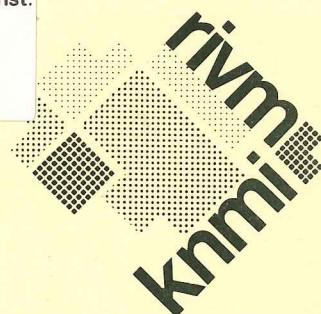


rijksinstituut voor volksgezondheid en milieuhygiëne, bilthoven  
koninklijk nederlands meteorologisch instituut, de bilt

Kon. Ned. Meteor. Inst.

De Bilt

1e ex.



**werkdocument verspreidingsmodellen**  
**redactie H. van Dop**

**KNMI**  
**publicatie 173**

Kon. Ned. Meteor. Inst.

De Bilt

II.i.759

de bilt 1988      publikatienummer: KNMI-publikatie ; 173  
knmi  
postbus 201  
3730 AE de bilt  
wilhelminalaan 10  
tel. (030) - 206911  
telex 47096

in samenwerking met  
rivm  
postbus 1  
3720 BA bilthoven  
tel. (030)-749111

U.D.C.: 504.3.054  
551.510.42  
551.511.61

©KNMI, De Bilt. Niets uit deze uitgave mag worden veeleelvoudigd en/of openbaar gemaakt worden door middel van druk, fotocopie, microfilm, of op welke wijze dan ook zonder voorafgaande schriftelijke toestemming van het KNMI.

WERKDOKUMENT

VERSPREIDINGSMODELLEN





INHOUDblz

Samenvatting	3
1. INLEIDING	4
2. EUROPEES VERZURINGSMODEL (De Leeuw, Kesseboom)	6
2.1 Uitgangspunten	6
2.2 Gebied en roosterdefinitie	6
2.3 Vertikale structuur	8
2.4 Emissies	9
2.5 Depositie	12
2.6 Chemische omzettingen	13
2.7 Toekomstige ontwikkelingen	14
3. NUMERIEKE ASPEKTEN VAN VERSPREIDINGSMODELLEN (Van Stijn, Van Eijkeren, Praagman)	15
3.1 Inleiding	15
3.1.1 De vergelijkingen	16
3.1.2 De methode van fraktionele stappen	17
3.1.3 Oppervlakte- en puntbronemissies	18
3.2 Numerieke methoden voor de advektievergelijking	18
3.2.1 Fysische eigenschappen	19
3.2.2 Numerieke eigenschappen	20
3.2.3 De advektieschema's	21
3.2.4 Testproblemen en criteria	22
3.2.5 Technische beschrijving van de advektieschema's	25
3.3 De numerieke aanpak voor de diffusievergelijking	33
3.4 Numerieke behandeling van de chemie	34
4. METEOROLOGISCHE DATA VOOR VERSPREIDINGSMODELLEN (Van Dop, Scheele, Verver)	35
4.1 Het windveld	35
4.2 Neerslaganalyse	36
4.2.1 Inleiding	36
4.2.2 Data extractie	36
4.2.3 Een tijdsinterpolatie-schema voor 6- en 12-uursneerslagsommen	37
4.2.4 Ruimtelijke interpolatie	41
4.2.5 Resultaten	43
4.2.6 Conclusie	43

4.3	Menghoogte en turbulentie	51
4.3.1	Berekening van de menghoogte	51
4.3.2	Het temperatuurprofiel	52
4.3.3	Overige parameters	52
4.4	Terreineigenschappen	54
4.4.1	Inleiding	54
4.4.2	Beschrijving van de data bestanden	54
4.4.3	Toekenning van een effectieve ruwheid aan de verschillende terreinklassen	57
4.4.4	Toekenning van een depositiesnelheid van SO <sub>2</sub> voor de verschillende terreinklassen	59
5.	MODELLEN VOOR DEPOSITIE EN CHEMISCHE TRANSFORMATIE (De Leeuw, Asman)	70
5.1	Chemische aspecten	70
5.2	Wolkenchemie	72
5.3	Droge depositie	77
5.4	Natte depositie	80
5.4.1	Rain-out	80
5.4.2	Wash-out	81
	REFERENTIES	85
<u>Appendix A</u>	Een procedure voor de berekening van lange termijn gemiddelde concentratie en depositie	91
<u>Appendix B</u>	Adreslijst RIVM/KNMI/IMOU-modellensamenwerking	99

