

VOORTGANGSRAPPORTAGE OVER HET JAAR 2000:

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. Vermeulen, A. Even, J. Slanina, J.W. Erisman en G.J. de Groot

* TNO-MEP

| Revisies | | |
|--------------------|-------------------|--------------------|
| A | | |
| B | | |
| Opgesteld door: | Goedgekeurd door: | ECN-Schoon Fossiel |
| H.M. ten Brink | E.P. Weijers | |
| Geverifieerd door: | Vrijgegeven door: | |
| S. v.d. Molen | | |

INHOUD

| | | |
|------|---------------------------------------------------------|----|
| 1. | ACHTERGROND EN AANPAK | 5 |
| 1.1 | Doelstellingen | 5 |
| 2. | WERKZAAMHEDEN EN RESULTATEN IN 2000 | 6 |
| 2.1 | Samenvatting | 6 |
| 2.2 | Internationale workshop | 6 |
| 2.3 | Instrumentontwikkeling | 8 |
| 2.4 | Het nitraatveld in Europa geëxtrapoleerd uit metingen | 11 |
| 2.5 | Modelontwikkeling | 13 |
| 2.6 | Satellietwaarnemingen | 18 |
| 2.7 | IPCC | 20 |
| 2.8 | Monitoring van niet-CO ₂ broeikasgassen. | 20 |
| 2.9 | Aërosolen en gezondheid | 23 |
| 2.10 | Eurotrac | 23 |
| 3. | PUBLICATIES EN PRESENTATIES | 25 |
| 3.1 | Publicaties | 25 |
| 3.2 | Presentaties | 26 |
| | BIJLAGE: VERSLAG VAN DE WORKSHOP BIJ ECN VAN APRIL 2000 | 29 |

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 door de mens in de lucht worden gebracht. Deze deeltjes koelen doordat ze zonlicht weerkaatsen. 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, bijvoorbeeld, is de gemeten bijdrage van de component nitraat zo groot dat het koelende effect de opwarmende werking van de broeikasgassen zou kunnen compenseren. In hoeverre dit meer algemeen in Europa geldt wordt nagegaan in het project. Daarvoor moeten modellen worden ontwikkeld waar meetgegevens een integraal onderdeel in vormen. Die meetgegevens moeten wel betrouwbaar zijn. Een analoog verhaal geldt voor de berekende emissies van de broeikasgassen. Verificatie van die getallen kan gebeuren door meting van de variatie in concentraties op een centraal meetpunt.

Naast de aerosolinvloed op het klimaat is de schadelijkheid van aerosolen voor de gezondheid van een belangrijk punt. Om deze schade te verminderen wordt aan emissiebeperkende maatregelen gedacht, die hun effect zullen hebben op de aerosolniveaus.

Noot: De aerosolkoeling verandert de zogenaamde stralingsbalans. Dit is de balans tussen de inkomende zonnestraling en de uitgaande warmtestraling die bepalend is voor de temperatuur op aarde. De verstoring van de stralingsbalans door de mens is het startpunt voor de klimaatverandering en deze verstoring wordt in de betreffende literatuur (IPCC- rapporten o.a.) 'forcering' genoemd.

Doelstellingen

De doelen van het meer-jaren onderzoeksprogramma zijn:

- 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 verandering in de stralingsbalans door aerosolen 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 nevendoelestelling 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. Betere schatting van de emissies van de voor Nederland belangrijke broeikasgassen methaan en N₂O (lachgas); 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 het verbeteren van het emissiebestand.

2. WERKZAAMHEDEN EN RESULTATEN IN 2000

2.1 Samenvatting

In dit hoofdstuk wordt de voortgang van het project in het jaar 2000, het tweede jaar van het project, gerapporteerd.

- De lang voorbereide internationale workshop werd in april gehouden; daaraan namen een twintigtal internationale experts deel. Het was de eerste keer dat systematisch de rol van de verschillende componenten van het aërosol in de weerkaatsing van zonlicht werd nagegaan. Ook werd de betrouwbaarheid van de meetgegevens uitvoerig geanalyseerd, met name die voor nitraat. Professor Andreae, één van de drie auteurs van het hoofdstuk Aërosolen van het nieuwe IPCC-rapport, was de inleider.
- De ontwikkeling van de apparatuur voor continu meten van samenstelling en grootte van de aërosolen werd afgerond en de eerste tests werden verricht. De hier ontwikkelde apparatuur is uniek in de wereld.
- Het gedetailleerde model voor de aërosolvelden over Europa werd verder ontwikkeld en berekende velden voor nitraat werden op een aantal punten vergeleken met gemeten waardes. Ook werd een empirische weg gekozen voor het construeren van de velden. Daarvoor werd naar betrouwbare gegevens gezocht in Europa. Daarnaast werden minder betrouwbare gegevens uit monitoring-netwerken gecorrigeerd voor meetartefacten. De gegevens werden geïnterpoleerd tot een empirisch nitraatveld.
- De ECN-apparatuur die voor China gereed was gemaakt werd ingezet en de eerste resultaten werden geanalyseerd. Daaruit blijkt dat de concentratie nitraat (ook daar) hoog is. De metingen die in 1998 in de VS werden uitgevoerd werden gepresenteerd op het Amerikaanse aërosol-congres.
- Van het in de inleiding genoemde Third Assessment Rapport werd het Nederlandse deel van de government-review over aërosolen door ECN verzorgd. De mogelijkheid om satellietbeelden te gebruiken voor het vaststellen van aërosolvelden, werd uitgebreid onderzocht. Er werd een eerste vergelijking gemaakt van het zo geconstrueerde veld met metingen aan de grond.
- De instrumentatie voor het meten van methaan en N₂O op twee hoogtes op de meetmast in Cabauw werd eerst uitvoerig in het laboratorium getest en verbeterd en daarna geplaatst. In 2000 waren er nog onvoldoende metingen voor een evaluatie van de gegevens. Dat is intussen wel het geval. Verder wordt, in sectie 2.8, de relatie tussen de klimaateffecten en de gezondheidsaspecten van aërosolen aangegeven. Het blijkt dat de deeltjes die het zonlicht weerkaatsen ook het meest bijdragen aan de aërosolgrootheid waaraan nu de gezondheidsschade wordt gerelateerd, de massa aan deeltjes.

2.2 Internationale workshop

In april organiseerde ECN een workshop met klimaatexperts uit alle delen van de wereld. Het doel was een schatting te maken van de invloed van de aërosolcomponenten waarover de gegevens nog schaars zijn. Dat zijn met name nitraat en 'organisch' koolstof. Na afloop van de workshop was er een symposium voor een Nederlands publiek, waarop de uitgangspunten en de

resultaten van onderzoek en workshop in gepopulariseerde vorm werden gepresenteerd. De workshop werd ingeleid door prof. Andreae. Hij is een van de drie auteurs van het hoofdstuk 'Aërosol' van het dit jaar uit te komen Third IPCC-assessment rapport. Hij gaf een overzicht van de historie van IPCC en de totstandkoming van de assessment-rapporten en de rol van aërosolen in de rapporten. Die is sterk veranderd sinds het eerste rapport, waarin aërosolen nog als onbelangrijk golden.

Van de andere deelnemers was met name de aanwezigheid van Keshgi van EXXON interessant. Deze is geen aërosolexpert, maar wel degene die uit het temperatuurverloop de aërosolinvoed probeert te destilleren. Hij is auteur van het betreffende hoofdstuk in het nieuwe IPCC-rapport.

Over de invloed van organisch koolstof was het panel, in navolging van de toen al bekende eerste versie van het IPCC-rapport, ook van mening dat het belangrijk is. Het organisch aërosol heeft n.l. een grootte die optimaal is voor weerkaatsen van zonlicht. Deze conclusies leken hard, ondanks de problemen die bij het meten voorkomen en het geringe aantal van die metingen. Er werd lang stil gestaan bij de artefacten die kleven aan het verzamelen van het aërosol voor analyse. Verder lijkt onduidelijk hoeveel van het organisch aërosol van natuurlijke bronnen afkomstig is en hoeveel de mens produceert. Ook is nog onbekend hoeveel er direct als aërosol in de lucht komt en hoeveel er via reacties uit gassen ontstaat.

Bij modelleren van de nitraatvelden is de stabiliteit van ammoniumnitraat een belangrijke factor. Er werden verder bilaterale afspraken gemaakt over samenwerking vooral op gebied van de vochtopname door aërosolen en over metingen in China en Brazilië als onderdeel van de assessment van de nitraatconcentraties buiten Europa. Een uitgebreid verslag van de workshop is toegevoegd als bijlage aan dit rapport.

De workshop leverde de volgende resultaten en aanbevelingen voor ons verdere onderzoek op:

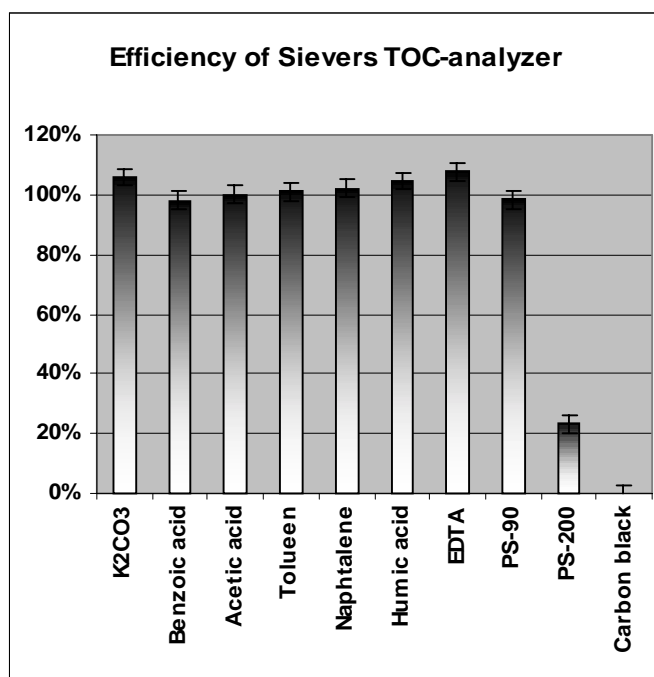
Nitraat en organisch koolstof kunnen beide van belang zijn voor de stralingsbalans in Europa. Bij nitraat bestaat twijfel over de betrouwbaarheid van de meetgegevens. Het probleem is het verlies bij het verzamelen van het vluchtige nitraat, maar dat verlies is vermoedelijk te kwantificeren, ook al omdat recent referentiemeetmethodes zijn ingezet bij metingen. Verder is niet bekend hoe groot de aërosoldeeltjes zijn waarin nitraat voorkomt. Wanneer nitraat voornamelijk in deeltjes groter dan 2 μm aanwezig zou zijn, zou de invloed op de stralingsbalans gering zijn. Het oordeel van de deskundigen was dan ook dat het bepalen van de grootte van het nitraat een belangrijk doel moet zijn van ons project.

De problemen bij het verzamelen van organisch koolstof zijn groter en moeilijker te overwinnen dan die bij nitraat. Dat is de reden dit onderzoek te intensiveren. Omdat er momenteel door vele anderen wordt gewerkt aan het modelleren van het organisch koolstof is de keuze gemaakt ons vooral te richten op de modellering van het zwarte koolstof ('roet'). Zwart koolstof absorbeert zonlicht en is daarmee een belangrijke opwarmende component. Een andere reden voor de keuze is de associatie van roet met gezondheidsproblemen, zie sectie 2.8.

