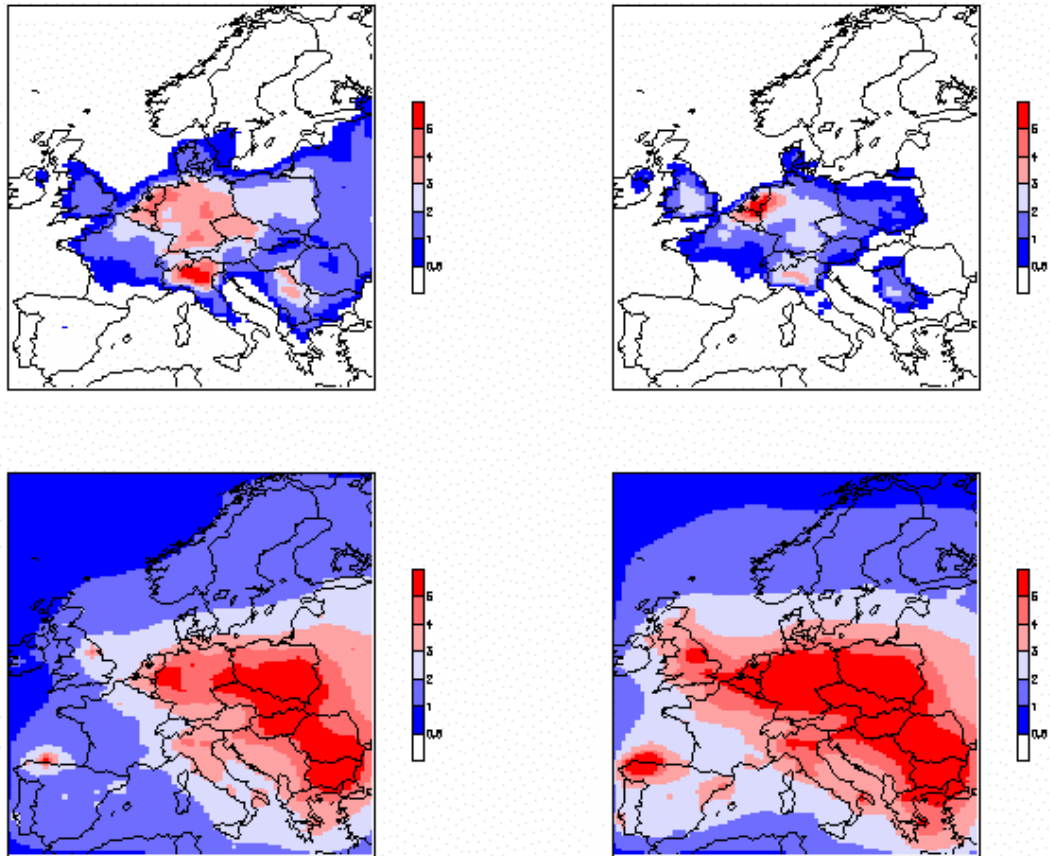
### *Data-assimilatie*

Data-assimilatie is een methode waarbij informatie van waarnemingen en modelberekeningen op een consistente wijze worden gecombineerd. Op deze wijze ontstaan concentratie velden die een zo compleet mogelijk beeld geven van, in dit geval, de aërosolconcentraties over Europa. De in dit project gebruikte methode is extended Kalman Filtering. Bepaalde parameters, externe parameters zoals b.v. emissies of interne parameters zoals b.v. fotodissociatie krijgen een bepaalde ruis, waarna het modelsysteem het verschil tussen berekende en gemeten concentraties zal verkleinen onder gebruikmaking van de beschikbare ruimte die door de ruis wordt gegeven. Op deze wijze wordt ook inzicht verkregen in de betrouwbaarheid van het model, en de betrouwbaarheid van de gebruikte externe en interne parameters. De data-assimilatie methode is verder ontwikkeld zodanig dat zowel uurlijkse aërosolen waarnemingen als AOD-waarnemingen, 1 maal per 3 dagen onder wolken vrije condities, tegelijkertijd in het modelsysteem kunnen worden meegenomen

