

# Verso un modello accoppiato meteorologia-chimica per la previsione della qualità dell'aria

Tuccella P., Curci G., Cimini D\*, Visconti G.

CETEMPS, Dipartimento di Fisica, Università degli Studi dell'Aquila, Via Vetoio, 67010 Coppito, L'Aquila, paolo.tuccella@aquila.infn.it

\*IMAA-CNR, C.da S.Loja, Tito Scalo, Potenza

## ABSTRACT.

*Una versione aggiornata del modello WRF/Chem con una nuova parametrizzazione per la produzione degli aerosol secondari organici (SOA) basato sull'approccio Volatility Basis Set (VBS), è stata validata sull'Europa nel periodo Maggio-Giugno 2003. Lo scopo è l'operatività di un nuovo modello di previsione per la qualità dell'aria in grado di simulare anche gli effetti diretti e indiretti degli aerosol. A tal fine la nuova parametrizzazione per i SOA è stata integrata con i moduli del WRF/Chem che simulano il forcing degli aerosol.*

*I risultati del modello, senza il feedback degli aerosol, sono stati confrontanti con le osservazioni superficiali della massa elemental carbon (EC) e organic carbon (OC) della campagna EMEP 2002/2003. Il modello sottostima l'EC del 17% mentre la massa organica degli aerosol (OA) è sottostimata del 38%. L'analisi del rapporto OA:EC rivela che il bias negativo può essere spiegato da una sottostima delle emissioni antropogeniche degli aerosol carbonacei a causa della bassa risoluzione spaziale degli inventari e l'assenza delle emissioni da incendio. La concentrazione di OA predetta dal modello tende a rimanere costante durante tutto il giorno. Il valore del rapporto SOA/OA calcolato dal modello è dell'80%, mentre i SOA biogenici (BSOA) sono circa il 30% della massa totale dei SOA.*

*Infine vi è la discussione preliminare di alcuni risultati ottenuti inserendo l'interazione aerosol-nubi-radiazione all'interno delle simulazioni. In generale, quando si tiene conto del feedback degli aerosol, le performance del modello nella simulazione della concentrazione del  $PM_{2.5}$  e dello spessore ottico delle nubi tendono a migliorare, rispetto ai risultati ottenuti senza il forcing.*

## 1. Introduzione

Una delle maggiori sfide affrontate negli ultimi decenni dalla comunità scientifica internazionale è la previsione della qualità dell'aria (livelli di ozono e di  $PM_{2.5}$ ). Lo scopo della previsione dell'inquinamento atmosferico è la tutela della salute umana. In questo quadro rientra la cosiddetta "short term action", la capacità di prevedere gli episodi severi di inquinamento con qualche giorno di anticipo, in modo da poter avvisare i cittadini, salvaguardare le fasce più deboli della popolazione (bambini, anziani, asmatici, etc.) e soprattutto avvertire le autorità competenti affinché adottino tutte le misure di prevenzione necessarie. In Europa e in Italia, un tool di previsione della composizione chimica giornaliera dell'atmosfera è ormai costituito dai modelli di chimica e trasporto (CTM), (Menut e Bessagnet, 2010).

Uno degli errori che accomuna i CTM è il calcolo degli aerosol organici secondari (SOA), (Menut e Bessagnet, 2010). Ciò è dovuto ad una scarsa conoscenza dei processi di formazione dei SOA basata sull'ossidazione fotochimica dei composti organici volatili (VOC). Inoltre, altre due sorgenti di errore nella simulazione dei SOA sono la stima delle emissioni dei precursori biogenici e gli errori nei dati meteorologici usati come input per i CTM.

In questo lavoro valideremo sull'Europa una nuova parametrizzazione per la produzione dei SOA implementata nell'ultima versione del modello WRF/Chem e riporteremo alcuni test preliminari ottenuti implementando gli effetti diretti e indiretti degli aerosol nella nuova opzione chimica del modello. Il fine ultimo del lavoro è l'operatività di un modello di previsione per la qualità dell'aria con il feedback radiazione-aerosol-nubi non trascurato.