2.3 Instrumentontwikkeling

Organisch koolstof

De ontwikkeling van de methode voor meting van organische componenten in aërosolen is vrijwel voltooid. Het is nu mogelijk om de oplosbare organische fractie in aërosol te bepalen door gebruik te maken van de Steam Jet Aërosol Collector (SJAC). Een denuder vangt daarbij interfererende gassen af voordat deze de SJAC kunnen bereiken. Een Total Organisch Carbon (TOC) analyser meet de oplosbare organische koolstoffractie. Het systeem is getest in Duitsland bij een veldvergelijking waar verschillende Europese instituten aan deelnamen die allen filtermethodes gebruikten. De resultaten van de vergelijkingsmetingen zien er op het eerste oog consistent uit, maar de echte evaluatie wordt in 2001 gedaan, onder leiding van ECN. De nieuwe promovendus, Laura Hernandez, is gestart met haar onderzoek dat er op gericht is de SJAC-methode verder te ontwikkelen zodat ook het zwarte koolstof gemeten kan worden. Verder heeft zij de afvangst van de organische gassen verbeterd en is er in geslaagd de meetblanco te verminderen.



Figuur 2.1 Gevoeligheid van de natte TOC-analysator voor aangegeven koolstofhoudend materiaal deeltjes.

Lichtabsorberend koolstof (black carbon)

In september 2000 stonden in de wetenschappelijke bijlagen van NRC en Volkskrant interviews met James Hansen, de pionier van het broeikas effect, die het belang aangaf van de absorptie van zonnestraling door het zwarte koolstof, ook wel bekend als 'roet'. Het is daarmee een 'echte' opwarmende broeikascomponent, in tegenstelling tot de eerder genoemde aërosolcomponenten die een koelend effect hebben. De hoeveelheid zonlicht die wordt geabsorbeerd door het zwarte koolstof kan op twee manieren worden bepaald. Op directe wijze door de absorptie te meten of door de concentratie roet chemisch te bepalen. ECN doet beide. De zwarting wordt samen met RIVM in een ander project onderzocht.

De gebruikte monitoren van RIVM, aethalometers, meten niet de absorptie van de aërosolen in de lucht maar na opvang van de aërosoldeeltjes op filters. Door deze handeling verandert de structuur van het roet en de zwarting.

Chemisch wordt het zwarte koolstof bepaald doordat het meer inert is dan het organische koolstof. ECN heeft een apparaat dat automatisch de hoeveelheid elementair koolstof meet. Die meting is niet eenduidig. ECN heeft in de verslagperiode de performance getest van het apparaat. De vertaling van elementair koolstof naar lichtabsorptie is niet eenduidig en verder geldt dat roet, dat opgesloten zit in een deeltje met sulfaat en nitraat, meer licht absorbeert omdat die andere componenten als lens werken. Dit aspect is in een recent artikel, in het tijdschrift Nature belicht. In de komende tijd wordt aan dit aspect meer aandacht besteed in het project.

De emissies van roet in Nederland zijn nagelopen in een bureaustudie in het kader van de gezondheidsaspecten van aërosolen bij inademen, zie sectie 2.8. dit was een speciale opdracht van het ministerie VROM. De resultaten van de inventarisatie zijn van groot belang voor het huidige onderzoek. Zo blijkt dat bijna alle roet in ons deel van Europa door dieselverkeer wordt geproduceerd waardoor kwantificering van de bronnen mogelijk lijkt.

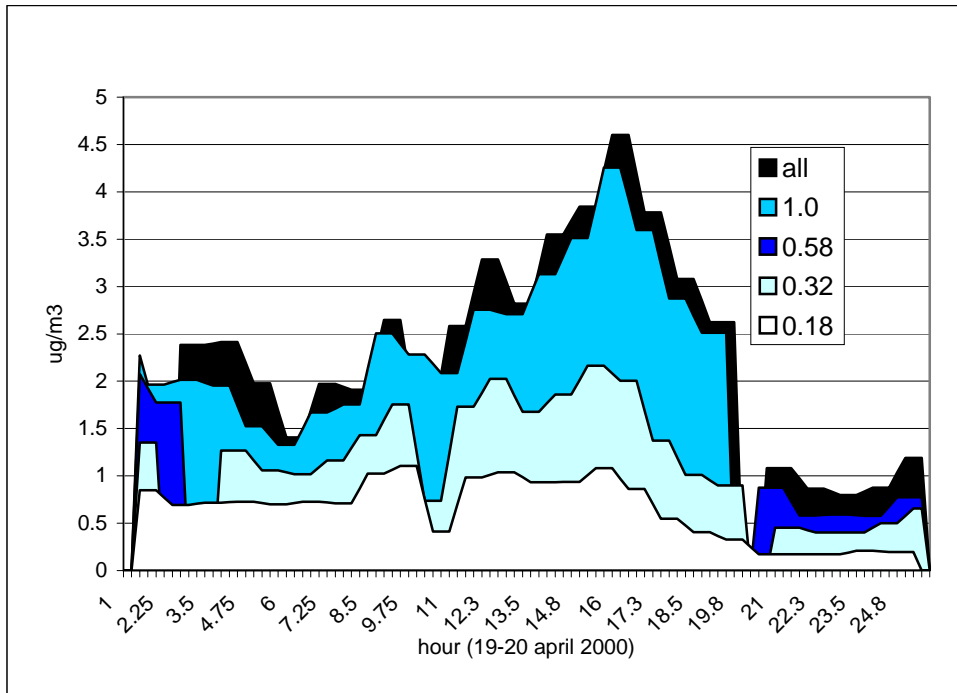
Samenstelling van aërosol als functie van grootte

Omdat de invloed van aërosolen sterk afhangt van de grootte is dit een noodzakelijke ontwikkeling. Indien, zoals nog in het vorige IPCC-rapport wordt 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 weerkaatst het zonlicht maximaal. De reden is dat die deeltjes even groot zijn als de golflengte waarbij zonlicht haar maximale intensiteit heeft. Eerdere kortdurende metingen met handmatige instrumenten lijken 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 zwaar zijn uitgeslingerd en alleen de doorgaande fractie wordt verzameld en de samenstelling geanalyseerd. Daarvoor is een commerciële cascade-impactor uitgekleeft en 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. Daardoor 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, zie figuur 4.

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 eenvoudig gemeten worden.



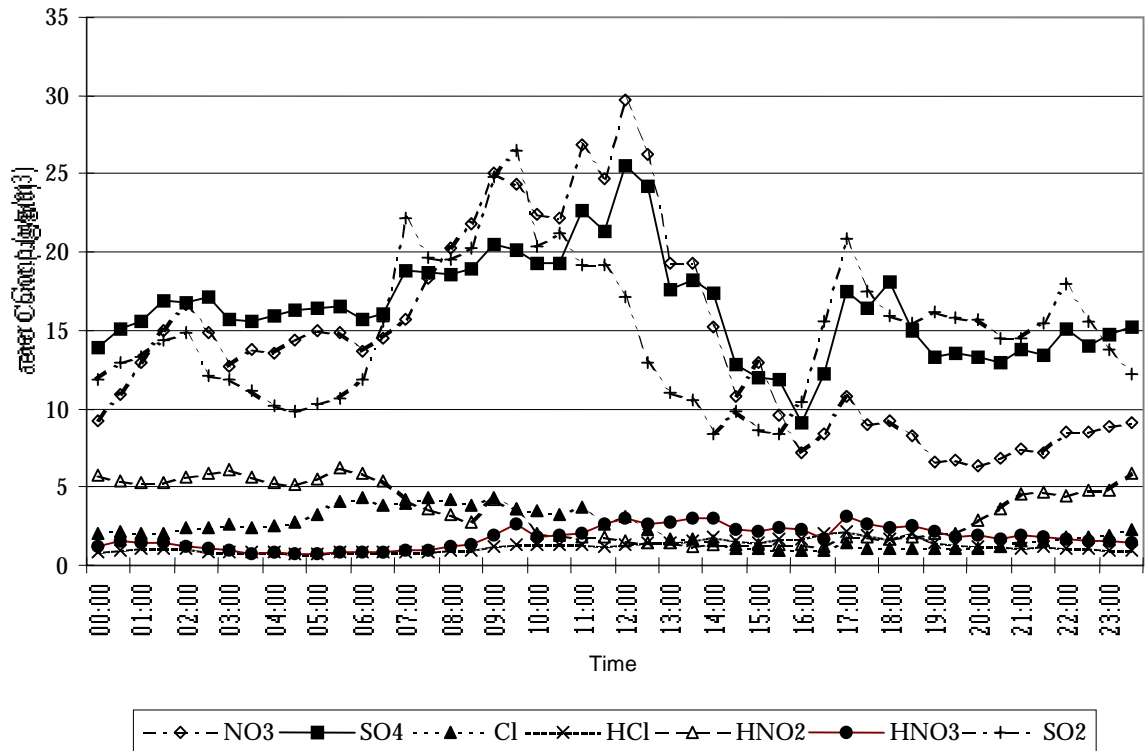
Figuur 2.2 Concentratie aan ammonium in aërosol op de aangegeven tijd in Petten. Van boven naar beneden staat de totale concentratie ammonium in alle deeltjes, in de directe aanvoerlijn. De zwarte balk geeft de concentratie weer in deeltjes groter dan $1\mu\text{m}$; het daarop volgende meest grijze vlak is voor de concentratie in de deeltjes met een diameter tussen 0.58 en $1\mu\text{m}$, enz.

Andere belangrijke componenten zoals sulfaat en nitraat worden met een Ion Chromatograaf geanalyseerd, wat een meer bewerkelijk analysesysteem. Daarin wordt een monster eerst verzameld voor het geanalyseerd kan worden. De ammoniumdetector is een minder gecompliceerd apparaat.

De opstelling is getest in het laboratorium en is intussen in 2001 op de meetmast in Cabauw geplaatst. Daar komt het beter tot zijn recht omdat Cabauw, in het centrum van Nederland, een meer representatieve plek is dan Petten.

China

De eerste resultaten van de metingen met de ECN-apparatuur in Peking zijn verrassend. Er is veel nitraat, zelfs meer dan sulfaat. Nitraat komt vermoedelijk voor als calciumnitraat en niet als ammoniumnitraat zoals in Europa. Aanvullende metingen, die op dit moment worden uitgevoerd, zijn nodig om te bevestigen dat het calciumnitraat is. Metingen zullen ook in andere delen van China worden uitgevoerd. Indien daar dezelfde resultaten worden gemeten, heeft dat verregaande consequenties voor het modelleren van aërosol omdat calciumnitraat stabiel is in de atmosfeer, in tegenstelling tot ammonium nitraat dat grote dissociatie vertoont bij hogere temperatuur en dus een kortere levensduur heeft en daarmee veel lokalere effecten op de stralingsbalans.



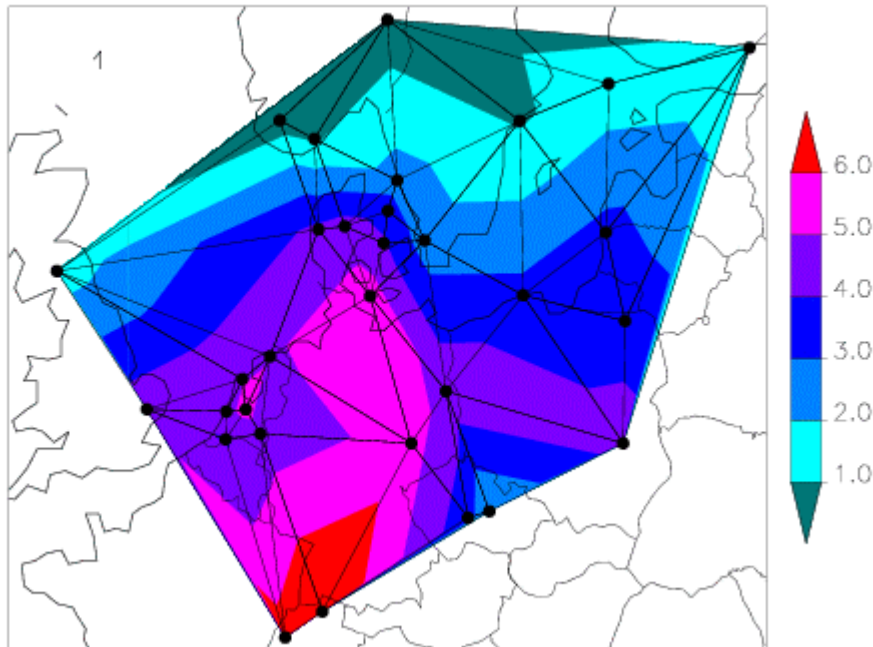
Figuur 2.3 Metingen van nitraat, sulfaat en chloride in Peking (China) uitgevoerd met de SJAC.