### *2.5.3 Model resultaten en validatie*

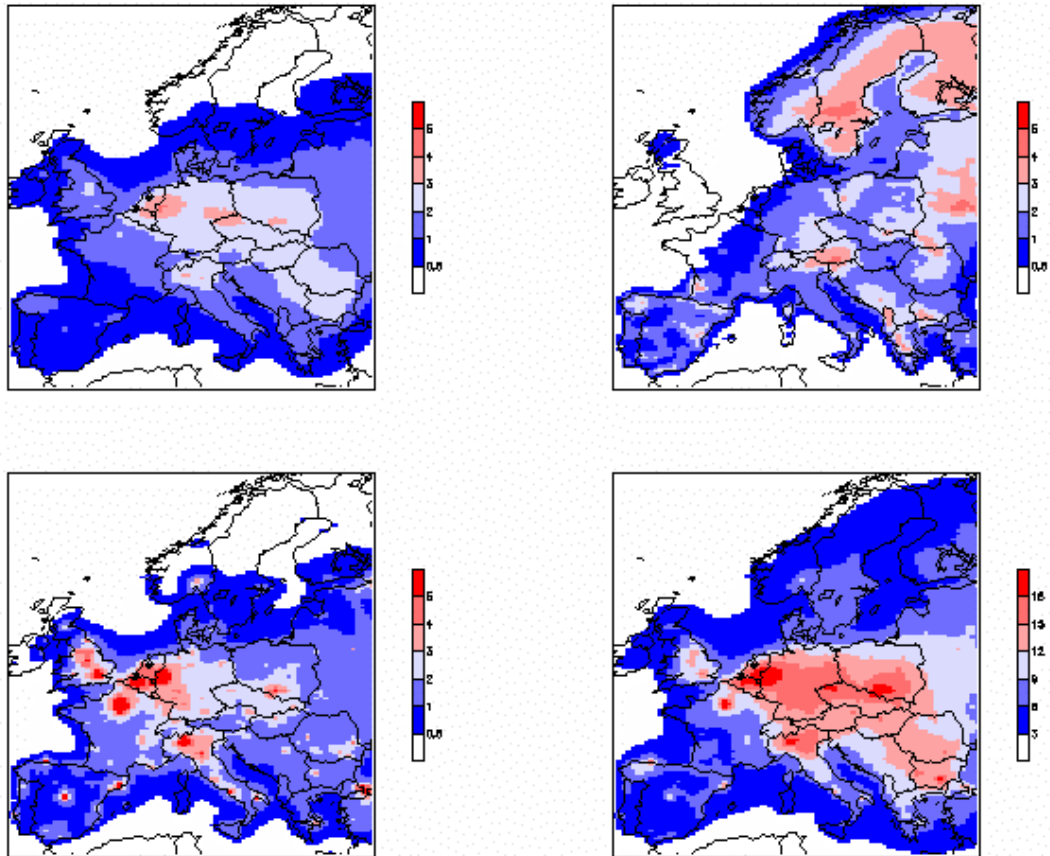
#### *De berekening voor 1995*

LOTOS is toegepast om de anorganische, organische en primaire aërosolen te berekenen voor het gehele jaar 1995, onder gebruikmaking van de meest recente modelversie en modelinvoer. In figuur 4 zijn voor de winter en de zomer van 1995 de velden voor sulfaat en nitraat weergegeven. Jaargemiddelde velden voor ammonium, primair  $PM_{2.5}$  en  $PM_{10}$ , en biogeen secundair organisch aërosol zijn in figuur 5 weergegeven.



Figuur 4 Gemiddelde berekende concentraties ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) van nitraat in de winter (linksboven), nitraat in de zomer (rechtsboven), sulfaat in de winter (linksonder) en sulfaat in de zomer (rechtsonder).

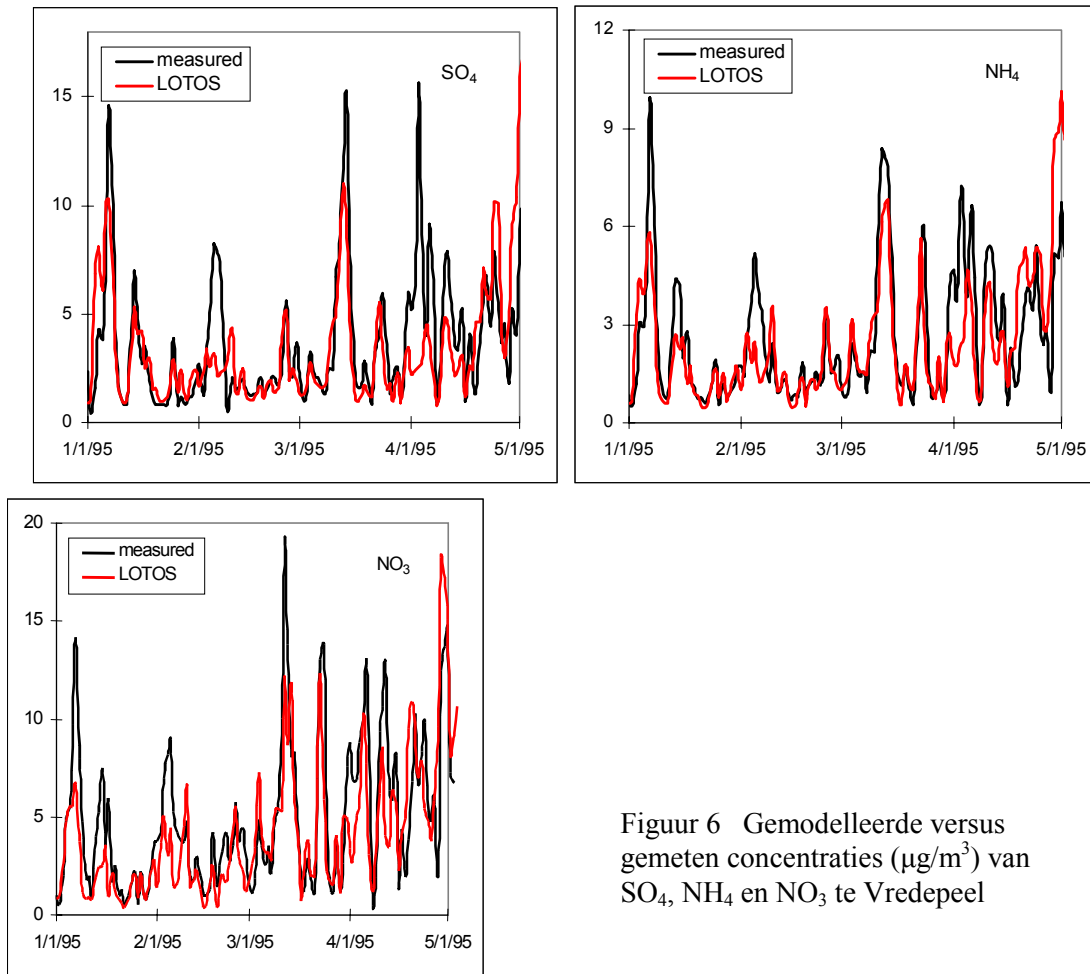




Figuur 5 Berekende jaargemiddelde concentraties ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) in 1995 van ammonium (linksboven), biogeen secundair organisch aërosol (rechtsboven), primair  $\text{PM}_{2.5}$  (linksonder) en totaal  $\text{PM}_{2.5}$  (rechtsonder).

Uit voorgaande runs over de zomer van 1994 is gebleken dat de gevoeligheid van de resultaten voor nitraat sterk afhangen van de gemodelleerde ammoniak concentraties. Onderzocht is welke mechanismen belangrijk zijn voor de formatie van  $\text{HNO}_3$ . Uit de modelresultaten bleek dat in de zomer toch een substantieel deel van het  $\text{HNO}_3$  gevormd wordt door nachtelijke reacties op het aërosol oppervlak. Gedurende de wintermaanden zijn deze reacties dominant vanwege de geringe bijdrage van fotochemie.