WRF/Chem è un modello "online" accoppiato meteorologia-chimica. Nella versione "tradizionale" descritta da Grell et al. (2005) i SOA sono parametrizzati con il modello SORGAM (Shell et al., 2001) che però produce una scarsa quantità di SOA, con la massa organica totale dominata dagli aerosol organici primari (McKeen et al., 2007; Tuccella et al., 2012).

**Tabella 1 - Configurazione del WRF/Chem**

<b>PROCESSO</b>	<b>OPZIONE WRF/CHEM</b>
Microfisica	Morrison
Radiazione Onde Lunghe	RRTM
Radiazione Onde Corte	Goddard
Strato Superficiale	Monin-Obukhov
Superficie	Noah Lsm
Boundary Layer	MYNN
Cumuli	G3
Fotolisi	Madronich

Il lavoro consiste di 2 sezioni. Nella prima vi è la descrizione del modello, della nuova parametrizzazione per i SOA e dell'implementazione degli effetti diretti e indiretti degli aerosol in quest'ultima. Nella seconda invece, è riportata la validazione del nuovo modello per i SOA tramite le osservazioni di elemental carbon (EC) e organic carbon (OC) e un'analisi preliminare delle simulazioni con il feedback aerosol-nubi non trascurato.

## **2. Il modello WRF/Chem: set-up, parametrizzazione per i SOA, forcing degli aerosols ed emissioni**

In questo studio è stata utilizzata la versione WRF/Chem 3.4 pre-release. Una descrizione di base del modello è data da Grell et al. (2005). Sono state eseguite due simulazioni nel periodo Maggio-Giugno 2003, la prima senza il feedback degli aerosol sulla meteorologia al solo scopo di validare il modello con la nuova parametrizzazione dei SOA, la seconda includendo gli effetti diretti e indiretti degli aerosol per valutarne gli effetti sulla meteorologia e sulla chimica. Nella Tabella 1 sono riportate le parametrizzazioni utilizzate.

Il meccanismo chimico utilizzato è una versione aggiornata (opzione RACM\_ESRL) del Regional Atmospheric Chemistry Mechanism (RACM) che dispone di un ampio range di reazioni gassose e fotolitiche, e di specie organiche e inorganiche (Stockwell et al., 1997). La dinamica degli aerosol è parametrizzata con il Modal Aerosol Dynamics for Europe (MADE) che è costituito da un overlap di tre modi lognormali (Ackermann et al., 1998). La nuova parametrizzazione per i SOA è stata implementata in WRF/Chem da Ahmadov et al. (2012). Essa consiste di un approccio Volatility Basis Set (VBS) di 4 bin. I SOA vengono formati sia dai VOC biogenici che antropogenici. La velocità di deposizione dei vapori condensabili organici (OCV), cioè i prodotti dell'ossidazione dei VOC che condensano sulle particelle, è assunta essere il 25% di quella dell'acido nitrico ( $\text{HNO}_3$ ), in quanto non ci sono valori osservati di questa grandezza.

L'implementazione degli effetti diretti e indiretti degli aerosol nel nuovo meccanismo chimico sopradescritto, è stata eseguita dal nostro gruppo seguendo i lavori di Fast et al. (2006) e Chapman et al. (2009). Per quel che riguarda gli effetti diretti, le proprietà ottiche degli aerosol sono calcolate partendo dalla composizione chimica e dalle dimensioni di questi ultimi (i tre modi della lognormale sono divisi in 8 bin) come funzione della lunghezza d'onda. L'indice di rifrazione totale è determinato con la media di volume per ogni bin, le proprietà ottiche sono ricavate partendo dalla teoria di Mie. L'effetto degli aerosol sulla radiazione incidente è determinato trasferendo i parametri ottici agli schemi radiativi per le onde corte e l'infrarosso. L'implementazione degli effetti indiretti è più complessa. L'attivazione degli aerosol in particelle di nube è basata sul massimo di supersaturazione che è diagnosticata combinando la velocità verticale e i moti turbolenti in combinazione con le proprietà degli aerosol sotto l'assunzione di internal mixing. L'interazione aerosol-nube nelle nubi calde avviene in due modi: gli aerosol influenzano le nubi (attivazione dei nuclei di condensazione) e queste ultime gli aerosol tramite la chimica acquosa e la wet deposition. Per simulare il primo effetto indiretto, la number density delle particelle di nube calcolata nello schema microfisico è data in input allo schema per le