2.4 Het nitraatveld in Europa geëxtrapoleerd uit metingen

De inventarisatie van nitraatdata in Europa werd vrijwel afgerond. De tweede fase, een eerste schatting van de nitraatvelden, was in het eerste kwartaal 2001 gereed. Naast de meetgegevens die werden verkregen van andere instituten in Europa werden ook een aantal nevenactiviteiten verricht om de kwaliteit van de meetgegevens te screenen. Naast een evaluatie werd actief naar data gevraagd bij instituten waarvan we vermoedden dat ze nitraat meten. Daarbij is en wordt gebruik gemaakt van het netwerk dat is opgebouwd in het Europese onderzoekframe Eurotrac, zie sectie 2.9. In het kader van onze speurtocht naar betrouwbare gegevens werd in 1999 een vergelijkingsmeting uitgevoerd bij ECN. De werkelijke gehalten nitraat werden geconstrueerd op basis van metingen aan de zgn. artefactvorming bij het verzamelen die in 1999 bij ECN zijn uitgevoerd. Dat onderzoek vindt onder de paraplu van Eurotrac plaats. Op analoge wijze zal worden getracht het veld voor koolstof te construeren. De artefacten bij het verzamelen van dit materiaal worden ook in Eurotrac-kader onderzocht. Verder werd in de vergelijkingsmeting nabij Leipzig, besproken in sectie 2.3, ook nitraat gemeten. Die gegevens zijn belangrijk omdat de meting plaats vond op de plaats van het in 1998 uitgevoerde grote Duitse onderzoek naar het effect van aërosol op de stralingsbalans. Dit was tot dusverre het enige andere experimentele onderzoek in Europa aan de aërosolforcing.

ECN heeft in 1999 aan een meetcampagne in de Po-vlakte deelgenomen. De evaluatie van dat onderzoek is in het rapportagejaar verricht en heeft tot twee publicaties geleid. We melden die

campagne hier omdat meer ammoniumnitraat dan ammoniumsulfaat werd gemeten waaruit blijkt dat ammoniumnitraat ook een dominante aerosolcomponent in Noord- Italië is. Het construeren van het nitraatveld, geïnterpoleerd tussen de aangeduide punten met meetgegevens werd in het jaar 2001 gedaan, maar vooruitlopend op de verslaggeving wordt hier alvast de uitkomst gepresenteerd gegeven in figuur 2.4.



Figuur 2.4 Nitraat-concentratieveld in Europa, in $\mu\text{g m}^{-3}$

Noot: in het oosten van de VS komt veel nitraat voor. Echter, de nitraatvelden zijn daar geconstrueerd middels metingen uit een netwerk waarin weekgemiddelde waarden werden bepaald en een meetnet waarin op een dag in de week en op zondag wordt gemeten. Wij zijn door deelname met ons referentie-instrument aan een pilotstudy in Atlanta goed op de hoogte van de daar gebruikte methodes en de waarde van de gegevens.

Stabiliteit van ammoniumnitraat en vochtopname

De stabiliteit van ammoniumnitraat is een belangrijke parameter in de modellering, zie sectie 2.6. De parametrisatie die momenteel gebruikt wordt voor de stabiliteit is gebaseerd op thermodynamische berekeningen. Bij ECN worden die gegevens experimenteel getest. Dat dit bij ons gebeurt heeft te maken met de aanwezigheid van een grote reactiekamer 'Chief' en de benodigde speciale monitor, de eerder genoemde SJAC.

Voor puur ammonium nitraat komt de gemeten stabiliteit binnen 10% overeen met de thermodynamische waarde. De vraag is nu of deze waarde ook geldt als het ammoniumnitraat gemengd is met ander aerosolmateriaal. In het laatste deel van 2000 zijn hiervoor opnieuw experimenten uitgevoerd in CHIEF met mengsels van ammoniumnitraat en ammoniumsulfaat. De resultaten zijn nog niet beschikbaar.

Ammoniumnitraat is een hygroscopisch zout. Dergelijke componenten nemen vocht op of beter gezegd ze vervloeien in het opgenomen vocht. Dit gebeurt als de vochtigheid voldoende hoog is. Eenmaal vervloeid droogt het deeltje niet meer en daarom zou ammoniumnitraat altijd als een druppel en niet als vast materiaal aanwezig moeten zijn in de atmosfeer. De opname van vocht is zeer belangrijk want natte deeltjes weerkaatsen veel meer zonlicht dan droge deeltjes en EEN van de onzekerheden in de assessment van de aerosoleffecten is deze vocht opname die tot een factor twee verschil oplevert. Echter een aerosoldeeltje bestaat nooit uit puur

ammoniumnitraat maar bevat ook andere componenten die minder of niet hygroscopisch zijn. ECN heeft in het verleden veel onderzoek hieraan verricht.

Het blijkt dat ammoniumnitraat zo sterk hygroscopisch is dat zelfs als het met andere componenten is gemengd haar invloed domineert. De hypothese dat onoplosbaar materiaal, met name roet, de vochtopname beïnvloedt, is door ons ontkracht. ECN heeft hierover een invited lecture gegeven op de bijeenkomst van de American Geophysical Union van eind 1999. De apparatuur die voor dit onderzoek werd ontwikkeld is geautomatiseerd en is in 2000 ingezet om de vochtopname van aërosol in de lucht te meten in het onderzoeksproject CLOSAeR uit het nationale NOP-programma "Global Change".

2.5 Modelontwikkeling

Inleiding

Hoofddoel van dit onderdeel is het vaststellen en analyseren, van de aërosollast, dwz de hoeveelheid aërosol, die afkomstig is van bronnen aan het oppervlak in Europa. Dit doel wordt bereikt door gebruik te maken van alle beschikbare informatie, inclusief satelliet-waarnemingen, zie sectie 2.6. Ook worden emissies van aërosol-voorlopers gebruikt in de modellering van die aërosolen die in de atmosfeer uit gassen ontstaan zoals sulfaat en nitraat. De relatie tussen emissie en concentraties aan de grond wordt gelegd via gecombineerd modelleren van transport en reacties.

Via data-assimilatie, een begrip dat verderop wordt uitgelegd, wordt getracht de vergelijkbaarheid van meetgegevens en modeluitkomsten te verbeteren wat o.a. leidt tot beter inzicht in de processen die tot aërosolvorming leiden en daarmee tot aërosolvelden over Europa, die geanalyseerd kunnen worden in relatie tot broncategorieën. Dit maakt, na het vaststellen van de betrouwbaarheid van de ontwikkelde modellen (modelvalidatie) het berekenen van - zo betrouwbaar mogelijke emissiescenario's en schatting van de komende velden en aërosollast mogelijk.

De verkregen kennis is direct te gebruiken voor het berekenen van de stralingsforcering door aërosolen. Voor het grondniveau zijn de (gemodelleerde) velden vooral van belang voor validatie met gegevens en met de concentratie en samenstelling van het aërosol dat wordt ingeademd als fijn stof.

LOTOS-model

In de rapportage periode werd het atmosferisch-chemische transport model LOTOS verder ontwikkeld en werd de eerste vergelijking (validatie) gemaakt met grond- en satelliet-waarnemingen.

Het LOTOS model (LONg Term Ozone Simulation) werd ontwikkeld voor de beschrijving van ozon in Europa. Het werd in 1999 uitgebreid met een aërosol-module, Made/Mars, die in een samenwerking met Ford-Aken werd verkregen.

Voor een goede berekening van de aërosolconcentraties is een goede beschrijving van regen van belang omdat de aërosolen die voor het klimaat van belang zijn vooral via regen uit de atmosfeer verwijderd raken. Naast de hoeveelheid neerslag is ook de duur/intensiteit ervan belangrijk. Deze gegevens werden voor het jaar 1994 verkregen via EMEP en geschikt gemaakt voor het gebruik in LOTOS.

Voor de vorming van sulfaataërosol is de zgn. heterogene omzetting in wolken van belang. Deze module is in LOTOS ingebouwd, maar nog niet gebruikt omdat in 2000 de vereiste wolkeninformatie nog ontbrak (met name de hoogte waarop de wolken voorkomen en de hoeveelheid wolkenwater). Deze informatie komt naar verwachting begin 2001 beschikbaar.

Landuse

De nieuwe landuse data op een schaal 1x1 km² (voor het LOTOS-model geaggregeerd tot de LOTOS-resolutie van 0.25x0.5 latitude-longitude) is gebruikt om de droge depositie van aërosol precursors als zwaveldioxide beter te berekenen. Ook is, afhankelijk van de opgetreden meteorologie een schatting gemaakt van de sneeuwbedekking op het oppervlak omdat de depositie daarop gering is en de precursors daarom lang kunnen voort leven.

Emissies

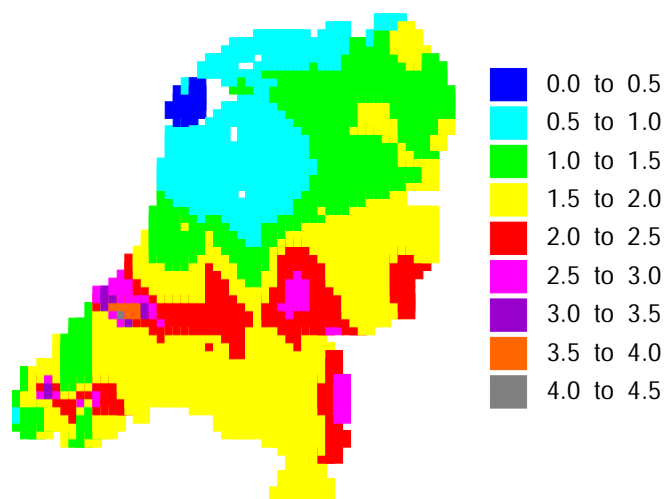
Er is gewerkt aan een volledige vernieuwing van het emissiebestand van de primaire aërosol van met name de voor ons relevante deeltjes kleiner dan 2.5 µm voor het EMEP basisjaar 1995. Deze data komen in de lente van 2001 voor onze modellering beschikbaar.

Organisch aërosol

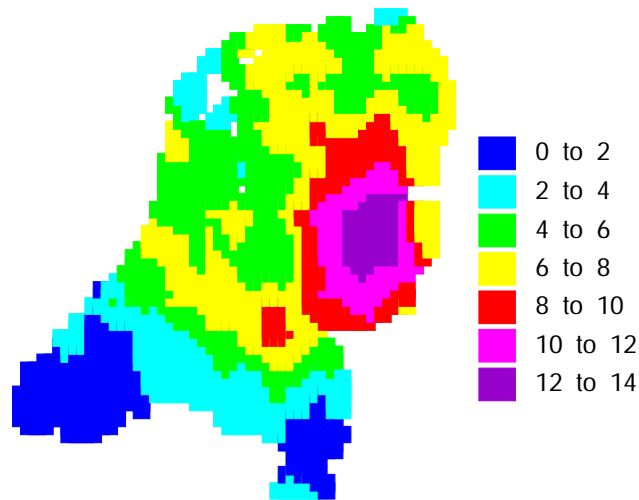
Voor volledige modellering van het aërosol moet ook het secundaire organische aërosol worden meegenomen. De module die dit beschrijft (CBM-IV/ MADE-MARS) is begin 2001 van Ford-Aken ontvangen. Ook is in 2000 gewerkt aan de verbetering van de biogene emissies van NO uit bodems. Op grond van literatuuranalyse is gekozen voor inbouw van een methode die door Yienger en Levy is ontwikkeld. Aangezien nitraat het eindproduct is van de omzetting van het primair geëmitteerde NO zijn deze gegevens van belang voor het berekenen van het nitraat afkomstig uit deze bron.