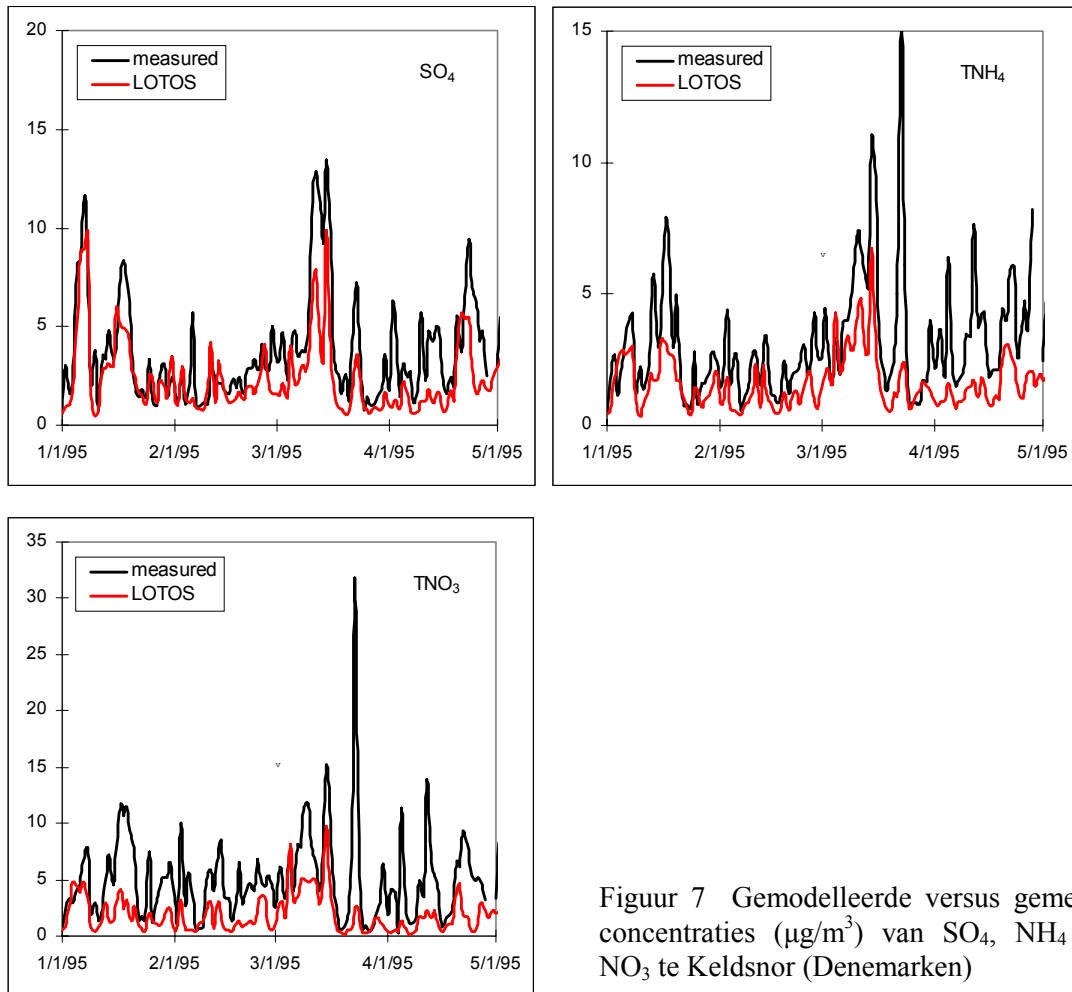
## Model validatie



Figuur 6 Gemodelleerde versus gemeten concentraties ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) van SO<sub>4</sub>, NH<sub>4</sub> en NO<sub>3</sub> te Vredepeel

De eerste validatie van het LOTOS-model voor 1995 is uitgevoerd voor berekeningen van sulfaat, nitraat en ammonium. Dit betreft uurlijkse waarden op leefniveau voor de 0.25 x 0.5 latlon roostergrootte. Bij de validatie van nitraataërosol is gebruik gemaakt van de resultaten van de studie naar de betrouwbaarheid van deze waarnemingen (Schaap, 2002). De daaruit geanalyseerde nitraataërosol waarnemingen zijn in de validatie gebruikt. In de figuren 6 en 7 zijn de resultaten weergegeven van een "continentaal" station en een kuststation, te weten Vredepeel en Keldsnor.

Het resultaten voor Vredepeel en Keldsnor zijn representatief voor continentale en kuststations. Op beide type stations is de overeenkomst tussen gemeten en berekende sulfaatconcentratie goed. In iets mindere mate geldt dit ook voor de (totale) ammonium concentraties. De nitraatconcentraties worden in de kuststations stelselmatig onderschat, terwijl op de continentale sites de gemiddelde niveaus redelijk goed met metingen lijken overeen te komen. De oorzaak van de lage gemodelleerde nitraat concentraties in de kuststations is niet geheel duidelijk. Mogelijk is dit is een gevolg van de te lage berekende ammoniak concentraties in die gebieden, wellicht als gevolg van een artefact in de NH<sub>3</sub> emissie data base. Een andere reden kan het ontbreken van zeezout (natrium chloride, NaCl) in LOTOS zijn. Salpeterzuur kan reageren met zeezout waarbij natrium nitraat wordt gevormd. Wanneer de gemeten nitraat concentratie voor een groot deel uit natrium nitraat bestaat kan LOTOS dit dus niet representeren.



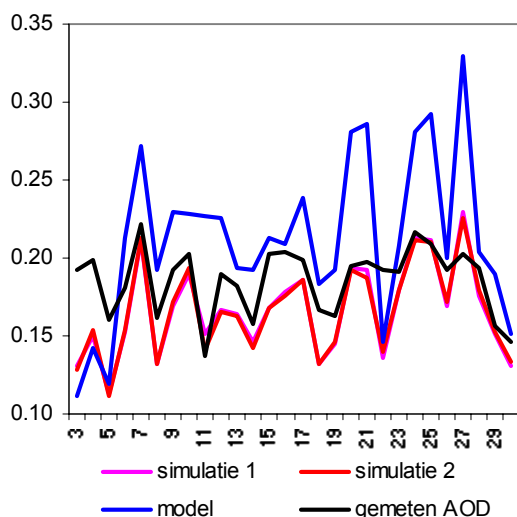
Figuur 7 Gemodelleerde versus gemeten concentraties ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) van  $\text{SO}_4$ ,  $\text{NH}_4$  en  $\text{NO}_3$  te Keldsnor (Denemarken)

Eind 2001 is in het kader van EUROTRAC-GLOREAM een modelvergelijking studie gestart met als doel het vergelijken van modelresultaten voor aërosolen over 1995. Deelnemende modellen zijn naast LOTOS het model REM3/Callgrid, EURAD, DEM en EUROS. In het kader van het EU-CAFE programma zal een vergelijking plaatsvinden van urbane modellen voor ozon en  $\text{PM}_{10}/\text{PM}_{2.5}$  en hun respons op scenarioberekeningen (City-Delta intercomparison)

