

# Modeliranje ozona in delcev za območje Slovenije z modelskim sistemom ALADIN-CAMx

Marko Rus<sup>\*</sup>, Rahela Žabkar<sup>\*</sup>, Jože Rakovec<sup>\*</sup>

## Povzetek

Za potrebe modeliranja ozona in delcev na območju Slovenije je bil sestavljen modelski sistem, v katerem smo disperzijsko-fotokemični model CAMx povezali z meteorološkim modelom ALADIN. V modelski sistem so bili vključeni tudi podroben opis antropogenih emisij na območju Slovenije in Evrope ter podatki o koncentracijah onesnaževal na stranskih robovih območja modeliranja iz globalnega fotokemijskega modela. V prispevku sta predstavljena opis modelskega sistema ter validacija modelskih rezultatov na dveh izbranih epizodah: v zimski epizodi so bile izmerjene povišane koncentracije delcev v zraku, v poletni epizodi pa povišane koncentracije ozona.

## Uvod

Pri modeliranju onesnaženosti zraka moramo najprej dobro poznati vremensko stanje, v katerem računamo koncentracije onesnaževal. Z vetrovnim poljem določimo advekcijo oz. transport primesi v zraku, razredčevanje teh primesi v zraku pa računamo s pomočjo enačb, ki opisujejo turbulentno difuzivnost. Nekatere lastnosti ozračja (npr. temperatura, vlažnost, optična debelina) dodatno vplivajo tudi na kemijske in fotokemijske pretvorbe snovi ali pa na bolj ali manj učinkovito izločanje snovi iz ozračja (npr. ob padavinah).

Poleg dobrega opisa meteoroloških spremenljivk je potrebno dobro poznati emisije (točkovne in ploskovne) posameznih onesnaževal ter kemijske začetne in robne pogoje (koncentracije onesnaževal na začetku zagona oziroma na robu računskega območja).

Modeliranje onesnaženosti zraka je torej izračunavanje časovnih sprememb količine posameznih primesi v zraku v prostoru, ki nas zanima. V eulerskem načinu je v vsakem volumskem elementu ozračja sprememba količine snovi rezultat vseh prej omenjenih dogajanj: od emisije, preko transporta in disperzije, do izločanja snovi iz ozračja. Osnovna enačba za vsako snov " $I$ " v zraku je torej kontinuitetna enačba in ob predpostavki o brezdivergentnem gibanju zraka izračun koncentracije te snovi temelji na enačbi o ohranitvi te snovi  $c$ . Ker ni mogoče obravnavati dogajanj, ki so manjša od prostorske ločljivosti modela, se v enačbi za povprečne koncentracije snovi  $c_I$  pojavi dodaten člen  $\nabla(K\nabla c_I)$ :

$$\frac{\partial c_I}{\partial t} = -\nabla \cdot (\vec{v}c_I) + \nabla(K\nabla c_I) + \frac{dc_I}{dt}_{viri} + \frac{dc_I}{dt}_{kem} - \frac{dc_I}{dt}_{izpad} \quad (1)$$

V gornji enačbi  $\vec{v}$  in  $K$  predstavljata hitrost vetra in turbulentno difuzivnost; oba se iz kraja v kraj in v času lahko tudi močno spreminjata glede na vremenske pogoje. Torej je za to, da lahko povemo, kako se bo v nekem delu ozračja spreminjala koncentracija primesi v zraku  $\partial c_I / \partial t$ , potrebno poznati emisije (vire) in izpad (suho in mokro depozicijo) te snovi ter kemijske procese v zvezi z njo (nastajanje ali pretvorba v druge snovi). Kam bo veter zanašal snovi in kako se bodo razredčevale, pa je odvisno od vremenskih spremenljivk  $\vec{v}$  in  $K$ . Ker na kemijske pretvorbe vplivajo lahko tudi temperatura zraka, količina kemijsko

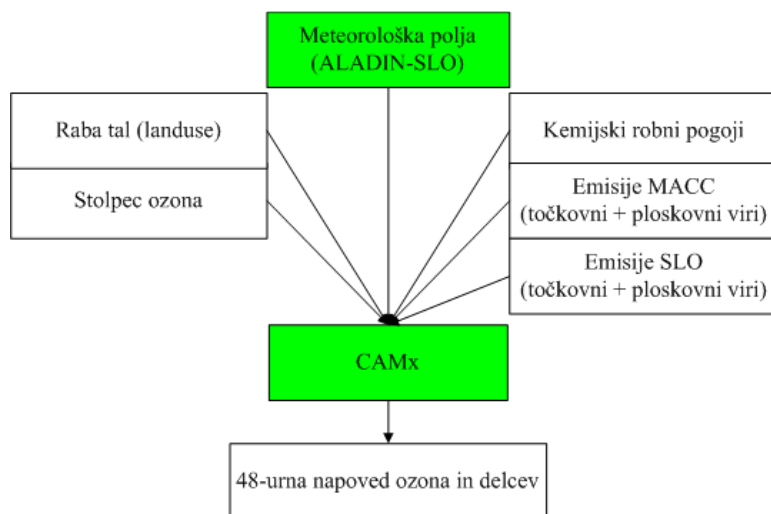
---

<sup>\*</sup> vsi trije: Univerza v Ljubljani, Fakulteta za matematiko in fiziko, Jadranska ulica 19, 1000 Ljubljana

aktivnega sevanja (predvsem sončnega, delno tudi IR), vlažnost zraka itd., se nabor vremensko odvisnih spremenljivk, ki jih je treba upoštevati, lahko tudi precej poveča.