UAM – Urban Airshed Model

Het LOTOS-model heeft op dit moment als kleinste resolutie een rooster van 0.25x0.5 lengte-breedtegraden. Grondwaarnemingen, en ook satelliet-observaties laten soms horizontale gradiënten zien op kleinere schaal. Ten einde ook op een kleinere schaal te kunnen rekenen, is het model UAM (Urban Airshed Model) met de in LOTOS aanwezige aërosol module uitgebreid. Verder is dit model in LOTOS "genest" (de modelresultaten van LOTOS worden als randvoorwaarden gebruikt in de UAM-berekeningen). Het UAM heeft een rooster-grootte van 1x1 km². In figuur 2.5. is als voorbeeld het resultaat van een berekening met UAM over Nederland op 5 x 5 km² opgenomen van sulfaat en nitraat concentraties voor augustus 1997.



Figuur 2.5 Gemiddelde aërosolsulfaat concentraties in Augustus 1997, berekend door het LOTOS/UAM model



Figuur 2.6 Gemiddelde aërosolnitraat concentraties in Augustus 1997, berekend door het LOTOS/UAM model

Validatie van het LOTOS-model

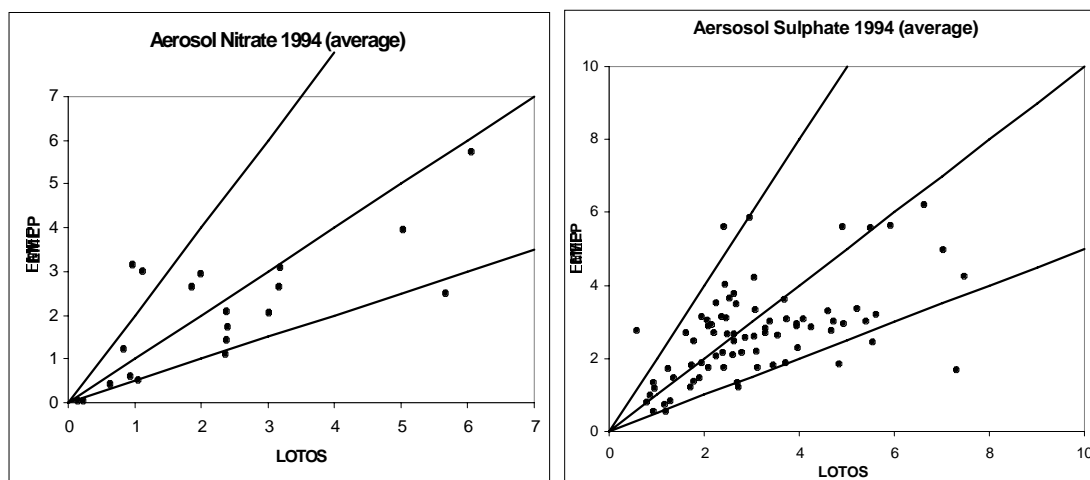
Het LOTOS model moet geschikt zijn voor berekeningen van de bijdragen van de verschillende broncategorieën aan de aërosolen in Europa. Daarmee kan het model dan ook worden ingezet voor scenarioberekeningen.

Voor betrouwbare berekeningen is het noodzakelijk dat wordt vastgesteld in hoeverre de modelresultaten met metingen overeenstemmen. Op deze wijze wordt de correctheid van het model vastgesteld. Bij grote verschillen tussen berekende en gemeten concentraties is een analyse van de oorzaken, onnauwkeurigheid of onvolledigheid in modelinvoer, of interne modelfouten, noodzakelijk en volgt model- en/of invoerverbetering. Modelvalidatie heeft plaatsgevonden aan gegevens van metingen van aërosolen aan de grond en satellietwaarnemingen.

Grondwaarnemingen

De validatie van het model is uitgevoerd voor berekeningen van sulfaat, nitraat en ammonium over het jaar 1994. Dit betreft uur-voor-uur berekeningen op de standaard roostergrootte op leefniveau, waarbij geen heterogene omzettingen zijn meegenomen. De validatie met nitraatmetingen vergde een zorgvuldige studie naar de betrouwbaarheid van de nitraataërosol metingen, waarna de geanalyseerde nitraataërosol metingen in de validatie zijn gebruikt.

Figuur 2.7 geeft een scatter-plot van de jaargemiddelde berekende en gemeten aërosol sulfaat- en nitraatconcentraties. Er is een goede overeenkomst tussen gemeten en berekende waarden, zie ook figuur 2.8.



Figuur 2.7 Scatter plots van de gemodelleerde en gemeten concentraties van sulfaat en nitraat, gemiddeld over 1994.

Data-assimilatie

Data-assimilatie is een methode waarbij de informatie van waarnemingen en modelberekeningen op een consistente wijze wordt gecombineerd. In feite is data-assimilatie (ook) een vorm van model-validatie. Bij traditionele model-validatie worden berekende concentraties vergeleken met gemeten concentraties. Bij data-assimilatie worden gemeten concentraties als invoer tot het modelsysteem gebruikt. Vervolgens wordt het verschil tussen gemeten en oorspronkelijk berekende concentraties verkleind door veranderingen, binnen een voorgeschreven marge, van parameters en/of processen.

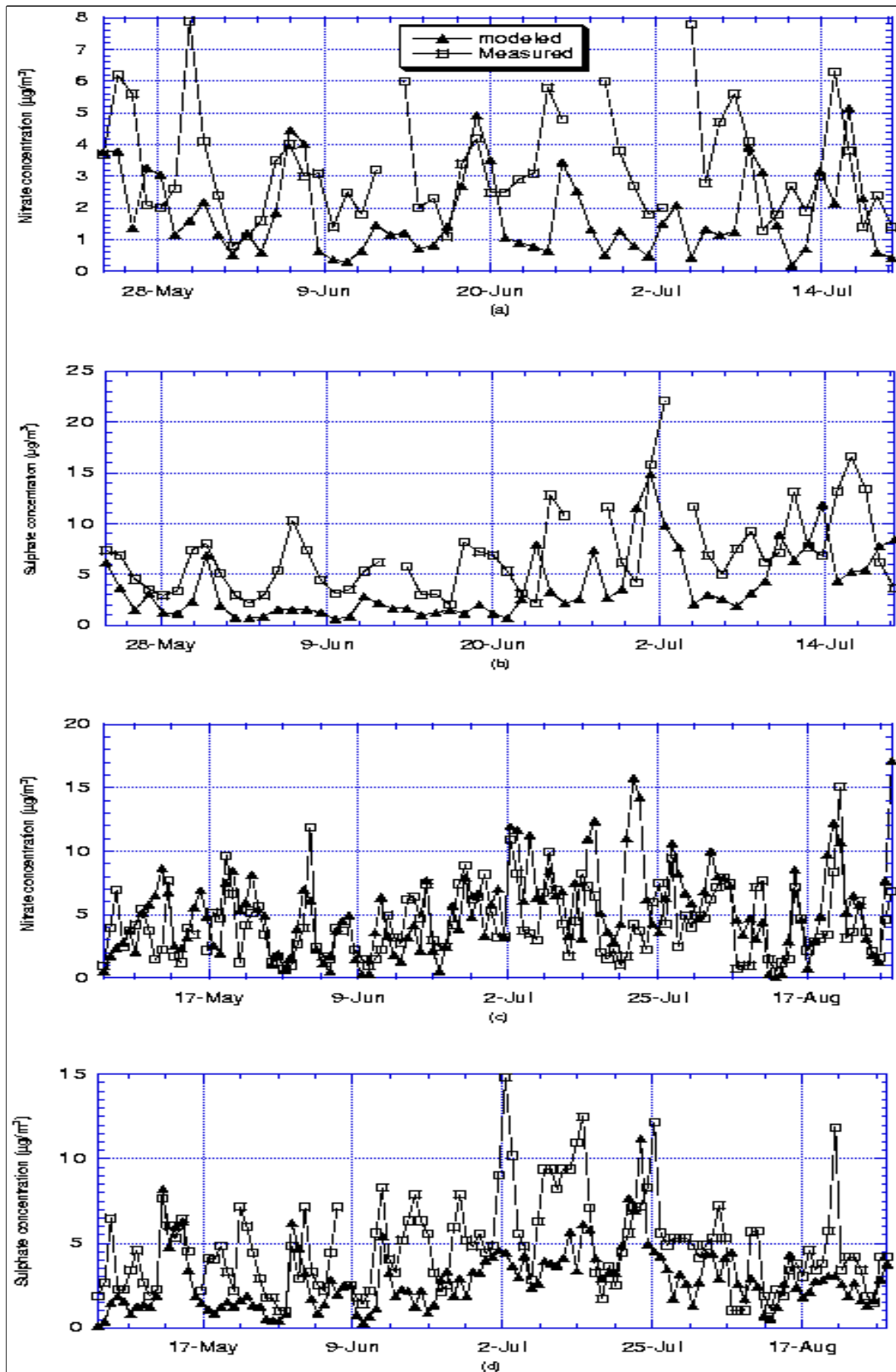
Het resultaat is (ook) een concentratieveld gebaseerd op de informatie in model en in meting. Data-assimilatie is toegepast op berekende en gemeten AOD-waarden. Op deze wijze is een consistent AOD-veld over Europa voor augustus 1997 gecreëerd.

Indien de toepassing van data-assimilatie niet aangeeft dat er sprake is van ernstige model- of invoerfouten (dit zou blijken uit onrealistische parameteraanpassingen) zal het data-assimilatie systeem voor scenarioberekeningen worden toegepast.

Samenvatting

Het LOTOS-model is verder ontwikkeld. Voor een volledige beschrijving van aerosolconcentraties, inclusief de gezondheidsrelevante PM10 en PM2.5, is het noodzakelijk dat ook het secundaire organische koolstof-aerosol wordt gemodelleerd.

Het LOTOS-model is in zijn huidige, beperkte vorm, vergeleken met grondgegevens en satelliet-waarnemingen. Validatie van het volledige model moet nog plaatsvinden. De data-assimilatie methode is verder ontwikkeld en toegepast op gemeten en gemodelleerde AOD. Nadere analyse van mogelijkheden en beperkingen is nodig alvorens optimaal en volledig gebruik van deze methode mogelijk is.



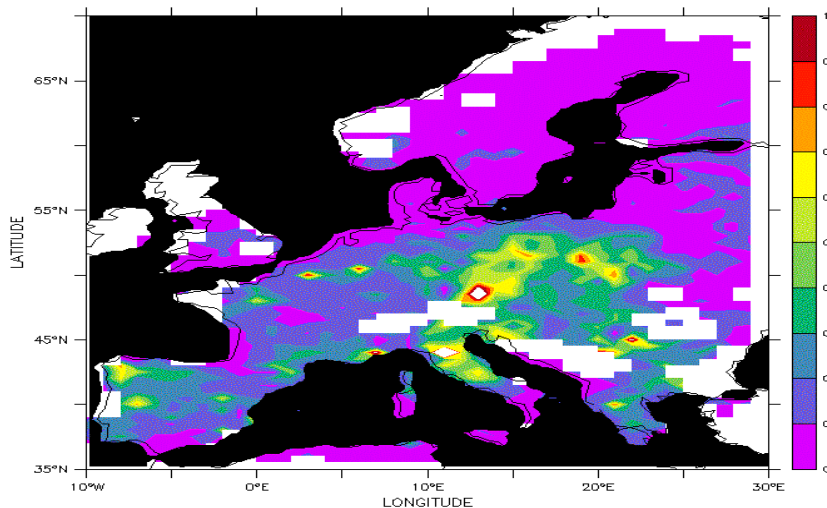
Figuur 2.8 Gemodelleerde en berekende concentraties van sulfaat en nitraat te Halberstadt (bovenste twee panelen) en te Bilthoven (onderste twee panelen).