#### *Data-assimilatie*

Een tweetal data assimilatie runs is gedaan. In simulatie 1 werden satellietvelden van de Aerosol Optical Depth (zie *Robles-Gonzalez et al. 2000* en *Builtjes et al. 2001*), grondwaarnemingen van sulfaat, nitraat en ammonium en grondwaarnemingen van ozon geassimileerd. Omdat secundaire aërosolformatie en ozonvorming sterk gekoppeld zijn via de precursors, zijn waarnemingen van zowel aërosolen als ozon tegelijkertijd geassimileerd. De ruisparameters (dwz de bewegingsvrijheid van het model) waarmee werd gerekend zijn de emissies van  $\text{NO}_x$ ,  $\text{SO}_x$ , VOC en  $\text{NH}_3$ . Het doel van de data assimilatie exercitie was te onderzoeken of het assimileren van de ene grootheid niet ten koste gaat van de andere of dat het assimileren van beide grootheden voor beiden voordeel oplevert. Met voordeel is dan bedoeld dat de geassimileerde concentratievelden dichter bij de waarnemingen komen.

In simulatie 2 werden de ozon waarnemingen niet geassimileerd. Tevens werd een model run uitgevoerd (dus zonder assimilatie). Voor details verwijzen we naar *van Loon et al., 2001* en *van Loon, 2001*.



Figuur 8. Gemiddelde AOD waarden per dag van 3 t/m 30 augustus 1997. De middeling is over alle pixels in de tracks van de betreffende dag.

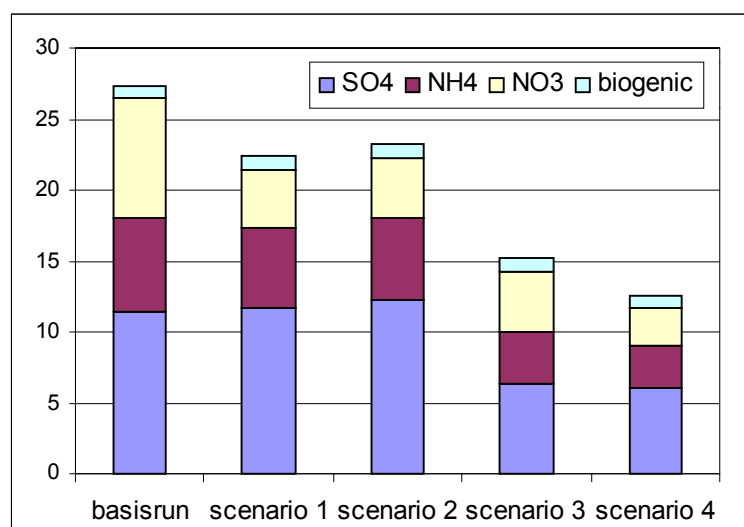
Figuur 8 toont de gemiddelde AOD waarden per dag (gemiddeld over de tracks van de betreffende dag) voor de gemeten waarden, de model run en de simulaties 1 en 2. Duidelijk is te zien dat de resultaten van de simulaties 1 en 2 dicht bij de gemeten waarden liggen dan die van het model zonder data assimilatie. Ook wordt duidelijk dat het verschil tussen simulatie 1 en 2 voor de gemodelleerde AOD waarden niet significant is. Voor ozon bleek een sterke verbetering in de mate van overeenkomst tussen gemeten en berekende waarden op te treden in simulatie 1. De gesimuleerde ozon concentraties in simulatie 2 waren nagenoeg gelijk aan die van het model zonder data assimilatie.

#### *Scenario studies*

Het LOTOS-model is inzetbaar voor het berekenen van de concentratieniveaus als gevolg van veranderingen in emissies. Een eerste berekening is uitgevoerd om te onderzoeken in hoeverre ozon en aerosolen in dergelijke berekeningen gezamenlijk dienen te worden meegenomen. voor de eerste 2 weken van augustus 1997 zijn naast een basisrun de volgende scenario berekeningen uitgevoerd:

1. 50 % reductie van de NO<sub>x</sub> emissies
2. zelfde als 1, maar tevens 50% reductie van de VOC emissies
3. zelfde als 2, maar tevens 50% reductie van de SO<sub>x</sub> emissies
4. zelfde als 3, maar tevens 50% reductie van de NH<sub>3</sub> emissies.

Een eerste analyse van de resultaten laat zien dat bij emissiescenario berekeningen gericht op ozon rekening gehouden moet worden met aerosolen. Dit wordt fraai geïllustreerd door fig. 9.



Figuur 9 Berekende gemiddelde secundair aërosol concentraties ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) en de samenstelling op de locatie Vredepeel voor de basisrun en de 4 scenario runs.

Ondanks de 50% reductie van de VOC ten opzichte van scenario 1 stijgt in scenario 2 de totale secundaire aërosol concentratie (t.o.v. scenario 1). Dit resultaat is een indicatie dat emissiescenario's gericht op vermindering van troposferisch ozon een tegengesteld effect kunnen hebben op de PM concentraties. Omgekeerd lijkt dit niet het geval te zijn. Tevens zijn de basisrun en de scenario's 1 t/m 3 uitgevoerd zonder aërosolberekeningen in het model. Op ozon blijkt dit vrijwel geen effect te hebben.

Bovenstaande scenario's zijn uitgevoerd ten behoeve van de in 2001 gehouden LOOP-EMEP workshop (van Loon en Bultjes, 2001).

#### *Werk in 2002*

Het uiteindelijke doel is om met LOTOS een beschrijving te kunnen geven van de totale  $\text{PM}_{2.5}/\text{PM}_{10}$  concentraties alsmede relevante componenten binnen PM te kunnen onderscheiden. In het laatste jaar van dit project zullen dus de 'gaten' moeten worden gedicht. Dit betreft dan een aantal nu nog missende broncategorieën en de verdere speciering. Verder zal een uitgebreide modelvalidatie plaatsvinden (hier is in 2001 al aan begonnen).