### Modelski sistem ALADIN-CAMx

Za modeliranje ozona in delcev v atmosferi potrebujemo kompleksen model, ki vsebuje matematičen opis vseh procesov, ki pomembno vplivajo na koncentracije onesnaževal v ozračju. Eden takšnih modelov v svetu je model CAMx (Comprehensive Air quality Model with extensions; ENVIRON, 2011), ki je bil s strani US EPA (US Environmental Protection Agency) odobren za modeliranje ozona in delcev v različnih časovnih in krajevnih skalah. Model CAMx je disperzijsko-fotokemični model, ki računa prenos z vetrom, turbulentno difuzivnost, kemijske in fotokemijske pretvorbe snovi v ozračju ter izločanje snovi iz ozračja. Za te izračune potrebuje meteorološka polja, ki jih je potrebno simulirati ločeno z meteorološkim modelom, ter različna druga vhodna polja (podatke o emisijah, geografske spremenljivke, podatke o skupni količini ozona v ozračju). V prispevku opisujemo modelski sistem ALADIN-CAMx, v katerem smo model CAMx povezali z operativnim meteorološkim modelom ALADIN in obenem vključili tudi podroben opis antropogenih emisij na območju Slovenije in sosednjih držav, ter opis koncentracij onesnaževal na robovih območij modeliranja iz globalnega fotokemijskega modela. Na ta način smo pripravili orodje, s katerim je mogoče modelirati ozon in delce na območju Slovenije in sosednjih držav. Poenostavljeno shemo modelskega sistema prikazuje Slika 1.



Slika 1 – Poenostavljena shema modelskega sistema ALADIN-CAMx

#### Vhodna meteorološka polja

Model CAMx za simuliranje zgoraj opisanih procesov potrebuje različna polja meteoroloških spremenljivk: zračni tlak, temperaturo, veter, specifično vlago, oblačno vodo, padavinsko vodo, snežno vodo, padajoče ledene kristale, optično debelino oblakov, koeficient vertikalne turbulentne difuzivnosti, temperaturo tal. Večina od teh meteoroloških polj so neposredni izhodi meteorološkega modela ALADIN in jih je

preprosto vključiti v model CAMx, nekatera polja (oblačna voda, optična debelina oblaka, koeficient turbulentne difuzivnosti) pa je potrebno parametrizirati iz polj meteoroloških spremenljivk, ki so na voljo v modelu ALADIN. Pri parametrizaciji spremenljivk »oblačna voda« in »optična debelina oblaka« so bila dodatno diagnosticirana oblačna polja na podlagi konvektivnih padavin in višine planetarne mejne plasti. Koeficient vertikalne turbulentne difuzivnosti pa je bil izračunan po metodi (O'Brien, 1970), pri čemer je bilo kot vhodni podatek potrebno uporabiti tudi oceno višine planetarne mejne plasti. Maso padajočih ledenih kristalov smo na vseh modelskih nivojih nastavili na vrednost 0. Ta predpostavka je glede na to, da imamo zelo malo primerov, v katerih bi bilo dlje časa v zraku veliko padajočih ledenih delcev oziroma bi njihova količina znatno vplivala na izračun kemije, večinoma upravičena.

#### Dodatna vhodna polja potrebna za izračun (foto)kemijskih reakcij

Za izračun fotokemijskih pretvorb in razmerij so bila v model CAMx vključena nekatera dodatna polja, prikazana v Tabeli 1. V našem primeru smo kot izvirne podatke o rabi tal uporabili podatke USGS s 24 razredi rabe tal, kar je bilo potrebno prekodirati v klasifikacijo z 11 razredi, ki jih uporablja model CAMx. Za oceno celotne količine ozona v stolpcu ozračja v model sproti vključujemo satelitske meritve, delež listne površine je privzet kot v modelu ALADIN, medtem ko je za motnost ozračja zaenkrat izbrana konstantna vrednost.

