

# Zuurstofhoudende organische verbindingen in de tropische atmosfeer : variabiliteit en atmosfeer-biosfeer uitwisseling (OCTAVE)

## ABSTRACT

### Context

Zuurstofhoudende vluchtige organische stoffen (OVOCs) hebben een significante impact op de oxiderende capaciteit van de atmosfeer en het klimaat. Methanol, acetaldehyde en aceton behoren tot de meest voorkomende OVOCs, vooral in de mariene atmosfeer, waar ze 37-63% uitmaken van de totale niet-methaan vluchtige organische koolstofverbindingen. Hun bronnen zijn onder meer terrestrische vegetatie, oceanen, de oxidatie van VOCs, verbranding van biomassa en antropogene emissies. Er bestaan echter nog steeds grote verschillen in OVOC-budgetramingen, voornamelijk als gevolg van een onvolledige kennis van de fotochemische productieprocessen en hun weergave in modellen, en onzekerheden in terrestrische emissies en oceaan/atmosfeer-uitwisselingen van OVOCs en hun voorlopers.

Het gebrek aan OVOC-waarnemingen in tropische gebieden draagt sterk bij tot die onzekerheden. Hoewel de uitwisselingen van OVOCs tussen oceaan en de atmosfeer aanzienlijk zijn, blijven hun omvang en richting (emissie/depositie) niet goed gekend. Zeer grote modelonderschattingen van waargenomen acetaldehydeconcentraties op afgelegen tropische locaties werden gerapporteerd, hetgeen zou kunnen duiden op het bestaan van tot nog toe onbekende bronnen van acetaldehyde of zijn precursoren. Ook voor methanol werd recent een grote fotochemische bron geïdentificeerd, de  $\text{CH}_3\text{O}_2+\text{OH}$  reactie, van vergelijkbare omvang met de gecombineerde terrestrische emissies. Hoewel deze bron een verklaring kan bieden voor aanhoudende modelonderschattingen over afgelegen tropische oceanen, blijven de precieze omvang en de implicaties ervan voor de inschatting van emissies op wereldschaal onduidelijk. Ook voor aceton kunnen de huidige modellen de waargenomen seizoensvariabiliteit niet voorspellen. Een beter begrip van bronnen en verliesmechanismen van OVOCs is nodig om hun impact op atmosferische oxidanten, op de levensduur van methaan en bijgevolg op het klimaat, te kwantificeren.

### Doelen

OCTAVE heeft als doel tot een betere inschatting van het budget (bronnen en verliezen) en een groter inzicht in de rol van OVOCs in tropische regio's te komen, op basis van een geïntegreerde benadering die *in situ* metingen, satellietdata en modellen combineert. De specifieke doelstellingen zijn:

- Het genereren van een 2-jarige dataset van atmosferische metingen van OVOCs (methanol, acetaldehyde en aceton) en verwante stoffen door middel van proton-transfer-reactie-massaspectrometrie (PTR-MS) en remote sensing infraroodspectroscopie (FTIR) vanaf het Maïdo-observatorium (2155 m boven zeeniveau) op het eiland Réunion, in de Indische Oceaan.
- Het identificeren en kwantificeren van OVOC-bronnen die bijdragen aan de metingen op Réunion, met behulp van multivariate statistische analyse, achterwaartse trajectberekeningen en 3-dimensionale modellering.

- Een innovatieve methodologie toepassen op basis van artificiële neurale netwerken (ANN) om verbeterde en beter gekarakteriseerde wereldwijde distributies van de kolomdichtheden van methanol en andere VOCs te genereren met behulp van meerjarige teledetectiegegevens van de IASI-sensor op de MetOp-satelliet.
- Het uitvoeren van een geactualiseerde modevaluatie van het budget van OVOCs, op basis van gegevens in de ruimte (voor methanol), en een brede verzameling van lucht-, scheeps- en grondmetingen, inclusief die verkregen op Réunion. Die laatste zal worden gebruikt om OVOC-bronnen en verliesmechanismen in het gebied te evalueren, met behulp van chemie-transportmodellen met hoge resolutie, zoals WRF-Chem.