In 2002 wordt gewerkt aan:

- Uitbreiden LOTOS met zeezout en opwaaiend stof
- Verdere validatie van LOTOS voor 1995, inclusief de model-intercomparison,
- Data-assimilatie en het gebruik van AOD-waarden
- Modelleren van black carbon en validatie daarvan
- Geneste modellering over urbane gebieden o.a. in het kader van het City-Delta project
- Gebruik LOTOS voor scenarioberekeningen
- Papers en eindrapportage

Bij de modellering van urbane gebieden is het noodzakelijk dat LOTOS op een fijner grid kan rekenen (maar vanwege beperking van de rekentijd dan wel op een beperkter geografisch gebied). TNO heeft eigen middelen gereserveerd om hier in de loop van 2002 aan te kunnen werken.

#### 2.5.4 Referenties

- Builtjes, P.J.H. et al., 2001, Aerosol Air Quality Satellite Data, eindrapport van BCRS project 4.1/AP-06.
- Loon, M. van, P.J.H. Builtjes en G. de Leeuw "PM 2.5 concentrations over Europe-Combining satellite data and modelling" 25th ITM on air pollution modelling and its application. Louvain-la-Neuve, Belgium, october 2001.
- Loon, M. van, "Data assimilation of ozone and aerosols" in de proceedings van de 5e GLOREAM workshop. [http://people.web.psi.ch/keller\\_j/GLOREAM/WS2001/Final/VanLoon.pdf](http://people.web.psi.ch/keller_j/GLOREAM/WS2001/Final/VanLoon.pdf)
- Loon, M. van, en P.J.H. Builtjes "Scenario's for ozone and aerosols" EMEP-LOOP workshop, Gernzersee, Switserland, december 2001.
- Robles Gonzalez C., J. P. Veefkind, and G. de Leeuw, 2000, "Aerosol optical depth over Europe in August 1997 derived from ATSR-2 data", Geophysical Research Letters, 27 (No 7): 955.
- Schaap, M., Mueller, K., ten Brink, H.M. (2002), "Constructing the European aerosol nitrate concentration field from quality analysed data", Atmos. Environ, 36 (8), 1323-1335.
- Schell, B. "Die Behandlung sekundärer organischer Aerosole in einem komplexen Chemie-Transport-Modell". Proefschrift Universiteit van Keulen, 2000.

## 2.6 Satellietwaarnemingen

Er is in Europa geen netwerk van stations waarin continu de samenstelling of grootte van aërosol wordt gemeten. Vanuit satellieten kan het gehele veld in een keer worden waargenomen. Dit gebeurt via hetzelfde fenomeen als de koeling van het klimaat, n.l. doordat aërosolen zonlicht weerkaatsen. In speciale satellieten wordt het gereflecteerde zonlicht gemeten. daaruit wordt afgeleid hoeveel licht er door aërosolen is weerkaatst, waaruit weer een schatting van de hoeveelheid aërosolen wordt gemaakt. De reflectie wordt hierbij vertaald naar een verticale aërosollast die als Aërosol Optical Depth (AOD) bekend staat en die ook via zonnemetingen vanaf de grond (met grote nauwkeurigheid) bepaald wordt. In dit geval voor een paar locaties in Europa, waaronder de Bilt. Deze satelliet-"retrieval", is een specialiteit van FEL-TNO waarmee nu wordt samengewerkt.

Met het ATSR-instrument op de Eurosat-satelliet kan een ruimtelijk oplossend vermogen van ca. 1x1 km<sup>2</sup> worden gehaald. De zeer zonnige maand augustus 1997 werd en wordt als testmaand gebruikt. De afgeleide AOD-velden werden gebruikt worden voor de validatie van het LOTOS-model. Maar er zijn dan nog wel een aantal aannames noodzakelijk. Het LOTOS-model, stand 1-1-2001, berekent sulfaat, nitraat en ammonium tot een hoogte van ca. 2.5 km, wat volgens andere gegevens zie beneden meestal het geval is. Vervolgens dienen de berekende concentraties van ammoniumsulfaat en ammoniumnitraat te worden omgezet naar AOD. Hiervoor is informatie noodzakelijk van de extinctiecoëfficiënt en de invloed van de relatieve vochtigheid op de deeltjesgrootte. Het is duidelijk dat de uit sulfaat + nitraat berekende AOD lager zal zijn dan de met de satelliet gemeten AOD, immers de organische aërosolen en primaire aërosolen ontbreken nog in de huidige modelversie.

Een volledige model-validatie m.b.v. AOD is pas mogelijk indien het LOTOS model ook het organisch aërosol berekent, en mogelijk primair aërosol, hoewel de bijdrage daarvan aan de weerkaatsing in west- en midden-Europa gering is. Hierop wordt gewacht voor het doen van een nieuwe analyse. Intussen zijn de maanden gekozen waarvoor de nieuwe analyse wordt gedaan. Het gaat om twee maanden in 1999 en EEN in 2000. Deze keuze is mede gemaakt op basis van gegevens in Nederland over zonnenschijn resp. bewolkingsgraad en gedetailleerde aërosolkarakterisering in het project CLOSAeR in het Nationale klimaatonderzoekprogramma NOP-II .

Er is een rapport over eerder werk gereed gekomen waarin de methode om uit de satellietgegevens de grondconcentratie van aërosolen af te leiden wordt besproken [Builtjes et al, 2001; referenties bij sectie 2.5].

Opmerking: EZ draagt het leeuwendeel bij aan het Nederlandse satellietprogramma. Gelet op de expertise die via het huidige onderzoek wordt opgedaan zou ECN met partners ook een geschikt panel vormen om nut en kwaliteit van dat onderzoek te analyseren. Nu gebeurt dit geheel vrijblijvend in jurykamers van NWO en Stichting Ruimte Onderzoek Nederland (SRON).

## 2.7 IPCC en Eurotrac

ECN werd gevraagd voor de government-review op eerder genoemd Third Assessment Report van IPCC. Het betreffende rapport van WG1, over het klimaatsysteem, bevat veertien hoofdstukken van gemiddeld 100 pagina's. De definitieve versie is in de herfst van 2001 uitgekomen. De government-review wordt centraal per land uitgevoerd en ECN was gevraagd hoofdstuk 5 over aërosolen te reviewen en verder in andere hoofdstukken de passages over aërosolen te screenen. Ook moest de Summary for Policy Makers en de Technical Summary worden gescreend en becommentarieerd. Verder is ook het syntheserapport dat een summary vormt van de drie deelrapporten gereviewd.