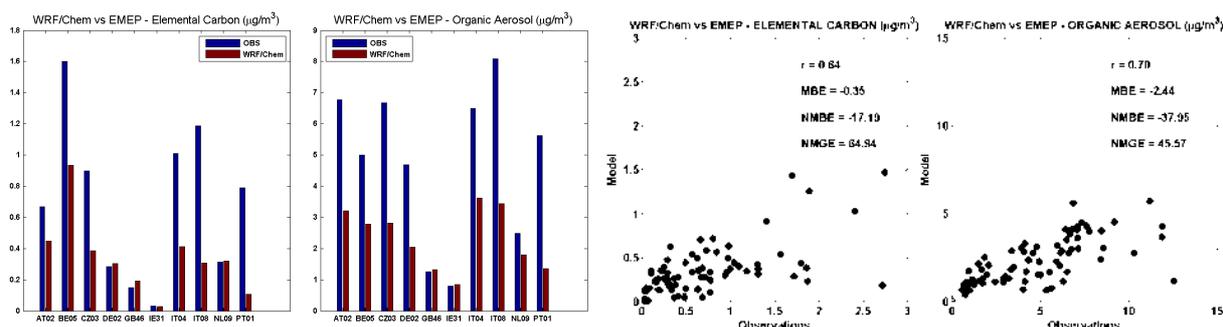


Figura 1. (sinistra) Confronto tra le medie osservate di EC/OA e le simulazioni del WRF/Chem su ogni stazione EMEP inclusa nel dominio. (destra) Scatter plots dei valori osservati e simulati di EC/OA e alcuni indici statistici.

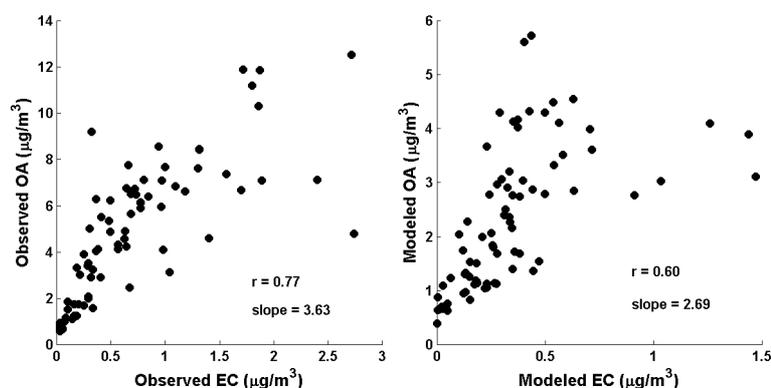


Figura 2. Scatter plots del rapporto OA:EC osservato (sinistra) e simulato (destra). Sono inoltre riportati il coefficiente di correlazione e la pendenza della retta di regressione.

onde corte. Il secondo effetto indiretto è incluso nella microfisica per i processi delle nubi calde, dove le particelle attivate influenzano la precipitazione e il tempo di vita medio delle nubi.

La risoluzione orizzontale utilizzata in questo studio è di 30 Km con 28 livelli verticali che si estendono fino a 50 hPa. La meteorologia è guidata dalle analisi dell'NCEP (ogni 6 ore). Le condizioni al bordo chimiche sono costituite da profili climatologici invariati ricavati dal modello NALROM (Liu et al., 1996).

Le emissioni antropogeniche di  $\text{NO}_x$ ,  $\text{SO}_x$ , CO,  $\text{NH}_3$ , NMVOC e di PM non speciato ( $\text{PM}_{2.5}$  e  $\text{PM}_{10}$ ) sono prese dall'inventario EMEP ([www.emep.int](http://www.emep.int)). Le emissioni di carbonio EC e OC invece sono prese dal Laboratoire d'Aerologie ([www.aero.obsmp.fr](http://www.aero.obsmp.fr)). Le emissioni sono adattate al meccanismo chimico usato nello studio come descritto da Tuccella et al. (2012). Le emissioni biogeniche sono calcolate con il Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature (MEGAN, Guenther et al., 2006).

