

Experimentele studies van veranderingen in de atmosfeer (ESAC) Synthese
--

Wetenschappelijke beweegredenen en doelstellingen van het onderzoek

De samenstelling van de aardatmosfeer verandert door de snelle toename in de concentraties van een aantal gassen die het stralings- en het chemisch evenwicht van de atmosfeer beïnvloeden, en die geloosd worden aan het aardoppervlak, voornamelijk ten gevolge van menselijke activiteiten. Deze verhoogde emissies wijzigen de toestand van de ozonlaag, de stralingsbalans en dus het klimaat op aarde, alsook het oxiderend vermogen van de atmosfeer. Er is ook vastgesteld dat het gebied van de hogere troposfeer en de lage stratosfeer een bijzondere rol speelt in deze wijzigingen, omdat het hier is dat de uitwisseling plaatsgrijpt van gassen tussen de troposfeer, waar de emissies plaatsgrijpen, en de stratosfeer, en omdat dit gebied in grote mate de stralingbalans van de atmosfeer bepaalt.

Een betere kennis van de samenstelling van de atmosfeer, vanaf de grond tot in de stratosfeer, is fundamenteel om de huidige toestand en zijn veranderingen te verstaan, en om de toekomstige evolutie van het aards milieu te voorspellen. Op die manier kunnen regulerende maatregelen betreffende de menselijke activiteiten getroffen worden op grond van een degelijke wetenschappelijke basis. Dit kan echter alleen waar gemaakt worden indien men beschikt over een uitgebreide reeks van elkaar aanvullende waarnemingen waaronder grondwaarnemingen, waarnemingscampagnes met vliegtuigen en ballonnen, en wereldwijde satellietwaarnemingen. Dit vereist tevens het verbeteren van de mogelijkheden om de troposfeer te peilen. Daarnaast moeten de meetresultaten vergeleken worden met numerieke modelberekeningen en erin geïntegreerd worden.

ESAC heeft bijgedragen tot het onderzoek van het gedrag van ozon en vele andere sleutel bestanddelen in de stratosfeer en de troposfeer, met waarnemingen in vier Europese stations, aangevuld met wereldwijde satellietwaarnemingen. Het onderzoek omvat de lange termijn waarneming en de evaluatie van de stralings-, dynamische en chemische mechanismen die aan de basis liggen van de waargenomen variabiliteiten en veranderingen. De vier stations zijn Ukkel (België, 50.5°N, 4.3°E), Jungfraujoch in de Zwitserse alpen (46.5°N, 8°E), Harestua (Noorwegen, 60.2°N, 10.7°E), en Observatoire de Haute Provence (Frankrijk, 44°N, 6°E). Ze maken deel uit van het internationaal 'Network for the Detection of Stratospheric Change'. Daarnaast werd er ook gewerkt aan de verbetering van de troposferische waarnemingen, waarbij in het bijzonder de vroegere ATMOS/Space Shuttle gegevens verder geanalyseerd werden om de mogelijkheden na te gaan van infrarood technieken vanuit de ruimte voor de studie van de hoge troposfeer. Lange termijn waarnemingen van de UV instraling is voortgezet in Ukkel, in overeenstemming met internationale kwaliteitsstandaarden. De waarnemingen van de atmosfeer werden ondersteund door numerieke modellen en door laboratoriumexperimenten die de fundamentele spectroscopische data opleveren die nodig zijn in de modellen en de analyses van spectrale waarnemingen.

Het onderzoek kadert in meerdere Europese en internationale onderzoeksprogramma's.

Deelnemers

Het project werd uitgevoerd door vier Belgische onderzoeksgroepen, in nauwe samenwerking met internationale collega's. Het gaat om het Koninklijk Meteorologisch Instituut van België, de "Groupe Infra-Rouge de Physique Atmosphérique et Solaire" van de Université de Liège, het "Laboratoire de Chimie Physique et Moléculaire" van de Université Libre de Bruxelles, en het Belgisch Instituut voor Ruimte Aeronomie dat als coördinator optrad. Een intense samenwerking tussen de deelnemers kwam tot stand door het delen van mankracht en instrumenten voor het uitvoeren van waarnemingen, en door de uitwisseling van gegevens en expertise bij de analyse en de interpretatie van de metingen.