Conclusies van TAR en eigen review: ook in deze tweede versie van de "TAR" wordt ECN in twee hoofdstukken vermeld als de enige die betrouwbare gegevens heeft over het belang van nitraat voor de stralingsforcering. Er wordt gesteld dat er te weinig verder bekend is om nu al een getal te geven voor de mondiale forcing door nitraat. Voor koolstof, waarvan we boven aangaven dat het nog niet goed te meten valt, durft men dit wel. Het wordt zelfs nog opgesplitst in vier deelgetallen, te weten organisch en elementair koolstof, te onderscheiden naar bronnen: "biomass-burning" en "fossil-fuel". De gemelde betrouwbaarheid van de getallen lijken ons aan de (te) hoge kant.

De scenario's voor aërosolen in deze eeuw worden uitgebreid behandeld. Het blijkt dat nitraat belangrijk zal toenemen, terwijl sulfaat zal afnemen. Toch wordt dit effect niet expliciet vermeld als nitraatfenomeen maar als onderdeel van de sulfaatscenario's. De TAR is intussen in zijn geheel goedgekeurd en de Summary for Policy Makers is op het web beschikbaar. De belangrijkste conclusie over de toekomst van het broeikas effect in de lopende eeuw luidt vertaald (origineel op pagina 8):

***"Er is een grotere range in de verwachte temperatuurstijging over de eenentwintigste eeuw dan in het eerdere IPCC-rapport; dit komt door andere scenario's voor het sulfaataërosol"***

Opmerkelijk is dat in de summary alleen sulfaat wordt genoemd als aërosolcomponent terwijl uit de berekeningen blijkt dat nitraat de rol van sulfaat gaat overnemen. In de draft van het synthesis-report staat dit opnieuw niet vermeld; er is door ons als reviewer (weer) op gewezen.

Hierboven werd veelvuldig "Eurotrac" genoemd. Dit is programma waarin het fundamentele atmosfeeronderzoek in Europa is ondergebracht. Het is onderdeel van het Europese programma EUREKA. ECN coördineert het aërosolprogramma daarin, waaraan meer dan dertig instituten deelnemen. Uit dien hoofde had en heeft ECN de hoofdverantwoordelijkheid voor de genoemde vergelijkingscampagne bij Leipzig. In de verslagperiode is het jaarverslag 2000 opgesteld, waarvoor de deelnemende instituten hun individuele rapporten leveren. De coördinator maakt daarvan een samenvatting.

Onze partner in dit project (TNO-MEP) coördineert het modelprogramma en ons samenwerkingsteam is daarmee leidinggevend in Europa op het gecombineerde gebied van modellering / aërosolen. Er zijn ook twee instituten die hun jaarrapportage naar ons beider subprogramma's sturen.

## 2.8 Monitoring van niet-CO<sub>2</sub> broeikasgassen.

In de schattingen van de emissies van niet-CO<sub>2</sub> broeikasgassen (methaan, lachgas, fluorkoolwaterstoffen, zwavelhexafluoride) bestaan nog steeds grote onzekerheden. Voor methaan en lachgas wordt de onzekerheid in de totale emissie per land geschat op een grootte van orde van 30-50% voor landen met een relatief goed emissieregistratie als Nederland en Duitsland.

Wereldwijd zijn de niet-CO<sub>2</sub> broeikasgassen verantwoordelijk voor 36% van het broeikaseffect; voor de Nederlandse emissies bedraagt dit iets minder, namelijk 25%. Toch is een aanzienlijk deel van de emissiereductiedoelstellingen op klimaatgebied te behalen door het reduceren van de emissies van deze gassen. De reden is dat reducties van emissies van niet-CO<sub>2</sub> broeikasgassen plaats vinden tegen lagere kosten per vermeden equivalent-ton CO<sub>2</sub> dan bij CO<sub>2</sub> zelf. Bovendien kunnen de emissiereducties van de niet-CO<sub>2</sub> gassen reeds op korte termijn effectief worden, hetgeen enige ruimte laat voor meer structurele en onvermijdelijke, maar meer ingrijpende verlagingen van de CO<sub>2</sub> emissies op langere termijn.

Om de onzekerheid in de emissieschattingen te verlagen en het monitoren van de emissieverlagingen van niet-CO<sub>2</sub> broeikasgassen, zoals toegezegd in de reeds gesloten verdragen, in de toekomst mogelijk te maken, is een onafhankelijke validatie van die emissie noodzakelijk. Een mogelijkheid daartoe wordt geboden door het koppelen van concentratiemetingen aan transportmodellen. Dit stelt echter hoge eisen aan zowel de metingen als de gebruikte computermodellen.

De metingen dienen plaats te vinden met een hoge frequentie in een gebied met voldoende signaal van de grote bronnen op het continent. De huidige netwerken waarin niet-CO<sub>2</sub> gassen gemeten worden zijn echter gericht op juist achtergrondmetingen bij lage frequenties. De metingen van ECN op de mast in Cabauw voldoen wel aan de voorwaarden van hoge precisie, hoge frequentie en hoog signaal. Door de meting op grote hoogte worden de metingen niet sterk beïnvloed door de zeer lokale bronnen binnen 50 km rond de mast maar wel voornamelijk door bronnen binnen een straal van ongeveer 500-1000 km rond de meetmast, hetgeen overeenkomt met ongeveer de gewenste ruimtelijke dekking.

In een eerdere Europese studie is reeds aangetoond dat een goed potentieel bestaat voor de combinatie van metingen met modellen. Recent is een haalbaarheidsstudie verricht door TNO/ECN om dit verder te onderbouwen en een monsternamestrategie en een modelleerstrategie te ontwikkelen. Uit deze studie blijkt dat met een netwerk van enkele Europese stations en een meetreeks van minstens enkele jaren en een verbetering in de gebruikte modellen de genoemde doelstellingen haalbaar zijn.

Vooruitlopend en ter ondersteuning van de opbouw van een dergelijk netwerk wordt nu in Cabauw reeds gewerkt aan de opbouw van de noodzakelijke langdurige meetreeks. Met de data van een station is ook, zij het voor een beperkter gebied een schatting van de emissies te verkrijgen. Doordat in Cabauw ook de verticale gradiënt van methaan en kooldioxide bepaald wordt, zal het mogelijk zijn om ook het een en ander over de meer lokale bronnen te vertellen door combinatie met kleinschaligere modellen.

### *Voortgang in de verslagperiode*

De hoge precisie GC metingen van methaan en lachgas te Cabauw verlopen redelijk voorspoedig.