### 3. Discussione dei risultati

Le simulazioni del WRF/Chem nel periodo Maggio-Giugno 2003 eseguite senza l'interazione radiazione-aerosol-nubi, al solo scopo di valutare le performance del modello nel riprodurre la massa degli aerosol organici, sono confrontate con le misure a terra di EC/OC della campagna EMEP 2002/2003 (Yttri et al., 2007). Le osservazioni consistono di una osservazione giornaliera a settimana. Per considerare tutta la massa organica totale, i dati misurati di OC sono moltiplicati per un fattore 1.6 (Turpin e Lim, 2001).

La Figura 1 mostra il confronto tra le concentrazioni medie osservate di EC e OA ad ogni stazione EMEP e i risultati del modello. Nelle Figura 1 sono inoltre riportati gli scatter plots della massa di EC e OA osservata e simulata da WRF/Chem, insieme al coefficiente di correlazione ( $r$ ), il bias medio (MBE), il bias medio normalizzato (NMBE) e il gross error medio normalizzato

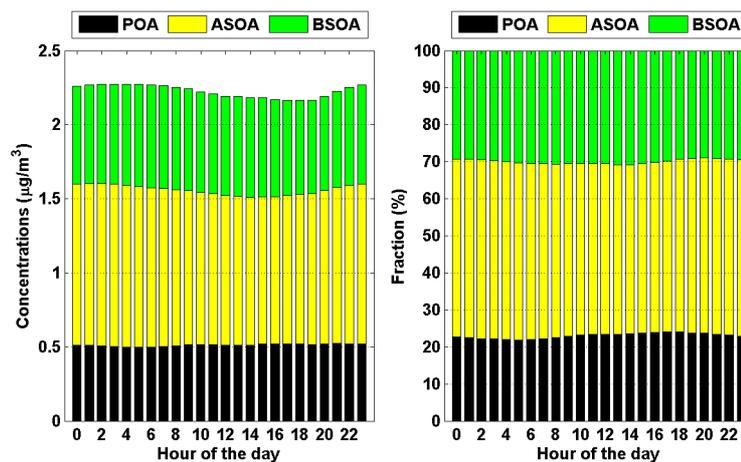


Figura 3. Ciclo diurno medio della composizione dell'OA predetta dal modello e mediata su tutte le stazioni EMEP nel periodo Maggio-Giugno 2003. (sinistra) Variazione diurna della composizione dell'OA. (destra) Variazione media diurna della frazione di ogni costituente dell'OA.

(NMGE). Il WRF/Chem riproduce le osservazioni di EC e OA con un  $r$  di 0.64 e 0.70. Benché il modello sia in accordo con i valori più bassi della distribuzione, esso tende generalmente a sottostimare le misure. L'EC è simulato con un MBE di  $-0.35 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (-17%), mentre la massa organica predetta presenta un bias rispetto alle misure di  $-2.44 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (-38%). Una possibile spiegazione di queste sottostime potrebbe essere attribuita alla scarsa risoluzione dell'inventario delle emissioni degli aerosol carbonacei (circa 50 Km) e all'assenza delle emissioni da incendio, che nel periodo primaverile sull'Europa contribuiscono dal 5 al 35% allo spessore ottico degli aerosol (Barnaba et al., 2011). Infatti l'analisi del rapporto OA:EC, i cui scatter plots sono riportati nella Figura 2, rivela che il WRF/Chem sottostima la correlazione osservata e la pendenza della retta del rapporto in questione. I valori predetti dal modello 0.60 e 2.69 rispettivamente, contro quelli osservati di 0.77 e 3.63. In più il lettore dovrebbe considerare che la configurazione del modello adottata in questo studio, tratta gli aerosol solo nei modi di nucleazione e accumulazione, mentre le misure sono riferite al  $\text{PM}_{10}$ . Putaud et al. (2010) hanno dimostrato che sull'Europa, l'EC e l'OA contribuiscono per l'1-15% al  $\text{PM}_{\text{coarse}}$ . Infine, un'altra sorgente d'errore potrebbe essere costituita dall'assunzione fatta sulla velocità di deposizione dei vapori condensabili organici

La Figura 3 mostra il ciclo diurno della massa organica predetta sopra le stazioni EMEP. Le concentrazioni di OA primario (POA), dei SOA antropogenici (ASOA) e biogenici (BSOA) sono costanti per quasi tutto il giorno. Il rapporto SOA/OA simulato è di circa il 80%, al limite del 50-80% osservato sull'Europa (Jimenez et al., 2009). Inoltre il rapporto BSOA/SOA è di circa il 30%, ma sulle stazioni dell'Europa meridionale raggiunge il 50%.