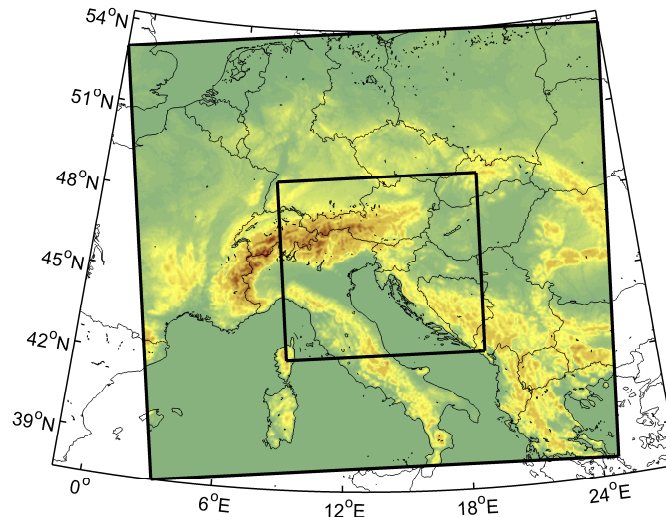
Tabela 1: Vir dodatnih vhodnih polj, potrebnih za izračun fotokemičnih procesov v modelu CAMx.

Dodatna vhodna polja za model CAMx	Vir
raba tal	podatki o »landuse« USGS
UV-albedo	iz vrednosti rabe tal
motnost	privzeta konstantna vrednost
količina ozona v celotnem stolpcu ozračja	<a href="http://toms.gsfc.nasa.gov/ozone/ozone.html">http://toms.gsfc.nasa.gov/ozone/ozone.html</a>
delež listne površine (LAI)	model ALADIN

#### Območje modeliranja

V sedanji konfiguraciji modelskega sistema ALADIN-CAMx je območje modeliranja prilagojeno obstoječi konfiguraciji modela ALADIN/SI na Agenciji RS za okolje (v nadaljevanju ARSO). Zaradi časovne zahtevnosti modela CAMx je bil uporabljen postopek gnezdenja, v katerem imamo dve računski območji (Slika 2). Horizontalna ločljivost notranjega (gnezdenega) računskega območja s 185 x 167 računskimi točkami je enaka ločljivosti operativne konfiguracije modela ALADIN/SI (4,4 km), horizontalna ločljivost zunanjega računskega območja s 145 x 135 računskimi točkami pa je trikrat manjša (13,2 km). Modelske točke v notranjem računskem območju modela CAMx sovpadajo z modelskimi točkami sedanje operativne konfiguracije modela ALADIN, medtem ko v zunanjem računskem območju modela CAMx točke sovpadajo z vsako tretjo točko modela ALADIN. Notranje računsko območje med drugim vključuje tudi industrializirano Padsko nižino, ki s svojimi emisijami ob določenih vremenskih razmerah lahko vpliva na povečano koncentracijo nekaterih pomembnih onesnaževal tudi v Sloveniji.

Vertikalni modelski nivoji v sedanji konfiguraciji se ujemajo z vertikalnimi nivoji v modelu ALADIN, le da imamo v modelu CAMx vključenih le spodnjih 34 nivojev (od skupno 43 nivojev v modelu ALADIN). Računanje disperzije onesnaževal in fotokemijskih pretvorb na zgornjih 9 nivojih namreč zaradi velike nadmorske višine teh nivojev za potrebe napovedovanja kvalitete zraka v plasti zraka blizu tal ni potrebno.

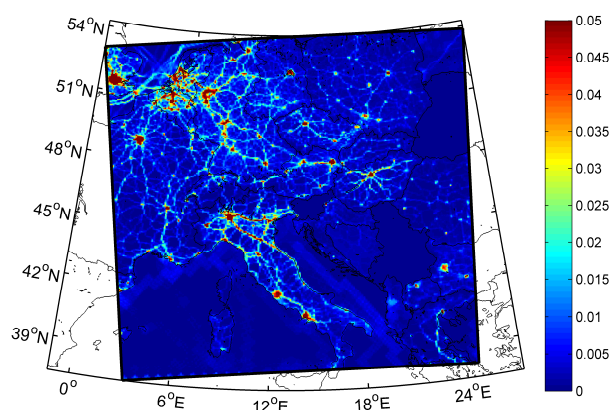


Slika 2 – Območje modeliranja v sedanji konfiguraciji modelskega sistema ALADIN-CAMx. Prikazano je tudi gnezdeno računsko območje.

### Antropogene emisije

Polja antropogenih emisij so bila pripravljena ločeno za območje Slovenije in za druge evropske države. Za območje Slovenije so bili pri teh preračunih uporabljeni podatki, ki so jih pripravili na Agenciji RS za okolje (ARSO), za območje izven Slovenije pa podatki pridobljeni v projektu MACC (Monitoring Atmospheric Composition and Climate, MACC a). V obeh primerih so bile urne vrednosti točkovnih in ploskovnih virov emisij NO<sub>x</sub>, CO, NMVOC, NH<sub>3</sub>, SO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, PM<sub>10</sub> in PM<sub>2.5</sub> preračunane iz letnih emisijskih vrednosti. Za območje Slovenije je bila uporabljena emisijska baza za leto 2009, za druge evropske države pa za leto 2007. Pri izračunu urnih vrednosti iz letnih emisij smo uporabili ocenjene letne, tedenske in dnevne časovne poteke emisij. Poleg tega je bilo za potrebe modeliranja potrebno iz skupnih emisij NMVOC in delcev s pomočjo pretvorbenih tabel ločeno po različnih emisijskih virih pripraviti razdelitev emisij v posamezne podskupine med seboj podobnih organskih spojin oziroma delcev v skladu z zahtevami modela CAMx. Skupno količino emisij NMVOC smo tako za 24 različnih tipov emisijskih virov razdelili med 49 osnovnih skupin spojin, skupne emisije delcev pa za 96 različnih tipov emisijskih virov med 15 različnih vrst delcev. Vsa emisijska polja so bila pripravljena v prostorski ločljivosti 4,4 km, kar je izbrana ločljivost izgrajenega modelskega sistema ALADIN-CAMx, medtem ko je prostorska ločljivost originalnih letnih emisij za območje Slovenije 100 m x 100 m, za območja izven Slovenije pa 1/8° x 1/16°.