Een storing in de elektronica van de GC is verholpen.

Het probleem met de gradiënt gegevens van lachgas is geïdentificeerd. Ondanks het drogen van de lucht bij de inlaat tot een dauwpunt van -15 graden Celsius is nog zoveel water in de monsters aanwezig dat de detector voor lachgas hierdoor een kleine offset (3%) gaat vertonen. Hiervoor kan gecorrigeerd worden. De verticale gradiënt in de concentratie van lachgas is hierdoor echter niet meer met voldoende nauwkeurigheid vast te stellen, alleen de verticaal gemiddelde concentratie is nu nog te gebruiken. Aangezien van de andere broeikasgassen, kooldioxide en methaan, wel goed bruikbare verticale gradiënten gemeten worden is dit geen



groot probleem.

Later in het jaar verliepen de CH<sub>4</sub> en N<sub>2</sub>O (en CO<sub>2</sub>) profielmetingen uitstekend met een tijdsdekking van meer dan 95%. De waterstofgenerator te Cabauw is vervangen door een nieuwe wegens einde van de technische levensduur.

Ook was een reparatie aan de PC die de GC bestuurt, inclusief automatische gegevensverwerking, noodzakelijk.

De trajectoriemodellen FLEXTRA en FLEXPART zijn nu operationeel in opnieuw verbeterde versies (betreft convectieschema, menglaag onder stabiele omstandigheden). Verder zijn de gedetailleerde berekeningen van menglaaghoogten uit de ECMWF gegevens nu aangepast met een verbeterde parametrisatie voor de onstabiele atmosfeer. Meteogegevens voor de periode maart 2000 tot september 2001 zijn opgehaald bij ECMWF en op basis van deze gegevens zijn voor deze periode de terugwaartse trajectorien voor Cabauw met bijbehorende onzekerheidsanalyse berekend. Na samenvoegen van deze trajectoriegegevens met berekende menglaaghoogten volgens de eerder ontwikkelde module kunnen de Cabauw metingen voor CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O (en CO<sub>2</sub>) geëvalueerd worden met het COMET model.

Van TNO is de definitieve versie van de methaan emissiedatabase METDAT ontvangen, een eindresultaat van het NOP II methaan project.

## 2.9 Aërosolen en gezondheid

Inademen van teveel aërosolen is schadelijk: 6% van de vroegtijdige sterfgevallen zijn vermoedelijk te wijten aan "fijn"stof. (Zo worden de aërosolen in de gezondheidsleer genoemd). Door de EU zijn recent normen vastgesteld voor de maximale massa inadembare stof, dat bekend is in de regelgeving als "Particulate Matter", vaak afgekort tot PM. Een groot deel van deze inadembare fractie zijn juist die aërosolen die ook het sterkst de stralingsbalans beïnvloeden. Maatregelen die in het kader van de PM-kwestie genomen worden hebben derhalve invloed op het klimaatteffect van de aërosolen.

In 2000 jaar is het nationaal aanvullend fijn-stof onderzoeksprogramma op gang gekomen dat door VROM wordt gefinancierd. Belangrijk voor het onderhavig project is dat er metingen te Cabauw uitgevoerd gaan worden om de herkomst van stof / aërosolen te bepalen. Dit betekent uitbreiding van de metingen die voorzien waren binnen het huidige project te Cabauw. Ook hier speelt, evenals bij de broeikasgassen, de nauwkeurigheid die gehaald zal moeten worden een belangrijke rol. De metingen zijn in 2001 van start gaan.

Er is momenteel een discussie of het totaal aan deeltjes schadelijk is dan wel bepaalde componenten of dat het gaat om de aantallen. Verder zijn er aanwijzingen dat het oppervlak van belang kan zijn omdat daaraan metalen gehecht zijn die allergische reacties kunnen veroorzaken als ze in contact komen met longweefsel. Kortom, er is nog veel onduidelijk. Echter, het meest duidelijke raakpunt is roet. Het is een schadelijke stof waarvan in de arbeidshygiëne is aangetoond dat het kankerverwekkend is, of in elk geval direct geassocieerd moet zijn met carcinogene stoffen. Er bestaat sinds vijf jaar een norm voor de maximum concentratie roet in de buitenlucht in Duitsland. Het blijkt dat deze vooral, of eigenlijk alleen in steden wordt benaderd en overschreden. Deze roetregelgeving is alleen in Duitsland geldig maar ze wordt in Californië wel zo serieus genomen dat het daar heeft geleid tot zeer strikte normen aan de roetuitstoot door dieselverkeer.

Zoals boven gemeld, is roet een echte broeikascomponent met een sterk opwarmend karakter. Met maatregelen zoals in Duitsland en Californië wordt de uitstoot sterk beperkt en zal daarmee ook de concentratie roet gaan afnemen en daarmee de opwarming. Dit is dan een op korte termijn oplossing in de bestrijding van het broeikas effect. Het lijkt ook het beste scenario bij de bestrijding van "fijn stof" in ontwikkelingslanden, waar roet niet alleen door verkeer wordt geproduceerd maar ook bij verbranding van biomassa vrij komt. Dit lijkt een veel betere optie dan bestrijding van verzurende aërosolcomponenten, met name sulfaat die door de VS wordt geadviseerd. Deze zijn voor een aantal ontwikkelingslanden geen probleem vanwege de grote basische buffercapaciteit van de grond. Het levert ook geen soelaas voor de

gezondheidseffecten omdat deze vermoedelijk niet door deze stoffen worden of kunnen worden veroorzaakt. Dit is momenteel een punt van felle discussie tussen de experts in de VS en die in Europa, en dan met name die in Nederland.

In April 2002 is een eerste workshop georganiseerd over de rol luchtverontreiniging speelt in de klimaatverandering, waarbij dit punt aan de orde kwam. Daar bleek dat van de luchtverontreinigende componenten alleen aerosolen een merkbaar effect hebben op zowel gezondheid als klimaat. Ozon heeft dat in mindere mate omdat bestrijding van lokaal ozon geen vermindering van de totale globale hoeveelheid hoeft op te leveren. In onze eindrapportage van dit project zal hieraan uitgebreid aandacht worden besteed.