Resultaten

Dankzij het ESAC project waren de Belgische deelnemers in staat om de lange termijn waarnemingen van de samenstelling van de atmosfeer in de vier bovengenoemde grondstations verder te zetten. De volgende instrumenten werden gebruikt: Fourier transformatie spectrometers, UV/zichtbaar-licht Differential Optical Absorption Spectroscopy (DOAS) instrumenten, UV-zichtbaar-licht stralingsmeters, waaronder Dobson en Brewer instrumenten, en ozonsondes. De bestaande tijdreeksen van atmosferische gegevens werden op consistente wijze aangevuld. Waar nodig werden de series herzien en gehomogeniseerd. De synergie met satellietdata werd geëvalueerd en benut. Nauwkeurige laboratorium data, relevant voor het atmosferisch onderzoek, werden verzameld.

De lange termijn observaties op Jungfraujoch

De tijdreeksen op Jungfraujoch gaan terug tot 1985, sommige tot het midden van de zeventiger jaren, en enkele zelfs tot 1950. Ze zijn uiterst belangrijk gebleken om de variabiliteiten en veranderingen van een groot aantal atmosferische componenten te identificeren. Deze zijn ozon, de stratosferische componenten die ozon afbreken (zoals halogenen), een aantal stralingsactieve gassen ("broeikasgassen") zoals methaan en koolstofdioxide, die het klimaat op aarde beïnvloeden, en brongassen uitgestoten bij de grond, vaak door menselijke activiteiten, zoals CFK's en HCFC's.

Belangrijke kenmerken van de evolutie van de aardse atmosfeer die op Jungfraujoch konden waargenomen worden zijn:

- De omkeer van de snelheid van verandering van de anorganische chloorbelasting in de stratosfeer, in 1997-1998. Aangezien het 3 tot 5 jaar duurt vooraleer de langlevende chloorverbindingen de troposfeer verlaten om in de midden stratosfeer te belanden, is dit in overeenstemming met de waargenomen afname van de totale hoeveelheid organisch chloor in de troposfeer (representatief voor de bron) in 1994. Deze waarnemingen zijn in overeenstemming met modelberekeningen die de overeenkomsten van het Protocol van Montreal en zijn amendementen in rekening brengen.
- De blijvende toename, hoewel vertraagd, van de anorganische fluor concentraties in de stratosfeer, dit in tegenstelling tot de afname van chloor. Op dit ogenblik kan deze waarneming niet verklaard worden aan de hand van modellen of verwante waarnemingen.
- De afname van de NO₂ kolom, tot maximaal 45% begin 1992, ten gevolge van de injectie van aerosolen in de stratosfeer door de uitbarsting van de vulkaan Mt Pinatubo op de Filippijnen in juli 1991. Nadien herstelde de NO₂ kolom zich tegen het einde van 1994.
- Er tekent zich nu een lange termijn toename af van NO₂, met ongeveer 0.6%+/-0.2% per jaar. Deze trend en die van HNO₃ (-0.2%+/-0.2%) lijken momenteel niet consistent met de waargenomen evolutie van het N₂O brongas, dat ongeveer 0.30%+/-0.01% per jaar bedraagt. Dit kan samenhangen met de moeilijkheid om lange termijnsveranderingen te kwantificeren door de grote natuurlijke schommelingen van HNO₃ en tevens door de verstoring van de tijdreeks door de Mt Pinatubo aerosolen.
- Waarnemingen van de snelheden van toename in concentraties van broeikasgassen die onder het Verdrag van Kyoto vallen: CO₂ (0.41%+/-0.01%/jaar), CH₄ (afnemend van 0.74%/jaar in 1987 tot 0.1%/jaar in 2000), N₂O (0.30%/jaar), SF₆ (afnemend van 14%/jaar in 1987 tot 5%/jaar in 2000).
- De hoogte van de tropopauze nam toe in de jaren 1980, en daalde terug in de jaren 1990. Dit kan samengaan met veranderingen in de stralingsbalans van de atmosfeer. De wijziging van de tropopauze kan een deel van de toename in N₂O verklaren, en kan ook samenhangen met de vertraging van de verdunning van de ozonlaag in de jaren 1990 in vergelijking met de jaren 1980. Is er een herstel van de ozonlaag waargenomen na 1994? De vraag of dit een teken is van de jaarlijkse variaties of van een gestadige trend op lange termijn zal slechts beantwoord kunnen worden als de tijdreeksen met enkele jaren verlengd zijn.