Primer vhodnega polja antropogenih emisij za območja izven Slovenije v 4,4 km ločljivosti je prikazan na Sliki 3. V modelski sistem zaenkrat še niso vključena polja biogenih emisij, zaradi česar pričakujemo predvsem podcenjene vrednosti ozona v modelskih rezultatih.



Slika 3 – Polje ploskovnih emisij NO<sub>x</sub> v tonah/h v prostorski ločljivosti 4,4 km na območju modeliranja (izvzeta je Slovenija) na nedeljo v mesecu avgustu ob 6<sup>h</sup> zjutraj.

### Stranski kemijski robni pogoji

Začetna polja koncentracij onesnaževal v zraku modelski sistem prebere iz prejšnje simulacije, oziroma jih nastavi na ničelne vrednosti, če je simulacija začetna; tedaj mora od začetnega zagona modela preteči dovolj časa, da lahko vpliv začetnega stanja na rezultate simulacij zanemarimo. Koncentracije onesnaževal na stranskih robovih modelskega območja pa pridobivamo iz operativnega globalnega fotokemijskega modela MOZART (Model for OZone And Related chemical Tracers) v okviru MACC (MACC b). Horizontalna ločljivost teh modelskih polj je 1,875° geografske dolžine in približno 1,93° geografske širine. Potreben pa je tudi preračun koncentracij spojin modela MOZART v skupine spojin, ki jih obravnava model CAMx.

### Izbor kemijskega mehanizma

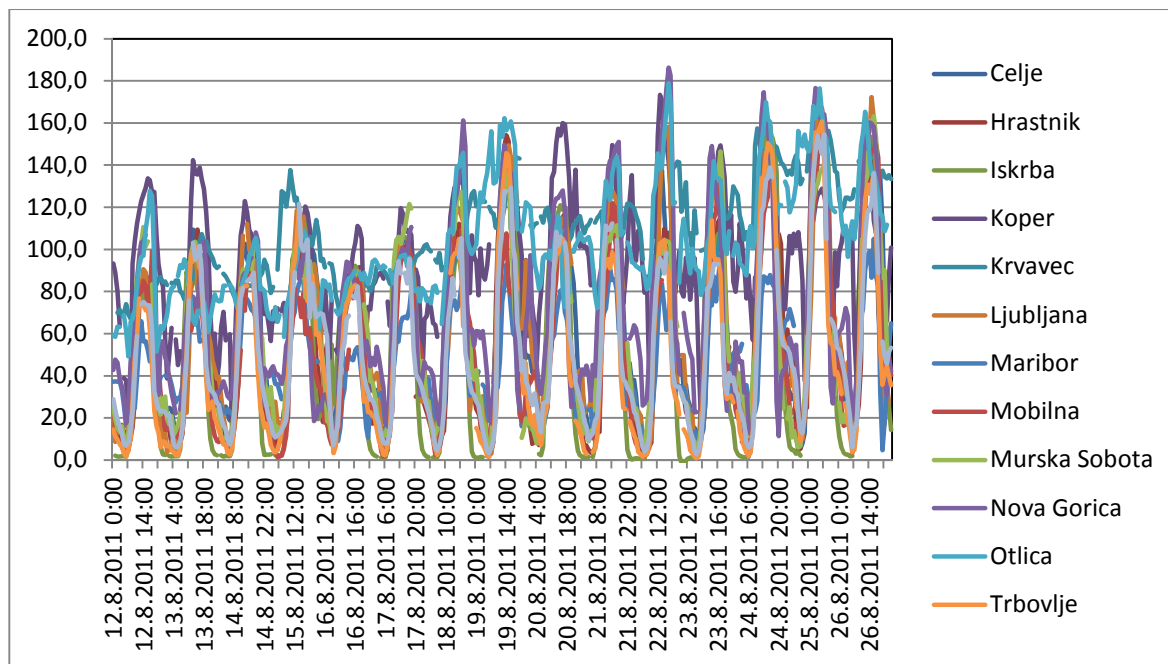
Med kemijskimi mehanizmi, ki so na voljo v modelu CAMx (CB04, CB05, SAPRC99), smo izbrali mehanizem SAPRAC99 (Carter, 2000), ki vključuje 114 različnih kemijskih spojin oziroma skupin spojin, od tega 16 radikalov, 22 skupin delcev in 217 kemijskih reakcij.