Opmerking: op de workshop kwam een ander negatief kenmerk van roet, n.l. als vervuiler niet aan de orde. Kalkstenen gebouwen en marmeren monumenten in steden zijn vaak inktzwart door het neergeslagen roet. Dat roet zit er zeer vast op en is alleen te verwijderen met een intensieve schoonmaak die veel geld kost. Ook vervuiling van zonnecollectoren door roet is een probleem.

### 3. PUBLICATIES EN PRESENTATIES

N. Streit, E. Weingartner, S. Nyeki, U. Baltensperger, R. van Dingenen, J.-P. Putaud, A. Even, H. ten Brink, A. Blatter, A. Neftel, and H. W. Gäggeler

Aerosol characterization during summer smog events in an urban area (Milan Italy)  
Resubmitted after reviewing to J. Geophys. Res.

H.M. ten Brink

Aerosols, a matter of cooling and warming

*Change* **59**, 1-4

A. van Lammeren, A. Feijt, H. ten Brink, H. Russchenberg, A Apituley

The role of clouds, aerosols and radiation in our climate system

-Clouds and Radiation Project (CLARA) contributes to the puzzle-

*Change* **59**, 5-7

R. Van Dorland, H.M. ten Brink and R. Guicherit

Global energy balance and radiative forcing

*Ch. 3 in:*

*THE CLIMATE SYSTEM* -Contribution of the Dutch National Research Programme on Global Air Pollution and Climate Change-

J. Berdowski and R. Guicherit eds.

J. Slanina, H.M. ten Brink, R.P. Otjes, A. Even, P. Jongejan, A. Khlystov, A. Waijers-Ijpelaan, M. Hu, Y. Lu

Continuous analysis of nitrate and ammonium in aerosols by the Steam Jet Aerosol Collector (SJAC): Extension and Validation of the Methodology.

*Atmos. Environ.* 35, 2319-2300.

Heidrun Schmid, Lothar Laskus, Hans Jürgen Abraham, Urs Baltensperger, Vincent Lavanchy, Mirko Bizjak, Peter Burba, Helene Cachier, Dale Crow, Judith Chow, Thomas Gnauk, Arja Even, H. M. ten Brink, Klaus-Peter Giesen, Regina Hitzenberger, Christoph Hueglin, Willy Maenhaut, Casimiro Pio, Abel Carvalho, Jean-Philippe Putaud, Desiree Toom-Sauntry and Hans Puxbaum

Results of the "carbon conference" international aerosol carbon round robin test stage I,

*Atmos. Environ.* 35, 2111-2121.

A. Khlystov, G.P.A. Kos, H.M. ten Brink (corresp. author), T. Tuch, C. Roth, W. Kreyling

Comparability of three spectrometers for monitoring urban aerosol

*Atmos. Environ.* 35, 2045-2051.

H. M. ten Brink, A. Khlystov, G. Kos, T. Tuch, C. Roth, W. Kreyling

A high-flow humidograph for testing the water uptake by ambient aerosol

*Atmos. Environ.* 34, 4291-4300.

Aadu Mirme, Wolfgang G. Kreyling, Andrey Khlystov, Harry ten Brink, Juhani Ruuskanen, Thomas Tuch, Juha Pekkanen

Intercomparison of aerosol spectrometers for ambient air monitoring

Accepted with minor revisions in *Aerosol Sci. Technol.*

H.M. ten Brink ed.

*1999-Annual Report of Eurotrac-AEROSOL*  
Eurotrac/GSF Muenchen publish.

H.M. ten Brink et al.  
Aerosol; cycle and influence on the radiation balance  
*NOP-report 410 200 064*

J.S. Henzing, P. Stammes, W.H. Knap, H.M. ten Brink, G.P.A. Kos, A. Even  
D.P.J. Swart, A. Apituley, J.B. Bergwerff  
The effect of aerosol on closure of the regional short-wave radiation balance  
Co-ordinator: H.M. ten Brink  
*NOP-report 410 200 087*

Extended abstracts van presentaties en rapporten

*European nitrate and sulphate distributions as calculated with the LOTOS-model*  
M. Schaap, H.M ten Brink, P. Builtjes, F.J. Dentener, and M. van Loon  
*J. Aerosol Sci. 32, S289-299*

*Heterogeneous hydrolysis of dinitrogen pentoxide on aqueous sulfate aerosol: dependence of the reaction probability on the aging of the aerosol*  
M. Folkers, Th. Mentel, H. Sebald, A. Wahner, H.M. ten Brink, P. Jongejan  
*J. Aerosol Sci. 32, S299-301*

*The European aerosol nitrate distribution as deduced from quality assured measurements*  
M. Schaap, K. Mueller, H.M. ten Brink  
*J. Aerosol Sci. 32, S671-672*

An instrument for semi-continuous measurement of the composition of atmospheric aerosol as a function of size  
R.P. Otjes, A. Even, H.M. ten Brink W. van den Bulk, E.P. Weijers, J. Slanina  
*J. Aerosol Sci. 32, S961-962*

Nitrate artifacts in the collection of aerosol  
H. ten Brink, M. Schulz, J.-P. Putaud, P. Jongejan, E. Plate  
*J. Aerosol Sci. 32, S963-964*

The experiment "Intercomp-2000" in Melpitz, a Eurotrac-2 activity  
K. Mueller, A. Even et al.  
*J. Aerosol Sci. 32, S1021-1022*

Field comparison of measurement methods for carbonaceous aerosol in Melpitz  
A. Even et al.  
*J. Aerosol Sci. 32, S1023-1024*

"PM 2.5 concentrations over Europe-Combining satellite data and modelling" 25th ITM on air pollution modelling and its application. Louvain-la-Neuve, Belgium, october 2001  
M. van Loon, P.J.H. Builtjes en G. de Leeuw.

"Data assimilation of ozone and aerosols"  
Loon, M. van, in de proceedings van de 5e GLOREAM workshop.  
[http://people.web.psi.ch/keller\\_j/GLOREAM/WS2001/Final/VanLoon.pdf](http://people.web.psi.ch/keller_j/GLOREAM/WS2001/Final/VanLoon.pdf)

"Scenario's for ozone and aerosols"

M. van Loon en P.J.H. Builtjes, EMEP-LOOP workshop, Gernzersee, Switzerland, december 2001.

Aerosol Air Quality Satellite Data, eindrapport van BCRS project 4.1/AP-06.

P.J.H. Builtjes, H.M. ten Brink, G. de Leeuw, M. van Loon, C. Robles-González, M. Schaap.