Passiamo ora ad analizzare i risultati delle simulazioni ottenute con l'attivazione degli effetti diretti e indiretti degli aerosol. Diversi lavori in passato hanno evidenziato come l'introduzione del feedback degli aerosol produca profondi cambiamenti nei campi meteorologici e chimici rispetto alle simulazioni in cui il forcing è trascurato. Forkel et al. (2011) hanno mostrato che sull'Europa l'introduzione degli effetti indiretti può portare anche fino al 70% in meno del contenuto di acqua liquida nelle nubi e variazioni nella precipitazione all'interno del  $\pm 100\%$ . La domanda che ci poniamo è la seguente: l'introduzione degli effetti diretti e indiretti degli aerosol porta ad un miglioramento della simulazione dei campi meteo e chimici? Per rispondere alla domanda è stata eseguita una simulazione preliminare con il feedback degli aerosol incluso dal 10 al 19 Maggio 2003 ed i risultati sono stati confrontati con quelli della simulazione di base senza forcing.

Nella Figura 4 è riportato il confronto tra i dati di  $\text{PM}_{2.5}$  osservati alle stazioni dell'EMEP e quelli simulati dal WRF/Chem con e senza il feedback degli aerosol. Nella seconda simulazione le prestazioni del modello tendono a migliorare, infatti il coefficiente di correlazione passa da

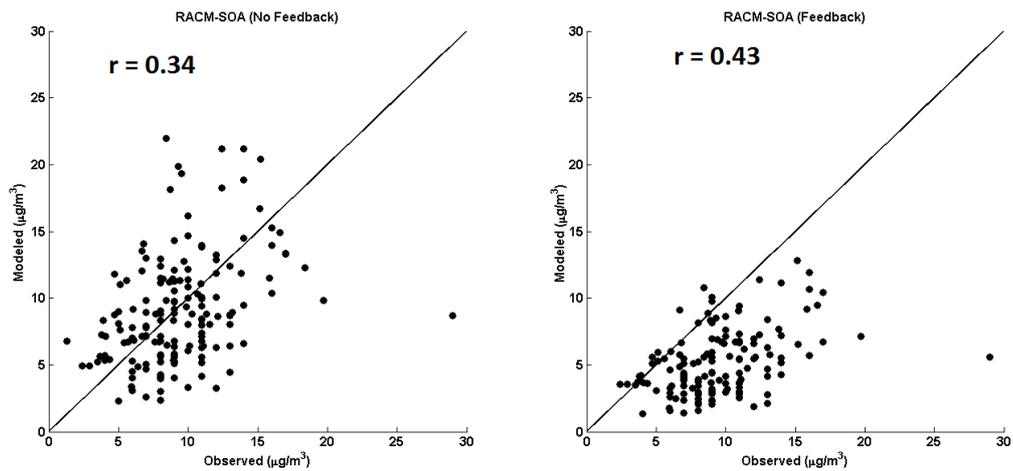


Figura 4. Scatter plots del  $PM_{2.5}$  osservato alle stazioni dell'EMEP e simulato dal WRF/Chem senza (sinistra) e con (destra) gli effetti diretti e indiretti degli aerosol.