### Rezultati simulacij

Za osnovno validacijo modelskega sistema smo izbrali dve epizodi, eno zimsko in eno poletno. Med poletno epizodo so bile izmerjene povišane koncentracije ozona v plasti zraka pri tleh na nekaterih merilnih postajah po Sloveniji, med zimsko pa povišane koncentracije delcev.

## Simulacija v primeru povišanih koncentracij ozona (12. 8. 2011 – 24. 8. 2011)

V drugi polovici avgusta 2011 so bile temperature zraka visoke, dovolj je bilo sončnega sevanja, dinamika v ozračju pa je bila šibka, zato so bili vremenski pogoji ugodni za tvorbo troposferskega ozona. Meritve ozona po Sloveniji so pokazale (Slika 4), da so dnevni maksimumi predvsem na primorskih merilnih postajah (Nova Gorica, Koper, Otlica) dosegali vrednosti tudi do okrog  $180 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (dne 22. 8.), medtem ko so bile drugod po Sloveniji maksimalne izmerjene gostote ozona praviloma (z nekaterimi izjemami, npr. v Ljubljani dne 27. 8.) nekoliko nižje.



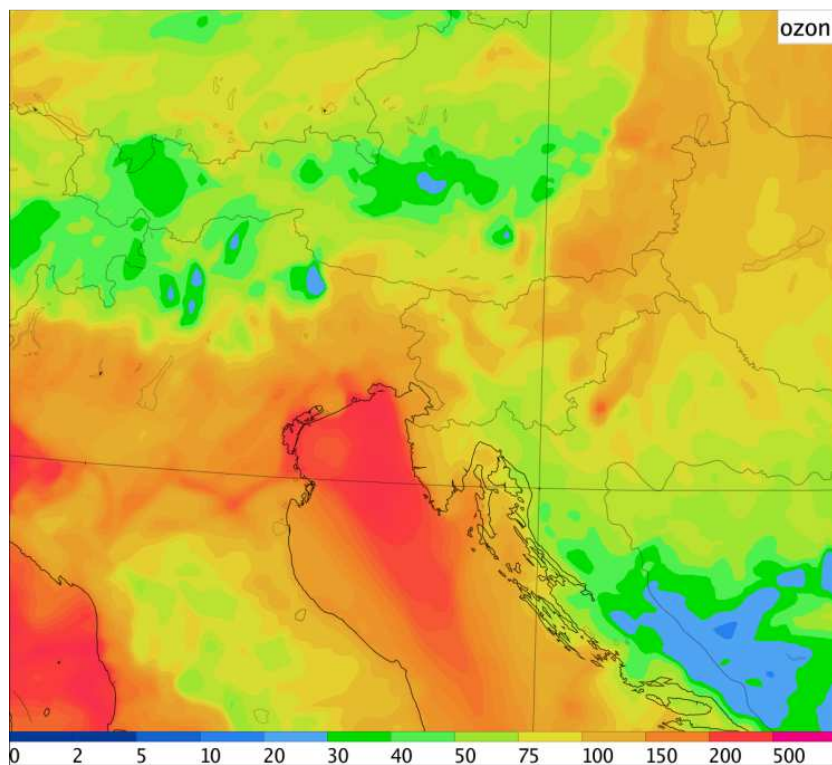
Slika 4 – Izmerjene urne gostote ozona (v  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) na merilnih postajah po Sloveniji v obdobju od 12. 8. do 27. 8. 2011

Primeri rezultatov simulacij na notranjem računskem območju ločljivosti 4,4 km so za ozon prikazani na Sliki 5. Pri rezultatih za ozon je potrebno opozoriti, da so zaradi manjkajočih podatkov o biogenih emisijah simulirane vrednosti ozona podcenjene.

Rezultati simulacij (Slika 5) kažejo, da je v obravnavanem obdobju nad območjem severnega Jadrana, nad nekaterimi območji severne Italije, pa tudi nad Ligurskim morjem zahodno od Italije prišlo do akumulacije onesnažil v zračnih masah. Obenem so bile meteorološke razmere ugodne za pospešeno fotokemijsko aktivnost onesnažil (visoke temperature, šibka dinamika v večjih skalah, dovolj sončnega sevanja pri tleh), kar je nad temi območji vodilo v visoke koncentracije ozona. Vpliv na Slovenijo je imel v tem obdobju severnojadranski bazen onesnaženih zračnih mas, kjer so bile najvišje simulirane vrednosti ozona v dneh 22. 8. in 23. 8. 2011. Zaradi značilnih obalnih zračnih gibanj, ko vetrovi ponoči nosijo zrak s kopnega proti morju, se lahko emisije iz obalnih virov akumulirajo v zračnih masah, ki sicer bolj ali manj stagnirajo nad morjem. Po drugi strani pa podnevi vetrovi nosijo onesnažene zračne mase z morja proti kopnemu. V obravnavanem obdobju je do takšnega vpliva fotokemijskega onesnaženja iznad morja nad kopno prišlo dne 22. 8., ko so bile na vseh treh primorskih merilnih postajah (Koper, Nova Gorica, Iskrba, Slika 4) izmerjene gostote ozona okrog  $180 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Občasno so bile v



obravnovanem obdobju nekoliko višje gostote ozona simulirane tudi lokalno na nekaterih območjih po Sloveniji, vendar so bile vedno bistveno nižje od dovoljenih vrednosti (maksimumi običajno nekje do  $150 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ). V splošnem so bile simulirane vrednosti ozona po Sloveniji podcenjene, kar je med drugim vsaj deloma posledica že omenjenega problema z manjkajočimi biogenimi emisijami.