De evolutie van de ozonlaag te Ukkel

Er is een tijdreeks beschikbaar van 1969 tot op heden van verticale ozonprofielen tussen 0 en 35 km hoogte, die bekomen werden met ballonpeilingen te Ukkel. Deze reeks is opnieuw geëvalueerd, waarbij correcties ingevoerd werden voor het wegnemen van instrumentele effecten en voor veranderingen in de

loop der tijden. Aansluitend werden ook de trends herbekeken. De voornaamste kenmerken zijn: een duidelijke lange termijn afname van ozon in de winter en de lente in de lage stratosfeer, een toename van troposferisch ozon in alle seizoenen, en een sterke toename in de grenslaag van maart tot september en een afname in de andere maanden. Trends over het ganse jaar zijn positief in de troposfeer (van +0.35 tot +0.85%/jaar, afhankelijk van de hoogte), en negatief in de lage stratosfeer (van -0.2 tot -0.5%/jaar rond 15 km). Het blijkt dat de fotochemische ozonproductie de laatste jaren duidelijk toegenomen is.

OCIO en BrO waarnemingen in Harestua en Observatoire de Haute Provence

De groeiende tijdreeksen van BrO in Harestua en Observatoire de Haute Provence en OCIO in Harestua hebben onze kennis vergroot over de variaties van beide elementen op dagelijkse, en seizoens- en jaarbasis en als functie van de breedtegraad. Voorvallen van verhoogde OCIO concentraties treden op in koude winters als polaire lucht over Harestua komt. De hoogste BrO concentratie worden waargenomen tijdens de winter, meer bepaald in condities van denoxificatie, dwz. wanneer de omzetting naar het reservoir BrONO₂ vertraagd is.

Door gelijktijdig gebruik te maken van grond-, ballon- en satellietwaarnemingen van BrO heeft men kunnen besluiten dat er niet verwaarloosbare achtergrondconcentraties van troposferisch BrO bestaan op wereldschaal. De bronnen hiervan zijn nog niet geïdentificeerd.

Door de resultaten van een gekoppeld stralingstransfer en fotochemisch boxmodel (PSCBOX, zie ook verder) te vergelijken met de waarnemingen, is onze huidige kennis van de halogeenchemie in vraag gesteld. Het is namelijk onmogelijk gebleken om de waarnemingen tijdens de schemering van OCIO in omstandigheden van zwakke chlooractivatie te rijmen met de PSCBOX modelresultaten.

Metingen van de spectrale UV intensiteiten te Ukkel

Nu er ongeveer 11 jaar spectrale UV stralingsmetingen beschikbaar zijn is een UV klimatologie ontwikkeld geworden. De voornaamste factoren die de UV doses aan de grond beïnvloeden zijn de bewolking en het stratosferisch ozon: hun impact werd bestudeerd. Door de grote variabiliteit is het te vroeg om een betrouwbare trend te kunnen afleiden.

Een operationeel systeem voor de voorspelling van de UV index werd ontwikkeld en in gebruik genomen: in de periode van april tot september wordt de voorspelling van de UV index voor België dagelijks bij de bevolking verspreid.

Synergie met satellietgegevens

De consistentie en de complementariteit tussen de verschillende data sets afkomstig van satellieten, ballonwaarnemingen, waarnemingen vanaf de grond en in situ, werden onderzocht en gebruikt. In in het bijzonder leidde hun exploitatie tot een klimatologie van NO₂ profielen vanaf de grond tot 70 km hoogte en tot de verificatie van een verbeterd algoritme voor het ATMOS/Shuttle experiment, dat de ondergrens van de afgeleide profielen van atmosferische componenten uitbreidt tot in de vrije troposfeer.