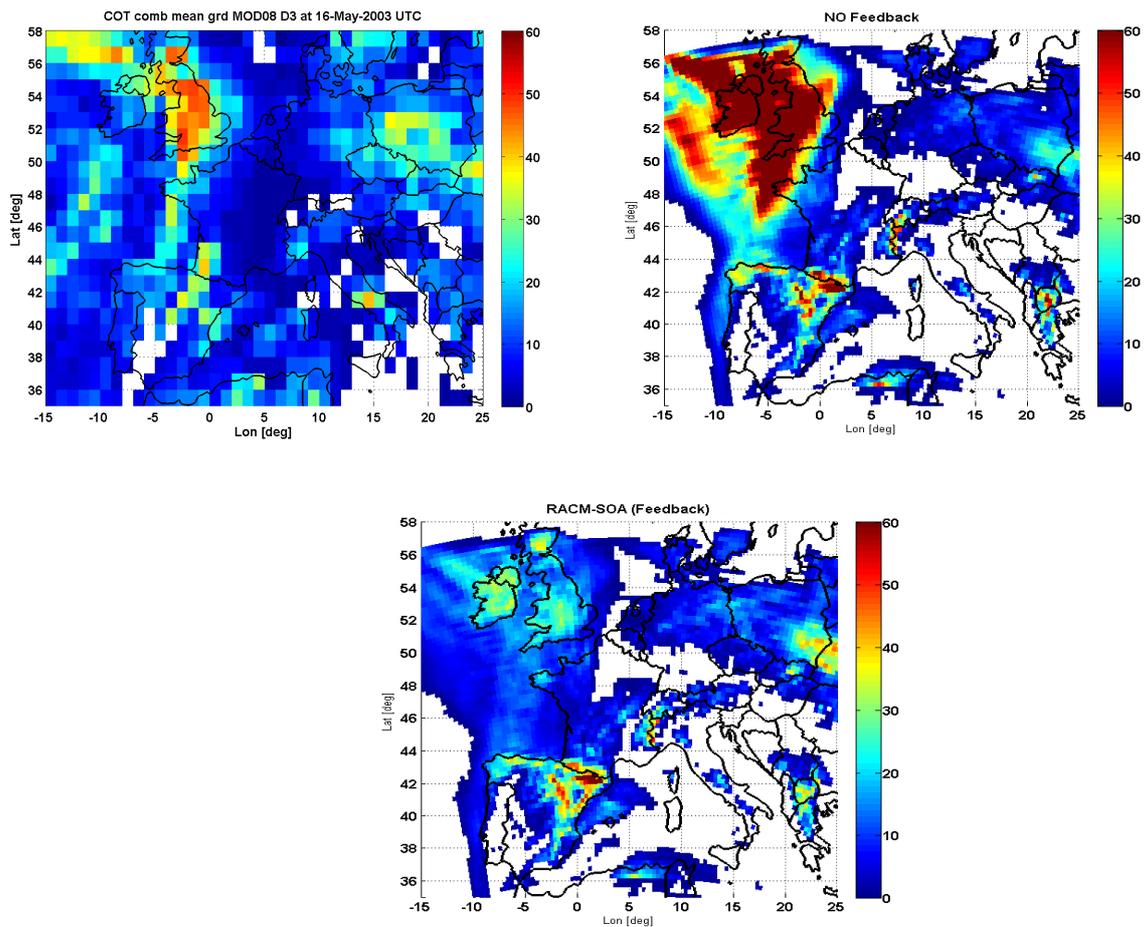


Figura 5. Confronto tra lo spessore ottico delle nubi (COT) medio osservato dal satellite MODIS (in alto a sinistra) il 16 Maggio 2003, con quello simulato dal WRF/Chem nelle simulazioni con (in alto a destra) e senza (in basso) il forcing diretto e indiretto degli aerosol.

0.34 della prima a 0.43 della seconda, insieme ad una riduzione dello spread dei dati attorno alla bisettrice del primo quadrante.

Il confronto con lo spessore ottico delle nubi (COT) osservato dal satellite MODIS è riportato nella Figura 5. Anche per queste grandezza, l'introduzione del feedback conduce ad un netto miglioramento delle prestazioni del modello. A ridosso delle Isole Britanniche, sulla Spagna, dei Balcani, dell'Europa Centrale e dell'Est, nella seconda simulazione si osserva una netta riduzione del bias con le osservazioni rispetto alla prima.

#### 4. Conclusioni

Una versione aggiornata del WRF/Chem con una nuova parametrizzazione per la produzione degli aerosol organici è stata validata sull'Europa con misure superficiali di EC e OC. Benché il modello riproduca le osservazioni degli aerosol organici con una correlazione abbastanza alta, esso tende a sottostimarne la massa probabilmente a causa delle sottostima delle emissioni antropogeniche primarie e all'assenza delle emissioni da incendio.