Slika 5 – Z modelskim sistemom ALADIN-CAMx simulirana onesnaženost zraka pri tleh z ozonom (v  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) na notranjem modelskem območju z ločljivostjo 4,4 km. Prikazano je polje za 22. 8. 2011 ob 15 UTC.

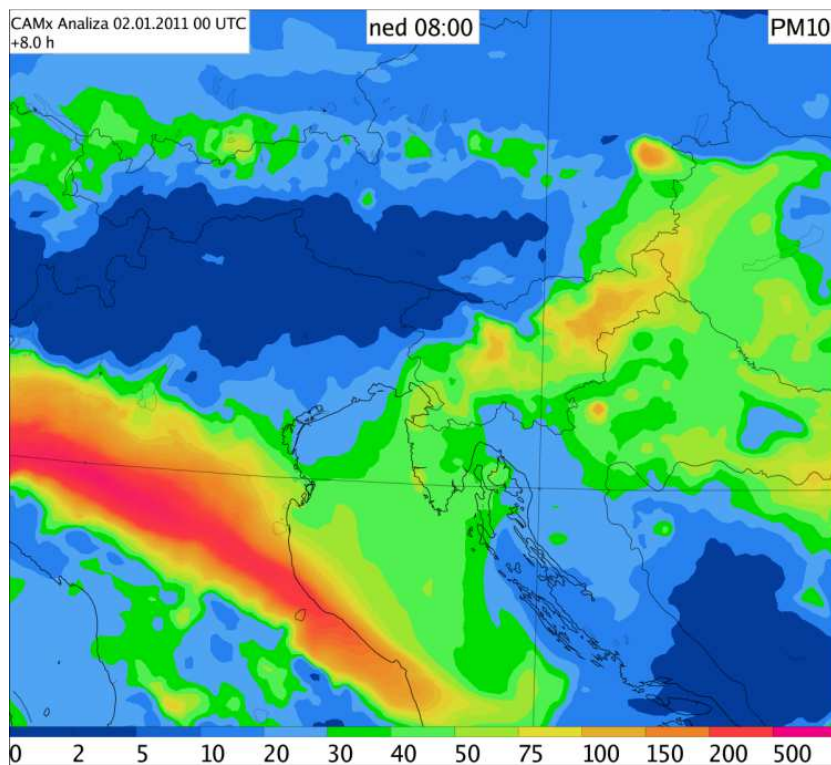
#### Simulacija v primeru povišanih koncentracij delcev (18. 12. 2010 – 4. 1. 2011)

V tem obravnovanem obdobju so bile izmerjene povišane koncentracije delcev v zraku. Najvišje urne koncentracije delcev so v Sloveniji večinoma izmerjene v zimskih mesecih v zgodnjih jutranjih urah, ko je temperaturna inverzija najizrazitejša. Običajno so preseganja izmerjena v večjih mestih.

Zaradi nepoznavanja začetnih koncentracij onesnaževal v ozračju (začetni ničelni kemijski pogoji) smo modelirali dalj časa, podrobneje pa analizirali modelske rezultate za zadnje dni obravnavega obdobja. Na Sliki 6 so vidna obsežna območja povečanih koncentracij delcev, ki se v obliki širokega pasu razprostirajo po Padski nižini od severozahoda proti jugovzhodu. V Sloveniji so koncentracije delcev povečane v okolici večjih mest, kot so Ljubljana, Celje, Maribor pa tudi Murska Sobota. Z višino se onesnaženost hitro zmanjšuje, nad višino temperaturne inverzije je mešanje zraka v vertikalni smeri dosti bolj učinkovito, zato so tudi razlike koncentracij po višini bistveno manjše. Zanimivo sliko dobimo tudi, ko pogledamo vertikalni časovni presek koncentracij v določeni modelski točki, v našem primeru na območju Ljubljane (Slika 7). Lepo se namreč vidi, da so koncentracije delcev največje v zgodnjih jutranjih urah, najmanjše pa