2.6 Satellietwaarnemingen

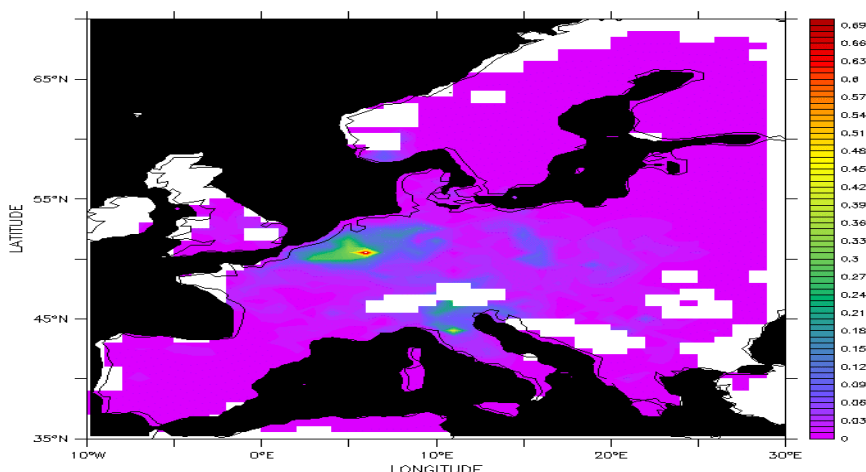
Er is in Europa geen netwerk van stations waarin continu de samenstelling of grootte van aërosol wordt gemeten. Vanuit satellieten kan het gehele veld in een keer worden waargenomen. Dit gebeurt via hetzelfde fenomeen als de koeling van het klimaat, n.l. doordat aërosolen zonlicht weerkaatsen. In speciale satellieten wordt het gereflecteerde zonlicht gemeten. Daaruit wordt afgeleid hoeveel licht er door aërosolen is weerkaatst. En waaruit weer een schatting van de hoeveelheid aërosol wordt gemaakt. Deze satelliet-“retrieval”, is een specialiteit van FEL-TNO waarmee via een ander project werd samengewerkt. In het kader daarvan is door FEL-TNO gewerkt aan het ontwikkelen van een methode waarmee de hoeveelheid zonlicht die door aërosol wordt gereflecteerd uit het door de satelliet opgevangen licht satelliet kan worden bepaald. De reflectie wordt 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 maar voor een paar locaties in Europa waaronder de Bilt.

Met het ATSR-instrument op de Eurosat-satelliet kan een ruimtelijk oplossend vermogen van ca. 1x1 km² worden gehaald. De zeer zonnige maand augustus 1997 werd en wordt als testmaand gebruikt. De afgeleide AOD-velden werden gebruikt voor de validatie van het LOTOS-model. Maar er zijn dan nog wel een aantal modelaannames 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.

De met LOTOS berekende AOD vertoont wel een zelfde ruimtelijk patroon als de gemeten AOD over de genoemde maand. Nitraataërosol blijkt een belangrijke bijdrage te hebben in West-Europa en in de Po-vlakte, in centraal en Oost-Europa de bijdrage van sulfaat groot.



Figuur 2.9 *Verhouding tussen berekend aërosolsulfaat door LOTOS en de totale aërosol optische dikte als afgeleid van satellietgegevens met het dual-view algoritme*



Figuur 2.10 *Verhouding tussen berekend aërosol nitraat door LOTOS en de totale aërosol optische dikte als afgeleid van satelliet gegevens met het dual view algoritme*

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. Voor een volledige validatie is het ook nodig dat de AOD van het ATSR-instrument voor minstens een geheel jaar beschikbaar komt.

Een andere deeltaak die in het rapportagejaar werd ondernomen was het leveren van relevante gegevens over de aërosolen op de tijden dat er satelliet-waarnemingen worden gedaan. Dat zijn gegevens over parameters waarmee de terugkaatsing van zonlicht door aërosolen kan worden berekend. De belangrijkste parameters zijn de grootteverdeling en de brekingsindex. Deze laatste grootheid wordt uit de samenstelling afgeleid. Verder moet de opname van vocht door de hygroscopische aërosolcomponenten bekend zijn en deze hangt af van de concentratie van deze componenten. Dat zijn met name ammoniumsulfaat en ammoniumnitraat. ECN heeft in het recente verleden beide aërosolcomponenten continu gemeten. Daarom zijn er (ook) gegevens op de tijd van overkomst van de waarnemingssatelliet. Verder zijn in eerder ECN-klimaatonderzoek gedetailleerde metingen verricht op dagen dat de satelliet overkwam en op dagen waarop satelliet-retrieval mogelijk was als deze over zou zijn gekomen komen. Ook is toen experimenteel bepaald hoeveel meer zonlicht wordt weerkaatst door de opname van vocht. Deze gegevens zijn gemiddeld en gebruikt bij de retrieval. De reden dat er relatief weinig gegevens zijn op dagen met retrieval is dat de satelliet maar eens in de drie dagen overkomt.

Samen met RIVM werd nagegaan op welke hoogte de aërosolen voorkomen. De reden daarvoor is dat modellen zoals LOTOS de concentratie van het aërosol nabij het aardoppervlak berekenen en dat de berekeningen, zie sectie 2.5 getoetst wordt met concentraties die op grondhoogte worden bepaald. Echter, de satelliet ziet alle aërosol, ook in hogere luchtlagen. Uit een combinatie van gegevens van zonnemetingen en verticale profiling met de Lidar-techniek is gedestilleerd waar de aërosolen zich bevinden. In het winterseizoen kan het aërosol in de zgn. planetaire menglaag voorkomen. In dat geval is het aërosol, dat de satelliet ziet, hetzelfde als wat aan de grond wordt bemeten. De conclusie is dan ook dat de satelliet-retrieval in de winter informatie bevat over de concentratie aërosolen aan de grond. Voor de zomermaanden is de evaluatie nog niet af. Daarvoor moet gebruik gemaakt worden van gegevens uit een nog lopend ander project dat binnenkort gereed is. Wel lijkt het vrijwel zeker dat in alle gevallen meer dan 90% van het aërosol dat uit bronnen aan de grond afkomstig is niet hoger komt dan 3 km.

Opgemerkt mag worden dat EZ het leeuwendeel bijdraagt 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.

2.7 IPCC

ECN werd gevraagd voor de government-review op het eerder genoemde nieuwe Assessment Report van IPCC. Het bevat veertien hoofdstukken van gemiddeld 100 pagina's. De definitieve versie komt in de herfst van 2001 uit. De government-review wordt centraal per land uitgevoerd en ECN was gevraagd hoofdstuk 5 over aerosolen te reviewen en verder in andere hoofdstukken de passages over aerosolen te screenen. Ook moest de Summary for Policy Makers en de Technical Summary worden gescreend en becommentarieerd.

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 forcering door nitraat. Voor koolstof durft men dit wel, d.w.z., dat dit weer is opgesplitst in vier deelgetallen, te weten voor organisch en elementair koolstof onderscheiden naar "biomass-burning" en "fossil-fuel".

De scenario's voor aerosolen 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 policymakers 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 sulfaataerosol"

Opmerkelijk is dat in de summary alleen sulfaat wordt genoemd als aerosolcomponent terwijl uit de berekeningen blijkt dat nitraat de rol van sulfaat gaat overnemen. In het synthesis-report staat dit ook weer verkeerd, en wordt er door ons in de nog lopende review nogmaals op gewezen.

2.8 Monitoring van niet-CO₂ broeikasgassen.

In de schattingen van de emissies van niet-CO₂ 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-CO₂ broeikasgassen verantwoordelijk voor 36% van het broeikas effect; voor de Nederlandse emissies bedraagt dit (door de grote mate van gebruik van aardgas, een CO₂-emissie arme brandstof) iets minder, namelijk 25%. Een aanzienlijk deel van de emissiereductiedoelstellingen op klimaatgebied is dus te behalen door het reduceren van de emissies van deze gassen. Vaak kunnen reducties van emissies van niet-CO₂ broeikasgassen plaats vinden tegen lagere kosten per vermeden equivalent-ton CO₂ dan bij het vermijden van CO₂ emissies zelf. Bovendien kunnen de emissiereducties van de niet-CO₂ gassen reeds op korte termijn effectief worden, hetgeen enige ruimte laat voor meer structurele en onvermijdelijke, maar meer ingrijpende verlagingen van de CO₂ emissies op langere termijn.

Om de onzekerheid in de emissieschattingen te verlagen en het monitoren van de emissieverlagingen van niet-CO₂ 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

concentratieingen 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-CO₂ 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.

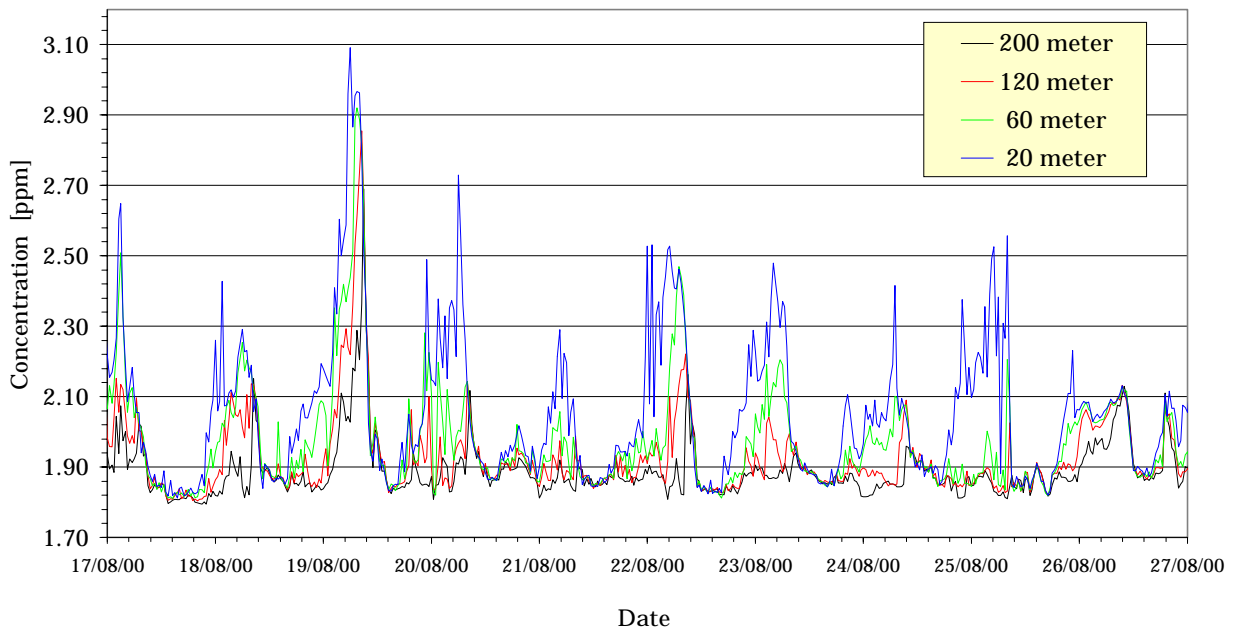
In een eerdere Europese studie is reeds aangetoond dat een goed potentieel bestaat voor de combinatie van metingen met modellen. Recent is een haalbaarheidsstudie verricht door TNO/ECN om dit verder te onderbouwen en een monsternamestrategie en een modelleerstrategie te ontwikkelen. Uit deze studie blijkt 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 gradient 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.