Allo scopo di avere un modello operativo per la previsione della qualità dell'aria che includa nelle previsione gli effetti diretti e indiretti degli aerosol, i moduli del WRF/Chem per il calcolo dell'interazione radiazione-aerosol-nubi sono stati integrati all'interno della nuovo modello per i SOA. Da alcuni test preliminari è emerso che le simulazioni condotte con il feedback riproducono meglio le osservazioni della massa del PM<sub>2.5</sub> e dello spessore ottico delle nuvole.

#### Ringraziamenti

Questo lavoro è stato finanziato dall'Università degli Studi dell'Aquila e dalla Regione Abruzzo nell'ambito del progetto "Reti per l'alta formazione" (P.O.F.S.E. 2007-2013), e dall'Agenzia Spaziale Italiana nell'ambito del progetto PRIMES (contratto I/017/11/0). Paolo Tuccella è grato alla National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA) di Boulder (Colorado, USA) per l'ospitalità.

#### Bibliografia

- Ahmadov, R., et al.: *A volatility basis set model for summertime secondary organic aerosols over the eastern United States in 2006*, J. Geophys. Res., 117, 2012.
- Ackermann, I. J., et al.: *Modal aerosol dynamics model for Europe: development and first applications*, Atmos. Environ., 32, 1998.
- Barnaba, F., et al.: *An important fingerprint of wildfires on the European aerosol load*, Atmos. Chem. Phys., 11, 10487–10501, 2011.
- Chapman, E. G., et al.: *Coupling aerosol-cloud-radiative processes in the WRF/Chem model: investigating the radiative impact of elevated point source*, Atmos. Chem. Phys., 9, 945-964, 2009.
- Fast, J. D., et al.: *Evolution of ozone, particulates, and aerosol direct radiative forcing in the vicinity of Houston using a fully coupled meteorology-chemistry-aerosol model*, J. Geophys. Res., 111, 2006.
- Forkel, R., et al.: *Effect of aerosol-radiation feedback on regional air quality e A case study with WRF/Chem*, Atmos. Environ., in press, 2011.
- Grell, G., et al.: *Fully coupled "online" chemistry within the WRF model*, Atmos. Environ., 39, 6957-6975, 2005.
- Guenther, A., et al.: *Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature)*, Atmos. Chem. Phys., 6, 2006.
- Jimenez, J. L., et al.: *Evolution of organic aerosol in the atmosphere*, Science, 326, 1525, 2009.
- Liu, S. C., et al.: *Model study of tropospheric trace species distributions during PEM-West A*, J. Geophys. Res., 101, 1996.
- McKeen, S., et al.: *Evaluation of several PM<sub>2.5</sub> forecast models using data collected during the ICARTT/NEAQS 2004 field study*, J. Geophys. Res., 112, 2007.
- Menut, L., B. Bessagnet: *Atmospheric composition forecasting in Europe*, Ann. Geophys., 28, 61-72, 2010.
- Schell, B., et al.: *Modeling the formation of secondary organic aerosol within a comprehensive air quality model system*, J. Geophys. Res., 106, 2001.

Stockwell, W., et al.: *A new mechanism for regional atmospheric chemistry modeling*, J. Geophys. Res., 102, 1997.

Tuccella, P., et al.: *Modeling of gas and aerosol with WRF/Chem over Europe: Evaluation and sensitivity study*, J. Geophys. Res., 117, 2012.

Turpin, B. J., and H.-J. Lim 2001: *Species contributions to PM<sub>2.5</sub> mass concentrations: Revisiting common assumptions for estimating organic mass*, Aerosol Sci. Technol., 35, 602–610, 2001.

Yttri, K. E., et al.: *Elemental carbon and organic carbon in PM<sub>10</sub>: A one year measurement campaign within the European Monitoring and Evaluation Program EMEP*, Atmos. Chem. Phys., 7, 5711-5725, 2007.

Zhang, Y.: *Online-coupled meteorology and chemistry models: history, current status, and outlook*, Atmos. Chem. Phys., 8, 2895-2932, 2008.