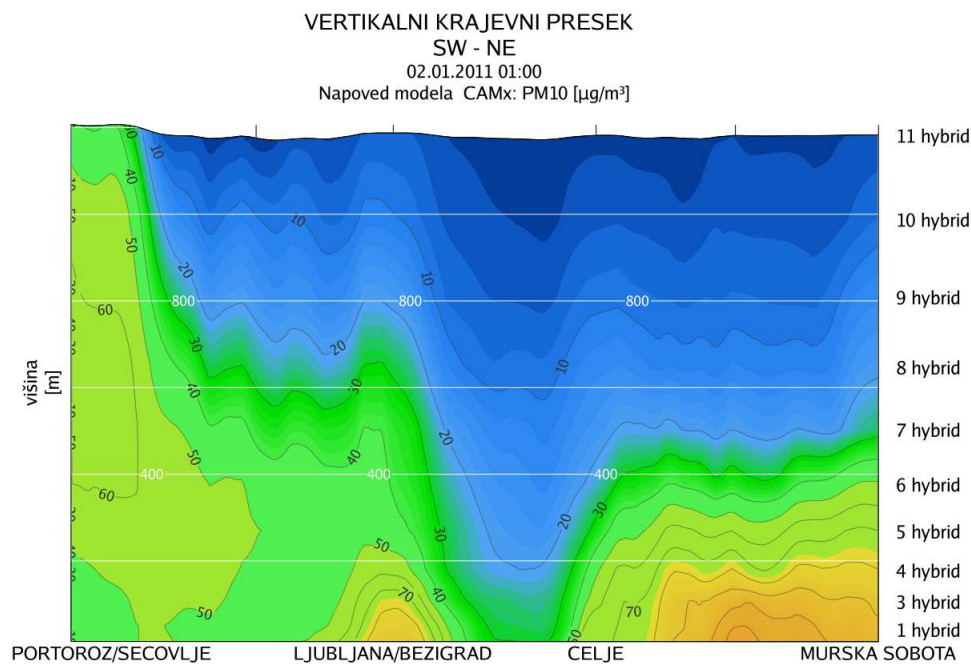
popoldne (ob dveh in treh), ko je ozračje zaradi povečanega sončnega sevanja bolj labilno, posledično vertikalno mešanje izrazitejše, ter višina planetarne mejne plasti zraka višja (Sliki 7 in 8).

Primerjava modelskih rezultatov z meritvami pokaže, da model CAMx v povprečju sicer sledi urnim izmerjenim koncentracijam delcev, so pa modelske koncentracije v primerjavi z izmerjenimi podcenjene (Slika 9). Vzroki razhajanj so lahko v napaki primerjave med meritvijo v točki in modelsko vrednostjo, ki predstavlja povprečno koncentracijo cele modelske celice (4,4 km x 4,4 km x debelina spodnje modelske plasti), ali v drugih virih modelskih napak (npr. negotovosti v emisijah). Poleg tega pa je tudi merilna negotovost urnih meritev koncentracij delcev velika, z zakonodajo predpisane največje še dopustne merilne negotovosti koncentracij delcev so za povprečne dnevne vrednosti namreč kar 50 % (mi pa primerjamo urne koncentracije).

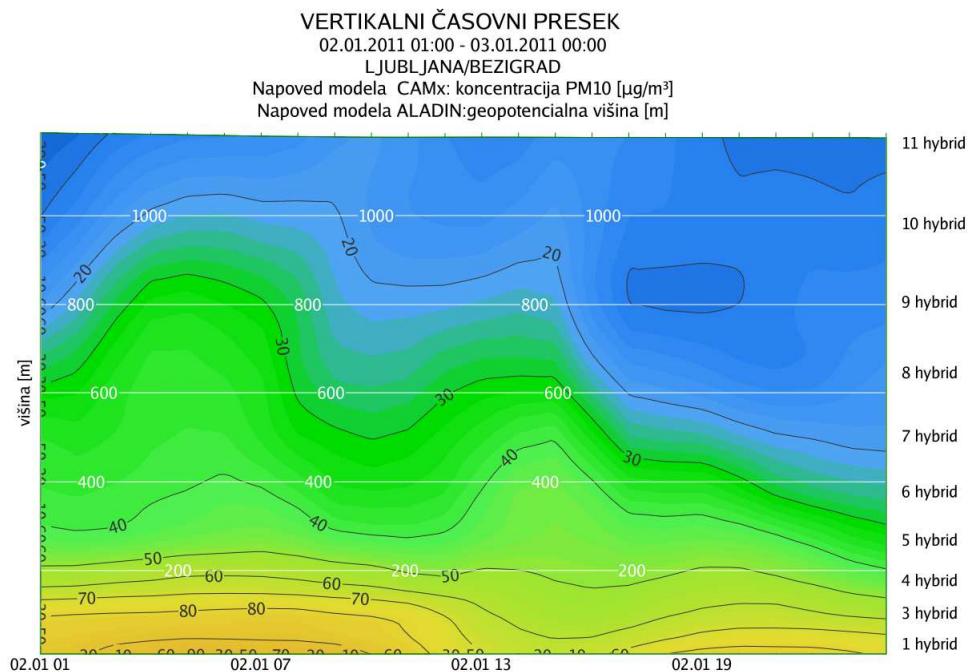


Slika 6 – Z modelskim sistemom ALADIN-CAMx simulirana onesnaženost zraka pri tleh z delci (v  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) na notranjem modelskem območju z ločljivostjo 4,4 km. Prikazano je polje za 2. 1. 2011 ob 8. uri po lokalnem času.