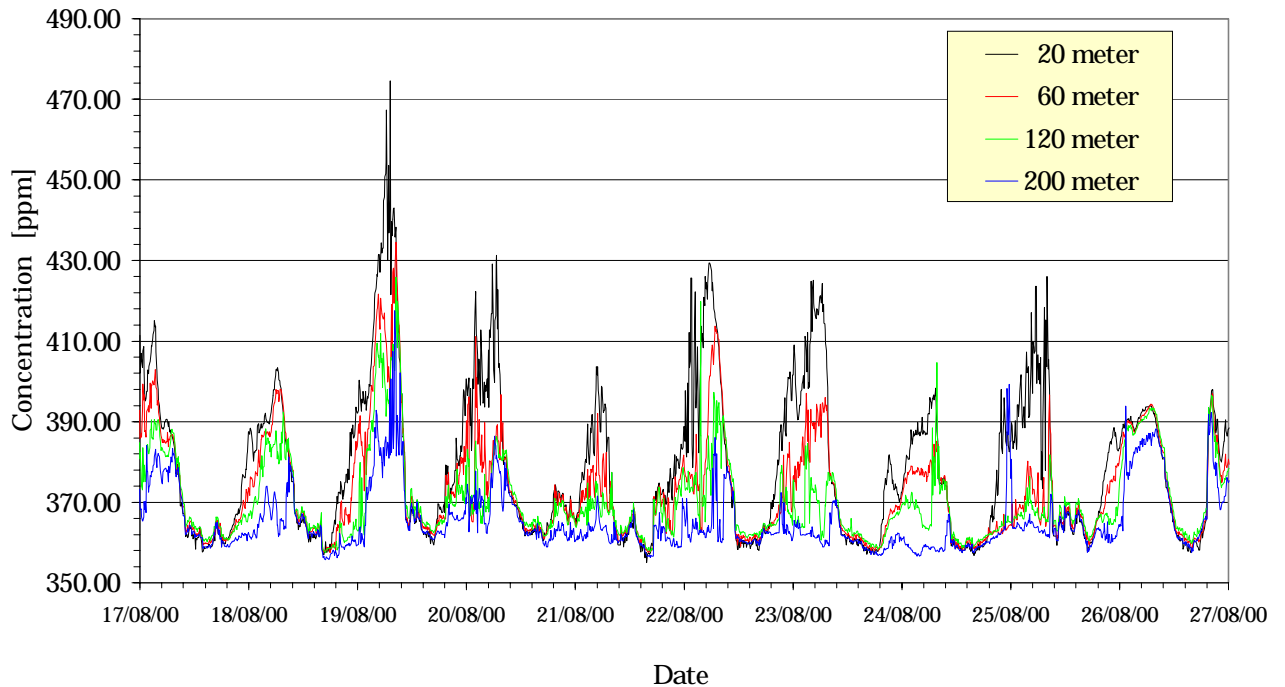
In maart 2000 is in de meetmast van Cabauw weer een meetinstallatie aangelegd voor het monitoren van de verticale gradienten in de concentraties van methaan, lachgas en kooldioxide. De meetmast van Cabauw was in die maand gereed na een ingrijpende renovatie. Vanaf april 2000 was de meetopstelling volledig functioneel. Enkele aanloopproblemen moesten opgelost worden en vanaf juni 2000 draaien alle onderdelen naar verwachting.

Door enkele problemen met de waterstofgenerator en de GC-oven is de uitval bij de lachgas en methaanmetingen tot nu toe wat groter (10%) als bij de vrijwel probleemloze kooldioxide metingen (<5%). Een voorbeeld van de gemeten concentratiegradienten voor kooldioxide en methaan is gegeven in figuren 2.11 en 2.12.

CH₄ concentration at Cabauw August 2000



CO₂ concentration at Cabauw August 2000



Verder is hard gewerkt aan de verbetering van de modelinstrumenten. Doordat via het Europese project RECAB toegang is verkregen tot meteorologische gegevens van het ECMWF, kan ECN nu zelf zogenaamde 3D trajectorijen berekenen voor alle gewenste aankomstpunten en tijden. Voor de berekening hiervan wordt gebruik gemaakt van het FLEXTRA model van de

universiteit van Munchen. Deze berekeningen zijn precieser dan de oude berekeningen en maken het tevens mogelijk om omstandigheden uit te sluiten met ongunstige condities en bijbehorende grote onzekerheden. De aanwezigheid van uitgebreide meteorologische gegevens maken het ook mogelijk om betere schattingen te maken van de menglaaghoogte, een cruciale factor in de beschrijving van de concentratie in de modellen. In het derde kwartaal van 2001 zullen alle gegevens aanwezig zijn om te beginnen met de modelberekeningen gebaseerd op de oude meetreeks (1993-1997) en de nieuwe meetreeks vanaf juni 2000 te Cabauw.

2.9 Aërosolen en gezondheid

Inademen van teveel aërosolen is schadelijk: 6% van de sterfgevallen zijn mogelijk te wijten aan "fijn"stof. (Zo worden de aërosolen in de gezondheidsleer genoemd). Door de EU zijn recent normen vastgesteld voor de maximale massa inadembaar stof, dat bekend is in de regelgeving als "Particulate Matter, ook vaak afgekort tot PM. Een groot deel van deze inadembare fractie zijn aërosolen die ook het sterkst de stralingsbalans beïnvloeden. Maatregelen die in het kader van de PM-kwestie genomen worden hebben derhalve effect op het klimaateffect van 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 met meting op twee hoogten te Cabauw. Ook hier speelt, evenals bij de broeikasgassen, de nauwkeurigheid die gehaald zal moeten worden een belangrijke rol. De metingen zullen begin 2001 van start gaan. In 2000 zijn een aantal kleine studies uitgevoerd voor het ministerie van VROM waarbij gebruik werd gemaakt van de expertise, die mede is opgedaan in het huidige project en die conclusies opleverden die ook voor het effect van aërosolen op de stralingsbalans belangrijk zijn. Deels zijn die al eerder gemeld. Hier bespreken we nog de studie over Secundair Organisch Koolstof (SOC). Dit aërosolmateriaal wordt in de atmosfeer gevormd uit gasvormige organische componenten. Vrijwel alle informatie over deze vorming is afkomstig uit de VS en in het bijzonder uit Los Angeles. Over het Europese SOC is zeer weinig bekend en voor Nederland zijn geen gegevens. Zelfs voor het totale organisch aërosol is er weinig informatie in Europa. Het aandeel secundaire organisch aërosol is daardoor met grote onzekerheid omgeven, en er is door ons daarom een voorlopige schatting gemaakt op basis van extrapolatie van gegevens uit de VS. Wij komen tot een maximale bijdrage van 10% van het secundaire organisch koolstof aan de totale hoeveelheid. In de zomer moet de bijdrage hoger zijn dan in de winter door de grotere fotochemische activiteit. De bijdrage kan zelfs aanzienlijk hoger zijn in episodes van fotochemische smog, bij hoge zonne instraling en dus ook juist de omstandigheid dat de aërosolen zonlicht weerkaatsen; daarom kan de invloed op de stralingsbalans groter zijn dan zou worden afgeleid uit de geringe gemiddelde concentratie.

Opgemerkt moet nog worden dat een deel van de gassen die het secundaire organische koolstof vormen natuurlijke oorsprong is en dat de belangrijkste antropogene bron benzine is waaruit aromatische verbindingen ontsnappen die SOC maken. Belangrijkste natuurlijke bron zijn de bossen die terpenen en vergelijkbare verbindingen emitteren.

2.10 Eurotrac

Hierboven werd veelvuldig gesproken over Eurotrac. Het is onderdeel van het grotere Eureka. Eurotrac is het platform voor het fundamentele atmosfeeronderzoek in Europa. Er doen 600 instituten aan mee. Het programma is onderverdeeld in 12 deelprogramma's op een specifiek onderzoeksgebied. Een deel van het huidige werk is daar ook ingebracht.

Builtjes is de voorzitter van de Scientific Steering Committee en coördinator van het modelprogramma. Ten Brink coördineert het aërosolprogramma, waarin de meting van

aërosolen centraal staat. Aan beide programma's nemen meer dan dertig instituten deel. Daarmee is het ECN-TNO samenwerkingsteam leidinggevend in Europa op het gebied waarop in dit project onderzoek wordt verricht.

Wij stellen ook de jaarrapporten van de deelprogramma's op waarvoor de deelnemende instituten hun individuele rapporten leveren. Daardoor zijn wij ingelicht over de laatste ontwikkelingen op ons terrein.

3. PUBLICATIES EN PRESENTATIES

3.1 Publicaties

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
Aërosol characterization during summer smog events in an urban area (Milan Italy) part 2.
secondary aërosol

Resubmitted after reviewing to J. Geophys. Res.

H.M. ten Brink

Composition/size evolution of the secondary aërosol

Proc. EMEP-WMO workshop on fine particles, Interlaken 22-26 November 1999;
EMEP/CCC-Report 9/2000, 71-74.

H. ten Brink, M. Schulz, J.-P. Putaud, P. Jongejan, E. Plate

Comparison of the collection of ammonium nitrate by various sampling methods
To be published in Proc. Eurotrac-Symposium 2000.

A. Even, H.M. ten Brink, A. Khlystov, A. Smekens, P. Berghmans, R. van Grieken

The influence of black carbon on the crystallization point of NaCl aërosol
J. Aërosol Sci. 31, S336-337.

A. Even, A. Khlystov, G.P.A. Kos, H.M. ten Brink, G.Hoek, M. Oldenwening, J. Hartog

Improvement of BC measurements with the Ambient Particulate Monitor RP5400
J. Aërosol Sci. 31, S897-898.

Harry M. ten Brink, Pauline Dougle, Arja Even

Internal mixing of ammonium nitrate and ammonium sulfate
J. Aërosol Sci. 31, S.899-900

H.M. ten Brink and M.P. Keuken.

Ultrafine particles and carbon from road traffic emissions.
ECN-C-00-037.

A. Even, H.M. ten Brink

Schatting bijdrage secundair organisch materiaal aan PM2.5.
ECN-C-00-038.

Weijers, E., Schaap, M., ten Brink, H.M.

Estimations of the background concentrations of PM10 and sulphate on the northern
hemisphere.
ECN-C-00-039.

H.M. ten Brink

Sampling of PM10 at high relative humidity
ECN-C-00-061.

Vermeulen, A.T., Hensen, A., Erisman, J.W. en Slanina, J.

Sensitivity study of the inverse modelling of Non-CO₂ greenhouse gas emissions in Europe. In: J. van Ham et. Al. (Eds.) Non-CO₂ Greenhouse Gases: Scientific understanding, control and application. Kluwer, the Netherlands, 515-522.

Hensen A, Dieguez Vilar A, Vermeulen AT.
Emission estimates based on ambient N₂O concentrations measured at a 200m high tower in The Netherlands 1995-1997.
In: J. van Ham et. Al. (Eds.) Non-CO₂ Greenhouse Gases: Scientific understanding, control and application. Kluwer, the Netherlands, 153-158.

H.M. ten Brink ed.
1998-Annual Report of Eurotrac-AEROSOL
Eurotrac/GSF Muenchen publish. January 2000

H.M. ten Brink ed.
subproject description Eurotrac-AEROSOL
Eurotrac/GSF Muenchen publish. July 2000

Harry ten Brink (ECN), BertJan Heij (RIVM) en Michiel Schaeffer (KNMI/RIVM).
Verslag AGU-Fall Meeting, 1999

3.2 Presentaties

Eurotrac-Symposium
Garmisch-Partenkirchen, 24-30 maart

H. ten Brink
-Comparison of the collection of ammonium nitrate by various sampling methods:
-Overzicht-presentatie van de posters in de subgroup AEROSOL

European Aërosol Conference
Dublin, 4-10 september
A. Even
The influence of black carbon on the crystallization point of NaCl aërosol

A. Even
Improvement of BC measurements with the Ambient Particulate Monitor RP5400

H. ten Brink
Internal mixing of ammonium nitrate and ammonium sulfate

M. van Loon
Primary and secondary aërosol simulations using LOTOS

Workshop EMEP Task Force on Measurements and Modelling
Geneve, 23-25 oktober

Voorzitter van Working Group III, Modelling of Small Particles (Bultjes). Workshop voorbereid voor modelvergelijking in najaar 2001.