### **Belangrijkste vaststellingen**

- De fotochemische vorming van aceton en mierenzuur in rookpluimen afkomstig van biomassaverbranding in Afrika en Madagascar werd geïdentificeerd op basis van de *in situ* PTR-MS metingen op Maïdo en achterwaartse trajectberekeningen. De productie van aceton bleek consistent met de emissieverhoudingen van bekende precursoren. De analyse suggereert een substantiële, niet-gekende bron van mierenzuur in dergelijke pluimen.
- Het artificieel neurale netwerk toegepast op de IASI-gegevens is operationeel en resulteert in concentraties van 8 (O)VOCs gedurende de volledige operationele tijdreeks van IASI/Metop-A, -B en -C (d.w.z. sinds 2007). Het ANN bleek gevoelig, flexibel en robuust te zijn voor zwakke infrarood-absorberende stoffen. Met de toepassing van het ANN voor de afleiding van azijnzuur- en acetonconcentraties werd een stap verder gezet dan wat in het oorspronkelijke OCTAVE-voorstel was voorzien. Alles samen vormt deze reeks van IASI-producten een uitgebreide en unieke tienjarige dataset van (O)VOC-kolomdichtheden van een enkel satellietinstrument, die van grote waarde is voor het aanpakken van wetenschappelijke vragen in verband met de atmosferische samenstelling.
- Onderlinge evaluaties van IASI, FTIR en *in situ* vliegtuiggegevens duiden op significante verschillen tussen de verschillende datasets, om nog onduidelijke redenen. IASI blijkt de hoge kolommen te onderschatten. De omvang van het verschil is matig ten opzichte van FTIR-gegevens, en veel meer uitgesproken ten opzichte van kolommen in vliegtuigen.
- Het WRF-Chem-model met hoge resolutie bleek geschikt voor het simuleren van langlevende chemische stoffen boven het eiland Réunion, zelfs bij een lage resolutie (12.5 km), maar het is erg afhankelijk van de kwaliteit van de laterale randvoorwaarden.
- De afleiding van methanolemissies door inverse modellering op basis van IASI-gegevens leidt tot verhoogde emissies in semi-aride gebieden, vergelijkbaar met eerder werk. De grootte van de emissie-update die door de inversie wordt afgeleid, is sterk afhankelijk van de correctie die op de gegevens wordt toegepast. Geen enkele optimalisatie slaagt erin om alle meettechnieken (satelliet, vliegtuig, *in situ*) tegelijk te reproduceren.

## Aanbevelingen

- Ondanks bemoedigende resultaten van IASI OVOC-evaluatie op basis van FTIR-gegevens, zijn verdere inspanningen nodig om IASI-onderschattingen van hoge kolomdichtheden te begrijpen. Een grondigere collocatie van de IASI-metingen kan nodig zijn. De schaarste of afwezigheid van FTIR-gegevens voor PAN, aceton en azijnzuur bemoeilijkt een volledige validatie van deze IASI-producten.
- Poging tot evaluatie met behulp van modellen en vliegtuiggegevens leidde tot onduidelijke conclusies. Wat betreft methanol, wijst de inconsistentie tussen vliegtuig-, FTIR- en IASI-datasets op de noodzaak van specifieke onderlinge vergelijkingscampagnes, die zouden kunnen worden uitgevoerd binnen de Europese onderzoeksinfrastructuur ACTRIS.
- Om vergelijkingen met modellen en onafhankelijke metingen te verbeteren, moet de productie van averaging kernels door het ANN retrieval framework worden ontwikkeld.
- Er moet worden geprobeerd om andere OVOCs te kwantificeren die recentelijk in de IASI-spectra geïdentificeerd werden (bijv. glycolaldehyde).
- Gebruik van mesoschaal chemiemodellen (Meso-NH of WRF-Chem) wordt aangeraden om de Maïdo-dataset gegenereerd binnen OCTAVE verder te benutten. Ze zouden een gedetailleerde bronverdeling mogelijk maken van VOCs die werden gemeten op Maïdo en mogelijk de rol van de oceaan identificeren.
- Antropogene emissies van hoge resolutie ( $\sim 1 \times 1 \text{ km}^2$ ) zijn vereist om concentraties van reactieve moleculen te simuleren op het eiland Réunion en meer specifiek ter hoogte van het Maïdo-observatorium. Om een oplossing te vinden voor het gebrek aan dergelijke emissiegegevens voor het eiland Réunion, kunnen achterwaartse trajectberekeningen met FLEXPART-AROME en de *in situ* Maïdo-metingen worden gebruikt om emissies van specifieke stoffen (bijv. benzeen) af te leiden. Daartoe moet FLEXPART-AROME worden aangestuurd door meteorologische gegevens van Meso-NH.

## Trefwoorden

- Zuurstofhoudende vluchtige organische stoffen
- Biosfeer/atmosfeer/oceaan uitwisselingen
- IASI satelliet VOCs
- Oxiderende capaciteit
- Uitstoot
- In-situ metingen en remote sensing vanaf de grond

## Referentie

Trissevgeni STAVRAKOU, Bert VERREYKEN, Bruno FRANCO, Jean-François MÜLLER, Corinne VIGOUROUX, Jérôme BRIOUDE, Crist AMELYNCK, Lieven CLARISSE, Niels SCHOON, Pierre-François COHEUR. **Oxygenated volatile organic compounds in the Tropical Atmosphere: Variability and Exchanges (OCTAVE)**. Final Report. Brussels: Belgian Science Policy Office 2022 – 81 p. (BRAIN-

be - Belgian Research Action through Interdisciplinary Networks). Royal Belgian Institute for Space  
Aeronomy. <https://doi.org/10.18758/71021078>