Processtudies

Meerdere campagnes werden opgezet voor het bestuderen van ozon in de troposfeer en van de grenslaag in Ukkel, van de concentraties bij de grond van ozon en andere elementen van pollutie (NO₂, SO₂, benzeen, toluen, formaldehyde, en NO₃ tijdens de nacht) in het verstedelijkt gebied van Brussel (1997), en van de chemische samenstelling van de troposfeer/grenslaag in de zomer van 1998 in de streek van Jungfraujoch.

Man kon vier componenten van de ozonbalans in de grenslaag (gemiddeld tot 2 km hoogte) identificeren en kwantificeren: opstapeling in de laag door lokale productie, overdracht van de grenslaag naar de vrije troposfeer, afzetting aan het oppervlak, en horizontale advection. Het is gebleken dat een goede schatting van de ozonconcentraties in Brussel gemaakt kan worden op basis van enkel meteorologische parameters (windrichting en -snelheid, vochtigheid, straling, ...), maar dat deze verbeterd kan worden door ook rekening te houden met schattingen van de concentraties van NO en NO₂. De metingen in de omgeving van Jungfraujoch waren vooral van technologisch belang: zij bevestigden een nieuw meetprincipe nl. de in

hoogte gedifferentieerde observaties (zie verder). Snelle schommelingen van CO op de tijdschaal van 1 uur werden aangenomen, in ooreenstemming met plaatselijke metingen. Verder is vastgesteld dat C₂H₆ in de grenslaag snel varieert van dag tot dag, maar dat CH₄ en N₂O vrij stabiel blijven over periodes van één maand.

Laboratorium metingen

Voor de volgende moleculen werden meer gedetailleerde spectroscopische gegevens (werkzame doorsneden voor absorptie, lijnposities en intensiteiten) verworven: O₂ en de botsingscomplexen O₂-X (X= N₂, Ar of O₂ zelf), NO₂ en zijn dimeer (N₂O₄), H₂O en zijn isotopen (HOD en D₂O), C₂H₂, OCS, HOCl, HCFC-22 en HFC-152a. De metingen werden verricht bij verschillende omstandigheden van druk en temperatuur, in het nabije en midden infrarood, zichtbaar en UV door middel van Fourier transformatie spectroscopie. In vergelijking met vroegere studies lag de nadruk meer op het bekomen van gegevens in toestanden van druk, temperatuur en concentratie die de atmosferische omstandigheden benaderen. Tevens werd er naar gestreefd om gaten in de bestaande literatuurgegevens op te vullen. Meer bepaald voor water werd er gekeken naar kenmerken van zwakke absorpties in het UV en zichtbaar-licht gebied, om zo hun bijdrage tot de stralingsbalans van de atmosfeer beter te bepalen.

Vooruitgang in instrumentatie, data analyse en interpretatie

Om de objectieven en bovenvermelde resultaten te bekomen waren een aantal nieuwe ontwikkelingen en verbeterde methodes noodzakelijk. We vernoemden reeds de *UV index voorspelling* en de methode van *in hoogte gedifferentieerde metingen*. Die laatste is een manier om gegevens te bekomen in een bepaalde hoogtegebied in de grenslaag/ lagere troposfeer. Het is gebaseerd op gelijktijdige metingen van de totale kolom van een atmosferische component, vanaf twee verschillende hoogten. Het verschil tussen beide metingen levert de hoeveelheid in de laag tussen beide waarnemingsstations.