Annual meeting of the American Association for Aërosol Research
St. Louis, 6-10 November
Sjaak Slanina, Harry ten Brink*, Rene Otjes, Piet Jongejan;

Min Hu, Center of Environmental Sciences, Peking University, Beijing, China.
Continuous on-line measurement of aerosol ammonium and ammonia-gas with the steam jet aerosol collector (SJAC).

7th International Conference on Carbonaceous Aerosol
Puerto Rico, 21-24 November
L. Hernandez
The SJAC-collector and ACPM-monitor

Report on the
**Workshop on the Contribution of Nitrate to
the Aerosol Forcing of the Radiation Balance**

ECN-Petten 12-13 April 2000

Introduction

This is a report on the first of a series of meetings to assess the contribution of non-sulfate aerosol to the aerosol radiative forcing. The main aerosol constituents considered by the expert-group involved are nitrate and carbon. The aim of the present workshop was to come to a first-order estimate of the contribution of aerosol-**nitrate** to the aerosol forcing.

Nitrate makes up a substantial fraction of the aerosol in NW-Europe and its radiative forcing is similar to that of sulfate. In other regions of the globe, notably in the US, the nitrate concentrations are also high, but very little information exists on the radiative forcing by this compound outside NW-Europe. Most of the attendees were therefore specifically present for their knowledge and information on aerosol-nitrate.

The meeting was timely, because the new **IPCC-TAR** is presently being prepared. IPCC-TAR stands for the Third Assessment Report of the working group in IPCC dealing with the climate system and its change.

The meeting was divided into sub-topics, with the presentations grouped as shown below. The list of presenters and their affiliations can be found in appendix 1.

- 1. IPCC and role of aerosol/nitrate**
- 2. Measurement methods, physico-chemical properties**
- 3. Modeling of formation and transport and model-validation**
- 4. Aerosol data outside Europe**
- 5. Aerosol radiative forcing calculations**

Presentations

In his opening words the chairman, Slanina, put the issue of radiative forcing in the context of the **political** thinking in the developing world, where CO₂ emissions are rapidly increasing and governments are more concerned with improving the economy than thinking on its climatological consequences. However, for similar reasons there is also a strong opposition in the US to curbing of the emissions of CO₂. The effects of increased greenhouse gases on radiation/climate are masked by the aerosol effects, which hampers decision making. A complication here is that the uncertainty in the aerosol forcing, estimated from modeling, is as large as the "warming" effect by the greenhouse gases. There is therefore a need to improve the knowledge on the aerosol effect.

The meeting was meant to assess the effect of nitrate aerosol on the radiation balance and to draw up a list of conclusions to be distributed in the scientific community for instance via IGBP-IGAC.

Central in the present climate debate are the **IPCC-assessment reports** on which international decision making is based. The series of presentations therefore started with an introduction to IPCC and its assessment reports and the treatment of aerosol in these reports.

1. IPCC and aerosol forcing

Overview of past and present views on aerosol in IPCC-reports

Andreae

The **history** of aerosol in the assessment reports of IPCC was presented by Andreae, one of the lead-authors of the Chapter on aerosol in the TAR (3d assessment report). He gave the background for the neglect of the aerosol forcing in the first version. The reason is of a geochemical nature. In early estimates of the budgets/cycle of atmospheric aerosol the source terms for anthropogenic emissions were considered to be small compared to the natural ones, and it was thus thought that the contribution to the forcing of the radiation balance by anthropogenic aerosol is also small.

In the 2d assessment report (SAR) it was considered that most natural aerosol is coarse and rapidly deposited, while the anthropogenic aerosol has a large fraction in smaller particles which have a low deposition rate. Consequently, the ratio of the atmospheric burden of anthropogenic and natural aerosol is larger than the ratio of the sources. In addition, smaller particles reflect significantly more sunlight than large particles and this leads to a largely increased importance of the anthropogenic aerosol. The discussion in the SAR was focussed predominately of sulfate, and emphasized global mean properties.

The TAR addresses the spatial and temporal structure of the aerosol and the use of satellites to deduce the global aerosol fields. It also describes the contribution of the various aerosol types and chemical constituents like biomass burning and fossil fuel combustion aerosol (both particles mainly consisting of "carbon"). It is concluded that there is more submicron dust aerosol than previously thought.

A discussion arose whether neglect of aerosols in the first assessment report was possibly also policy-driven, to stress the immanence of the global warming.

As to the importance of **nitrate**: in the new TAR, only data of ECN are quoted and two model studies (Van Dorland and Adams). The conclusion is that there is insufficient data on the concentrations and size to warrant a number for the most probable value of the forcing by nitrate.

Detection of climate change and aerosol forcing uncertainty
Khesghi

Khesghi is involved in IPCC-TAR as an author of several chapters. The aerosol effect was put in the perspective of the overall issue of **global change**. An introduction was given to the issue of detection/attribution of global change from temperature trends, indicating how IPCC arrived at the conclusions of a warming trend in the previous report (SAR).

He indicated that perturbations of climate are on a local/regional scale and mentioned that the aerosol effects are analyzed in an a-posteriori way, instead of being fully incorporated in models from the start. **Reconstructions** of recent climate seem to be consistent when sulfate forcing is taken into account.

He stipulated that the largest uncertainty in the radiative forcing by gases and aerosol overall is the indirect aerosol effect.

Because the other experts are less acquainted with this type of studies the sheets of this presentation are added to the present report, as appendix 2.

2. Measurement methods and properties

Measurements of nitrate and organic carbon; data in/near Europe, filter-artifacts
Putaud

He discussed the **classical** way to collect aerosol and to analyze its nitrate content. The conventional method is to sample the aerosol particles by drawing air through filters which are subsequently analyzed. The choice of filter can be essential because some material retain the volatile ammonium nitrate better than others. He presented evidence of evaporation from EU-propagated quartz filters. Also data from the ACE-2 campaign were reported with an estimate of the possible artifacts incurred.

He showed examples of problems with aerosol-carbon similar to that with ammonium nitrate. Carbon is also partly volatile but the sampling artifact is less amenable to a practical solution, because there are so many volatile compounds. A second complication is that the carbon fraction consists of the so-called organic fraction and elemental carbon, with different physical and chemical properties. It is not been satisfactorily established yet how to separate these two types of carbon.

Measurement methodologies, artifact problems and possible corrections, novel methods to avoid them
Slanina

There are combinations of classical techniques which sample artifact-free, but these are labor-intensive, of low sensitivity and prone to contamination by handling and deterioration of the sampled material by storage. It must be realized that nitrate is a fertilizer for bacteria. Measurements of the size distribution of nitrate in the past were often made in areas where the nitrate is present in large particles and in the form of chemically stable components, see also next presentation. This has lead to the common idea that the nitrate is in the coarse particles only.

In a **novel** on-line sampling and detection instrument artifacts do not occur. It is highly sensitive and allows several samples taken and analyzed per hour. In this way climate-

relevant data, i.e. long-term and at the appropriate time of the day, that is when the sun is out, are being obtained. Also data are provided which are synchronized with overpasses of satellites from which aerosol fields are retrieved.

The use of the instrumentation was illustrated with measurements in a chamber in which the volatility of ammonium nitrate was studied. The very first results indicated good agreement with thermodynamic predictions.

Slanina gave the results of an experimental workshop, held a year ago at ECN, at which artifacts in classical sampling of pure ammonium nitrate were studied and the novel detector served as a reference and a means to follow in time the actual concentration.

The system described (SJAC) is presently modified for artifact-free sampling and on-line analysis of carbon in aerosol.

Physico-chemical properties; formation

ten Brink

Discussed the formation of aerosol-nitrate. Nitrate differs from that of sulfate because the emitted NO first oxidizes to nitric acid which is a gas, while the sulfur dioxide oxidizes to sulfuric acid which is an aerosol-component. Nitrate aerosol is formed when the gas reacts with existing alkaline material (carbonates and seasalt). These are mostly larger particles and the nitrate is stable. Nitric acid reacts with ammonia gas to form **new** aerosol material: ammonium nitrate. As mentioned before this type of nitrate is rather volatile. The rule of thumb is that ammonium nitrate does not exist at temperatures higher than 30 C; at temperatures less than 10 C it is the aerosol phase.

In the measurement of the size of the semi-volatile ammonium nitrate similar artifacts are encountered as in filter sampling. There is, indirect, evidence that most of it is in the submicron, most reflective size range.

Ammonium nitrate is highly hygroscopic. The attraction of water gives rise to more reflection of sunlight and a reduction of the volatility.

3. Modeling and validation

Modeling of Aerosols; model results for China

Carmichael

Carmichael reported on the structure of large **scale** models describing the fate of nitrate. He specifically addressed the problem of scaling up from grid size to be used in the vicinity of the sources to the broader regional and global dimensions. This also implies different time-steps and appropriate chemical kinetics for the different scales. He emphasized the need for proper data on emissions of the precursor NO and the associated species active in oxidizing the precursor to nitrate and the need to have reliable data to evaluate outcome and the input against.

Focusing in onto East-Asia, the region where the aerosol is calculated to increase in the present century, he assumes that the nitrate is formed in reaction of the gaseous nitric acid with the alkaline dust of the region. Rather high concentrations were predicted. He also indicated that data are necessary to validate this. Since emission data were not available he and his group went into assessing these on their own account and thus became experts for the region.

Modeling of aerosols with LOTOS

Builtjes

An introduction was given on another type of modeling approach called **data assimilation**. He illustrated this for ozone for which the model has been very designed and extensively used. In feedback loops the model optimizes the outcome towards the measured concentrations, by varying central parameters in the model. This is not to mean that the best fit gives the "real" values, but the method gives the best means to search for the most critical parameters and allows rapid assessment of the regional concentration fields. Obviously a highly parameterized model is required to perform the associated large number of runs. This calls for more generalized descriptions of the aerosol than the modules in the detailed models.

Verification of modeling results

Schaap

Discussed the approach to use LOTOS for nitrate and sulfate modeling. The module that describes the aerosol properties is derived from models in use for detailed regional modeling in Europe (EURAD) and the US. The first aim is to make a reliable data-base for nitrate. He gave examples from Germany where artifact-free data were compared with those at close-by stations where methods with unknown bias were used. A search was made for consistency, or in case of differences correction factors were sought for. The method is now being used in the **screening** of other nitrate data.

He also discussed the testing of the first LOTOS-results with data from the dense network in the Netherlands showing good overlap of measured and calculated data. The reliability of the Dutch data seem rather warranted based on the outcome of last-year's workshop on sampling of ammonium nitrate.

4. Non-European nitrate data

US

Two sheets with unpublished data in the eastern-US and Canada were shown, indicating similar concentrations of nitrate and sulfate.

Aerosol in Asia and Africa; campaigns

Andreae

Andreae discussed data obtained in several recent concerted campaigns with sampling from aircraft.

ACE-2 was performed around Tenerife and it also followed airmasses from the European continent to there. The observations were that in the boundary layer the ratio of nitrate to sulfate was low but in the residual continental boundary layer the concentration of nitrate was about half of that of sulfate.

Sulfate and light-scattering were and are being measured in campaigns in Israel, showing relatively high sulfate burdens in the outflow from Europe. Corollary: because of the high

frequency of clear skies, the forcing is high and also a large body of satellite retrieval data must be available which can be checked against these measurements. In this way the data can be used in quantifying the European outflow.

Aircraft studies were also performed over the Guyanas, where dust plumes and biomass aerosol were encountered, originating from the African continent. There is a large increase in the number of cloud condensation nuclei during regional biomass burning, highly indicative of a large climate effect.

In February 1999 the INDOEX campaign was carried out in the outflow from India in the winter monsoon. Aerosol concentrations were comparable to those in western cities like LA and large forcings were therefore observed; in addition it was seen that black **carbon** concentrations were high, leading to appreciable absorption of solar radiation and warming of the atmosphere.