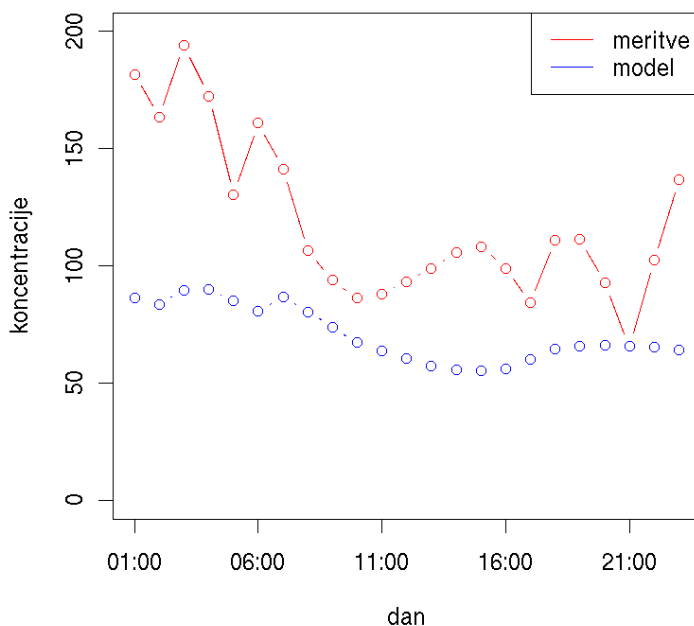




Slika 7 – Vertikalni krajevni presek onesnaženosti zraka z delci iz smeri Postojna proti Murški Soboti preko Ljubljane, Celja in Maribora. Potek je prikazan za 2. 1. 2011 ob 8. uri po lokalnem času.



Slika 8 – Časovni potek onesnaženosti zraka z delci nad modelsko točko, ki je najbližje Ljubljani. Potek je prikazan za čas od 2. 1. 2011 ob 00 do 3. 1. 2011 ob 00.



Slika 9 – Primerjava izmerjenih vrednosti (rdeča) in modelskih vrednosti (modra) količine delcev v zraku pri tleh (v  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) za Ljubljano, pri čemer modelske vrednosti veljajo v modelski točki, ki je najbližje Ljubljani. Časovni potek je prikazan za obdobje od 2. 1. 2011 ob 00 do 3. 1. 2011 ob 00.

### Zaključki

Napovedovanje onesnaženosti zraka z ozonom in z delci z modelskim sistemom ALADIN/CAMx lahko ocenimo za dokaj uspešno. Pri tem je treba upoštevati prostorsko in časovno kvalitativno in kvantitativno ujemanje z resničnimi razmerami v ozračju. Pri tem je del težave ta, da modelska vrednost predstavlja povprečje za celotni modelski volumen okrog vsake modelske točke, medtem ko je meritev reprezentativna za neko točko v prostoru in zgolj njeno bližnjo okolico. Pri delcih je del težave tudi časovno zelo spremenljiva onesnaženost zraka z delci, zato so meritve onesnaženosti z delci za krajša obdobja tudi manj reprezentativne.

Napoved za poletni primer, ko je bila marsikje po Sloveniji zabeležena povečana onesnaženost zraka z ozonom, je bila kvalitativno uspešna, kvantitativno pa so modelske vrednosti nekoliko prenizke glede na izmerjene. To delno lahko razložimo s tem, da zaenkrat še niso vključene biogene emisije predhodnikov ozona, katerih delež je lahko znaten. Za zimski primer povečane onesnaženosti zraka z delci se napoved kvantitativno in kvalitativno dokaj dobro ujema z izmerjeno onesnaženostjo.

### Literatura

- Agencija RS za okolje (ARSO): model ALADIN in podatki o emisijah za Slovenijo  
 Carter, W. P. L., 2000: Documentation of the SAPRC-99 Chemical Mechanism for VOC Reactivity Assessment. Final Report to California Air Resources Board Contract No. 92-329, and 95-308. <http://www.cert.ucr.edu/~carter/absts.htm#saprc99>

ENVIRON, 2011: CAMx User's Guide, Comprehensive Air Quality Model With Extensions  
Version 5.40, ENVIRON International Corporation, Novato, California.  
MACC a: emisije za področje Evrope, [fp://macclient@neptunus.tno.nl/projects/TNO/beno/macc/](mailto:macclient@neptunus.tno.nl)  
MACC b: kemijski robni pogoji, <http://macc.icg.kfa-juelich.de:50080/access>  
MOZART: kemijski robni pogoji: [http://www.gmes-atmosphere.eu/d/services/gac/nrt/nrt\\_fields](http://www.gmes-atmosphere.eu/d/services/gac/nrt/nrt_fields)  
O'Brien, J. J., 1970: A Note on the vertical structure of the eddy exchange coefficient in the  
planetary boundary layer, *J. Atmos. Sci.*, 27, 1213–1215.  
TOMS: <http://toms.gsfc.nasa.gov/ozone/ozone.html>  
USGS: raba tal iz podatkov modela WRF