Verticale inversie algoritmes leveren een alternatieve methode om hoogte informatie te halen uit waarnemingen vanaf de grond. Zo een algoritme werd ontwikkeld voor de hoge resolutie Fourier transformatie metingen, zoals die op Junfraujoch. De inversie steunt op de observatie van de verandering van de vorm van de absorptielijnen met de hoogte, als gevolg van hun afhankelijkheid van druk en temperatuur. Het algoritme is uitgebreid gevalideerd voor ozon. Eerste resultaten zijn bekomen voor HCl en HF. In de nabije toekomst zal het mogelijk zijn hiermee de bestaande tijdreeksen opnieuw te analyseren, om zo het gedrag van verschillende componenten op verschillende hoogten te bestuderen, en dat over de laatste decaden.

Met de UV-zichtbaar-licht methode kan bijkomende informatie bekomen worden door quasi-simultane metingen van het diffuse zonlicht te verrichten onder verschillende zenitsafstanden, bvb kijkend naar het zenit en onder een hoek dicht bij de horizon. Dit wordt de *off-axis DOAS methode* genoemd. Nieuwe instrumenten werden gebouwd en operationeel gemaakt, en de eerste resultaten betreffende BrO en formaldehyde in de troposfeer werden bekomen in Observatoire de Haute Provence.

Software ontwikkelingen hebben bijgedragen tot betere en vereenvoudigde analyses van atmosferische en laboratoriumspectra. *WinDOAS* is een zeer geavanceerd software pakket voor de analyse van UV/zichtbaar-licht DOAS spectra; *Wspectra* en *bFit* helpen bij de analyse van de parameters van absorptielijnen in laboratoriummetingen met hoge resolutie Fourier transformatie spectrometrie.

PSCBOX is een gekoppeld stralingstransfer/chemisch boxmodel dat ontwikkeld werd voor de geofysische interpretatie van snel veranderende componenten zoals OCIO en BrO: het heeft bijgedragen tot het begrijpen van de chloor- en broomchemie in de stratosfeer tijdens de schemering.

Een *nieuwe correctieprocedure voor ozonsonde metingen* werd ontwikkeld. Ze corrigeert voor verschillende factoren, en ze implementeert een nieuw correctieprofiel voor de efficiëntie van de pompen. De hele tijdreeks van ozonpeilingen in Ukkel werd met deze methode gehomogeniseerd.

Een andere bevinding was dat veelgebruikte standaard atmosfeermodellen verouderd en onvolledig zijn, en geen informatie bevatten over de natuurlijke variaties met de seizoenen of de breedtegraad. Meermaals werden nieuwe klimatologische modellen opgesteld voor specifieke doeleinden. Zo werd er voor ozon een klimatologie als functie van de hoogte van de tropopauze opgesteld, op basis van peilingen te Ukkel. Voor NO₂ baseerden we ons op de synergie tussen satelliet en grondwaarnemingen, terwijl voor HF, HCl en CH₄ HALOE satelliet gegevens gebruikt werden.

Valorisatie

Om het onderzoek bekend te maken, werd uitgebreid gebruik gemaakt van de normale verspreidingskanalen: publicaties, internationale symposia, workshops, informatie voor het grote publiek, integratie in Europese en internationale projecten. Bijzonder vermeldenswaardig zijn het archiveren van atmosferische en spectroscopische data in internationale geofysische en spectroscopische databanken, respectievelijk. Hierdoor worden de vergaarde gegevens beschikbaar voor wetenschappelijke gebruik wereldwijd, o.a. ook voor satelliet validatie. Men moet ook de deelname van enkele partners in internationale 'Assessment Studies' en de verdeling van software (WinDOAS) bij andere onderzoeksgroepen vermelden.

Nogmaals is aangetoond dat de ononderbroken waarnemingen op lange termijn, ondersteund door fundamenteel onderzoek (bvb. in het laboratorium) een sleutelrol spelen in het atmosferisch onderzoek dat zich toespitst op de globale veranderingen in de chemie en de dynamica van de atmosfeer en het klimaat op Aarde.