Brazil

Tavares made concentration measurements around a large **refinery** complex on the east coast. Ammonium nitrate is present as a result of co-located industrial and agricultural activities. Advanced techniques are needed for monitoring. Artaxo could not attend the meeting. He has published on the composition of the aerosol at other sites in Brazil and references to his publications, as recent as 1999, can be found in the newly updated standard work on atmospheric chemistry of Finlayson and Pitts.

China

Hu and Zhang presented recent data from a study on health effects of fine particles in Beijing. The mass of the fine aerosol (PM_{2.5}) was followed in time with automated instruments. The study also addresses the reduction of visibility which, a phenomenon caused by the scattering of light by aerosol, and thus closely related to the reflection of solar radiation in the radiative forcing by aerosol. Probably most important for the aerosol forcing is the peak in the **summer midday**. In spring and summer the contribution of organic material is large.

Also some data on the aerosol optical density, which can be used as a measure for the aerosol forcing, obtained by a sister institute were provided. In winter the OD is 0.4 in summer 0.1-0.2. The latter value is comparable to that obtained in the Netherlands.

5. Aerosol Radiative Forcing

Parameterization for GCM's

van Dorland

Is one of the authors of the chapter on radiative forcing of IPCC-TAR. He described the way the forcing by aerosol and by the gases is being calculated in GCM's. He is one of the two who made an estimate of the global forcing of nitrate. He emphasized the use of the proper RH-values. **Scenario**-studies indicate a large increase in aerosol forcing in the whole of Asia but in Se-Asia in particular. He warned that the seasonality of the forcing must be taken into account and stressed the importance of the reflection (albedo) of the surface relative to the reflection by the overlying aerosol.

An (improved) relation was presented for the aerosol forcing as compared to the standard Charlson formulation, coming from his detailed calculations. He also mentioned his study on the effect of the solar cycle on the solar radiation budget indicating very little influence of this parameter.

Detailed modeling Stordal

The results were presented of the PhD-study by Myhre (lead author in the radiative forcing chapter of the TAR) on the detailed effect of **RH** and hygroscopic growth on the aerosol radiative forcing. The most important outcome is that over seas close to continents, like North Sea and Baltic with the related high RH, the forcing is much higher than over land at the same aerosol loading. Stordal indicated the future plans of NILU, in association with EMEP, to combine modeling of transboundary transport of aerosol with measurement of PM10/2.5 and radiative forcing.

New developments in EMEP Lazaridis

Lazaridis introduced the new generation aerosol models which are being developed by EMEP, describing the formation and change of size/composition of the particles in a fundamental approach. Ideally this whole sequence of process should be treated in a **chronological** way in models describing the forcing. Presently EMEP models are used to describe the transboundary transport of sulfate nitrate and ammonium with a rather empirical models. EMEP coordinates the data on sulfate nitrate and ammonium and associated precursors provided by the European countries and also makes the final quality checks and provides calibration standards and performs intercomparison tests.

General discussion

In the discussion session the chairman asked for ideas to come to an improved assessment of the role of nitrate in the aerosol forcing.

Suggestions were:

1. Nitrate. Construction of the fields from measurement after "clean-up" of data taken with methods with sampling artifacts. Use of sulfate as a reference for minimum and maximum nitrate concentrations based on known or estimated ratios of the two compounds. First estimates of the **size** (distribution) of the particles in which the nitrate is contained, based on data or best reasoning. Assessment of hygroscopicity of the aerosol containing nitrate and -probably most importantly- stability of the ammonium nitrate. This latter determines the distance and time of atmospheric existence and thus importance for instance relative to **sulfate**.
2. Assessing the contribution of **primary** aerosol, now appreciated as being minor, with new inventories combined with modeling and measurements for the health implications of aerosol ("PM2.5 issue").
3. Use of sites and data in the clear skies of **southern- Europe** to test the transport models with satellite retrieval, optical density data and ground concentrations.
4. It seems best warranted for the present group to have a continued **focus** on **nitrate** in the coming year.

Conclusions

The workshop focused on nitrate and thus more definite ideas on the importance of nitrate than on carbon could be expressed. In a coming meeting the latter compound group should be addressed

The general opinion was that the *role of nitrate* was not certain, beyond the range of NW-Europe, but *could be large* over extended regions of a subcontinent provided that the lifetime is long and the nitrate is concentrated in submicron particles with their high reflectivity.

The *lifetime* of nitrate is long when:

- It is in the form of small particles and thus as ammonium nitrate, and
- the volatility is less than given by thermodynamics

More data should be become available especially in regions (of Asia) where emissions of nitrogen oxide and especially ammonia, from agriculture and house-stock, are large. A first practical approach is the use of artifact-free monitoring. This, incidentally, was started in China not long after the workshop.

Follow-up

The workshop let to *bilateral agreements* between the experts and correspondence on the issue of nitrate forcing.

H. ten Brink

Appendix 1 List of experts and affiliation

| Name | Institute | Address | City | Country | telephone | email | Fax |
|------------------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------|-----------------------------------------------|-------------|-------------------|--------------------------------|--------------------|
| Andreae | Prof. Meinrat MPI für Chemie | Postfach 3060 | D-55020 Mainz | BRD | 49-6131-305420 | moa@mpch-mainz.mpg.de | 49-6131-305487 |
| Artaxo | Abteilung Biogeochemie Prof. Paulo Instituto de Física da USP Universidade de Sao Paulo | Rua do Matao, Travessa R, 187 P.O. Box 1 | CEP 05508-900, Sao Paulo 1755 ZG Petten | Brazil | [55](11) 818 7016 | artaxo@if.usp.br | [55] (11) 818 6749 |
| Brink, ten | Dr. Harry Netherlands Energy Research Foundation Bld 04 | P.O. Box 342 | 7300 AH Apeldoorn | Netherlands | 55-549 3038 | p.j.h.builtjes@mep.tno.nl | 55-549 3252 |
| Builtjes Carmichael | Prof. Dr. Peter Prof. Greg Chemical and Biochemical Engineering Iowa State University | 125A CB Postbus 201 | Iowa City IA 52240 | USA | 1-319-335-3333 | gcarmich@engineering.uiowa.edu | |
| Dorland, van | Dr. Rob KINMI Wilhelminalaan 10 | | 3730 AE De Bilt | Netherlands | 0031-202206775 | dorland@knmi.nl | |
| Erisman | Dr. Jan Willem Netherlands Energy Research Foundation Bld 04 | P.O. Box 1 | 1755 ZG Petten | Netherlands | 31 224 564155 | erisman@ecn.nl | 31 224 563488 |
| Hu | Prof. Min Center for Environmental Sciences | | Beijing 100871 | P.R. China | 86-10-62756592 | minhu@ces.pku.edu.cn | 86-10-62751927 |
| Keshgi | Dr. Haroon Peking University Exxon Research and Engineering Cy Route 22 East | Annandale, NJ 08801 | New Jersey | U.S.A. | 001-908-730-2531 | hskhesh@erenj.com | 1-908-730-3301 |
| Lazaridis | Dr. Mihalis NILU Institutsveien 18 | P.O. Box 100 | N-2007 Kjeller | Norway | | lazaridis@nilu.no | |
| Putaud | Dr. Jean-Philippe Comm. of the European Communities | | I-21020 Ispra | Italy | 39-332-789300 | jean.putaud@jrc.it | |
| Schaap | Martijn MSc Joint Research Centre IMAU/TNO/ECN Bld 04 | P.O. Box 1 | 1755 ZG Petten | Netherlands | 31 30 2532212 | m.schaap@phys.uu.nl | 31 30 2543163 |
| Slanina | Prof. Sjaak Netherlands Energy | P.O. Box 1 | 1755 ZG Petten | Netherlands | 0031-224-564236 | slanina@ecn.nl | 0031-224-563488 |

| | | | | | | | |
|---------|----------------|------------------------------------------------------------|-----------------------------|------------|----------------|------------------------|-----------------|
| Stordal | Prof. Frode | Research Foundation Bld 04 NILU Institutsveien 18 | N-2007 Kjeller | Norway | 47-63-898000 | frode.stordal@nilu.no | 47-63-898050 |
| Tavares | Prof. Tania | Instituto de Quimica Universidade Federal da Bahia | 40210 340 Salvador Bahia | Brazil | 55-71-237 5784 | ttavares@ufba.br | 55-71 -245 0844 |
| Zhang | Prof. Yuanhang | Center for Environmental Sciences Peking University | Beijing 100871 | P.R. China | 86-10-62751925 | yhzhang@ces.pku.edu.cn | 86-10-62751927 |

Appendix 2 Presentation by dr Kheshgi

**12 April 2000
ECN Aerosol Workshop
Petten, The Netherlands**

Reconstruction of Aerosol Radiative Forcing: Important Roles in the Climate Change Issue

**Haroon S. Kheshgi
ExxonMobile Research & Engineering Company
Annandale, New Jersey 08801
U.S.A.**

AEROSOL ROLES IN THE CLIMATE CHANGE ISSUE

- **Climate Model/Data Comparisons**
 - Model validation
 - Detection/Attribution of past climate changes
 - Model calibration
- **Forecasts of future impacts/adaptation**
 - Forecasts (vs simulations) include estimated likelihood of outcomes
 - Aerosol effects are one link in the proposed causal chain between human activities and impacts
 - + Understanding aerosols is a necessary, but not sufficient, condition for forecasting impacts
 - Adaptation to climate change depends on climate expectations
 - + Especially local climate change forecasts
- **Characterization of uncertainties critical for decisions**
 - Time, space, magnitude
 - Prospect for reducing uncertainties in the future

DETECTION/ATTRIBUTION OF CLIMATE CHANGE

- **Detection statement primary communication of the IPCC SAR (quoted from the SPM): "The balance of evidence suggests a discernible human influence on global climate"**
 - "This progress has been achieved by including effects of sulfate aerosols..."
- **Model consistency, a weak expression of detection**
 - Given the uncertainty in the climate signal from human activities, and the assumed certainty in natural variability, a climate signal is required for consistency between climate models and data
- **Realistic estimates (including uncertainty) of all important climate factors is needed prior to model/data comparison**
 - Climate modelers make posterior estimates of aerosol effects needed to match climate data

CURRENT STATUS OF AEROSOL EFFECTS

- **Indirect effect of aerosols largest source of uncertainty in global forcing**
 - **Spatial and temporal patterns?**
- **Sensitivity of forecasts to climate models inferred from model intercomparisons**
 - **Differences between aerosol-caused spatial temperature patterns from different climate models larger than the difference between the GHG- and aerosol-caused spatial temperature patterns from a single climate model**
- **Calibration of global energy balance climate models**
 - **Climate data can be used to calibrate both climate model parameters and aerosol forcing parameters**
 - **Results depend on priors -- calibration may, or may not, have an effect on estimates**
 - + **Climate sensitivity**
 - + **Ocean heat uptake**
 - + **Aerosol parameters**
 - + **Data uncertainty**
 - + **Natural climate variability...**
 - **Results expected to improve with future climate data, and better prior estimates**
 - + **High value of information**

AEROSOL FORCING CHARACTERIZATION

- **Current climate data/model comparisons assume:**
 - **Certain temporal pattern of aerosol forcing**
 - **Certain spatial pattern of aerosol forcing**
 - **Uncertain amplitude of aerosol forcing**
- **Statistical characterization of spatial and temporal distribution of past aerosol effects**
 - **Are these certain?**
 - **What is the current characterization of their uncertainty?**
 - **What is the prospect for improving this characterization?**
- **Making use of a statistical aerosol forcing characterization**
 - **Include in definition of hypotheses for climate change detection**
 - **Include as priors in Bayesian parameter estimation for model calibration**
 - **Use to estimate risks of future climate change impacts**
 - **Input to adaptive decision making for precautionary response to climate change risks**