EXPERIMENTAL STUDIES OF ATMOSPHERIC CHANGES (ESAC)

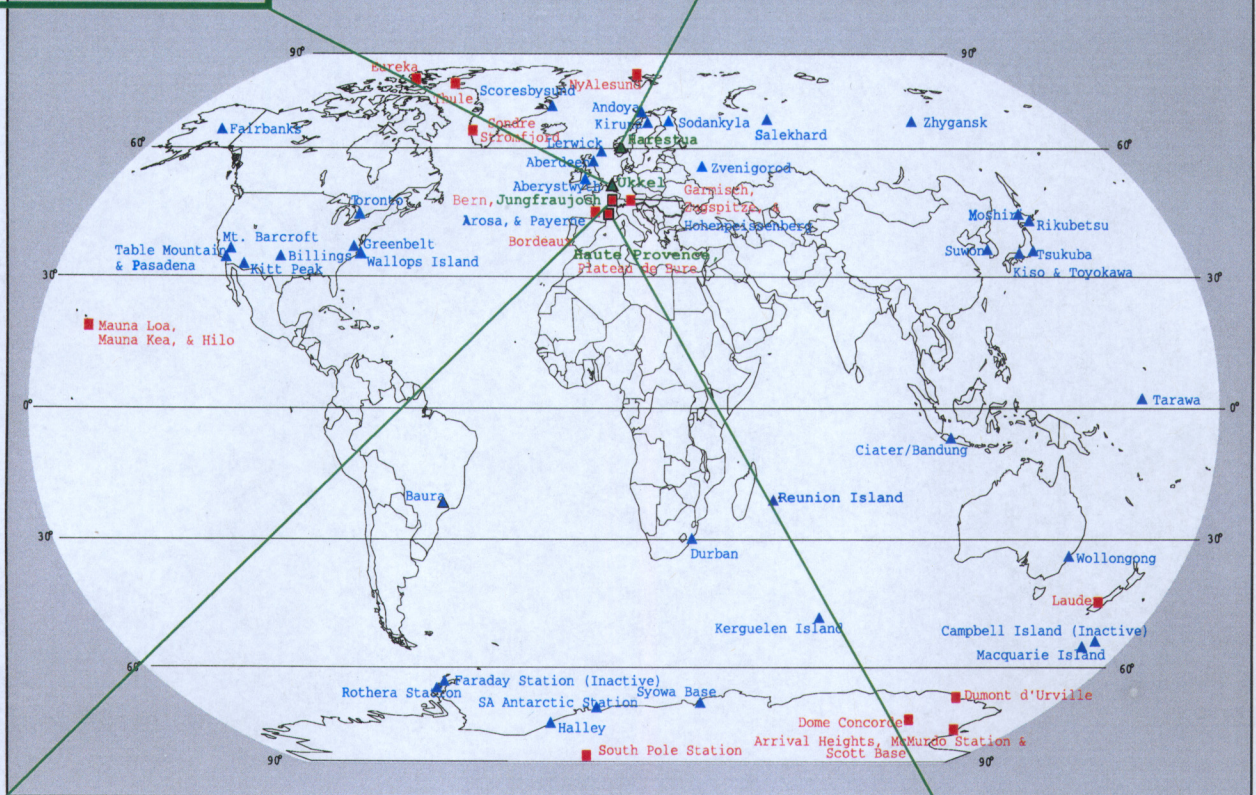
Ukkel (51.5°N, 4°E)



Harestua (60°N, 10°E)



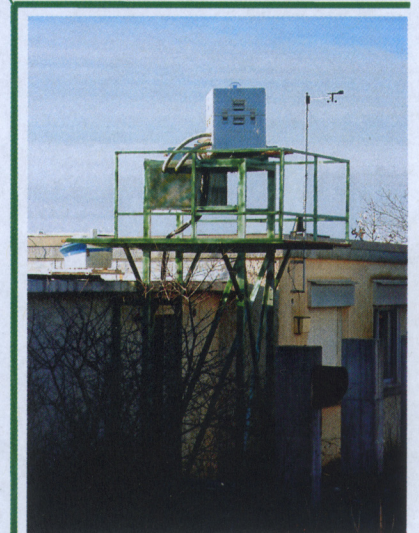
NDSC Sites



- NDSC Primary Sites
- ▲ NDSC Complementary Sites



Jungfrauoch (46.5°N, 8°E)



OHP (44°N, 6°E)