## SAMENVATTING

Dit rapport moet gezien worden als samenvatting van de belangrijkste resultaten sinds juni 1985 van de samenwerking tussen RIVM en KNMI op het gebied van verspreidingsmodellen. Het bevat een korte beschrijving van het huidige  $\text{SO}_x/\text{NO}_x$ -model. Verder bevat het aanbevelingen voor wijzigingen van enige numeriek wiskundige aspecten en een aanzet tot een vollediger beschrijving van chemische processen in de atmosfeer en het (natte) depositie proces. Een apart hoofdstuk is gewijd aan het prepareren van meteorologische gegevens die relevant zijn voor zowel verspreiding, atmosferische chemie en depositie. Het rapport dient als werkdokument voor de uiteindelijke formulering van een verzurings- en oxidantmodel.

## 1. INLEIDING

In juni 1985 is een samenwerkingsverband tot stand gekomen tussen het KNMI en het RIVM op het gebied van de ontwikkeling van verspreidingsmodellen voor luchtverontreiniging. De primaire doelstelling is om binnen de termijn van enkele jaren een aantal modellen te formuleren die de verspreiding, chemische omzetting en depositie van luchtverontreiniging beschrijven. Er zal worden getracht de fysische en chemische processen die hierbij een rol spelen zo goed mogelijk te beschrijven. Hierbij zal niet uit het oog verloren worden dat de modellen in de praktijk makkelijk inzetbaar zullen zijn. Inmiddels nemen ook het IMOU en TNO aan dit samenwerkingsverband deel. Een volledige lijst van medewerkers is gegeven in appendix A. Het toepassingsgebied ligt in Europa en beslaat een gebied dat grofweg begrensd wordt door de 35e en 60e breedtegraad en de 10°W en de 25°O meridiaan, een gebied van ca. 7 miljoen km<sup>2</sup>.

De modelontwikkeling sluit aan op resultaten van een eerdere studie, waarbij 4 interregionale verspreidingsmodellen aan elkaar en aan metingen getoetst zijn. In deze studie werd duidelijk dat het verzamelen en bewerken van meteorologische gegevens t.b.v. verspreidingsmodellen, één van de grootste hindernissen is. In de huidige studie zal dan ook een belangrijk accent komen te liggen op het vlot en routinematig produceren van alle noodzakelijke meteorologische gegevens (zie hoofdstuk 4). De studie voltrekt zich in een aantal fases, waarvan de eerste is de uitbouw naar Europese schaal van het bestaande RIVM verspreidingsmodel voor SO<sub>x</sub> and NO<sub>x</sub>. Dit model bevat nog eenvoudige (lineaire) parameterisatie voor chemische omzetting en natte depositie. De meteorologische gegevens voor dit (eposidische) model kunnen nu op routinebasis en op korte termijn worden toegeleverd. Dit model wordt beschreven in hoofdstuk 2.

De volgende fasen in het projekt kunnen als volgt worden samengevat.

- a) Een herformulering van het episodemodel. Deze zal bestaan uit een aantal modificaties met betrekking tot de numerieke schema's, herziening van de verticale modelstructuur, een andere rooster- en gebiedsdefinitie en het inbouwen van modules die de chemie in wolken en natte depositie beschrijven. Notities met betrekking tot bovengenoemde onderwerpen zijn vervat in de hoofdstukken 3 en 5.
- b) Deze inbouw van uitgebreide (foto)chemie in bovengenoemd model. Met deze variant kunnen hoge oxidantniveau's, zoals die optreden tijdens kortdurende episodes (enkele dagen) die gekenmerkt worden door warm en zonnig weer en een zwakke circulatie, beschreven worden.



Een aspect dat in deze opsomming niet is opgenomen, is dat bovenstaande modellen ook een inzicht moeten kunnen geven over de luchtkwaliteit en depositie op langere termijn dan een paar dagen. Een procedure die het mogelijk maakt om op basis van berekeningen voor een beperkt aantal uitspraken te doen over concentraties en deposities over langere termijn (seizoen, jaar) is beschreven in appendix A.

## 2. EUROPEES VERZURINGSMODEL

### 2.1 UITGANGSPUNTEN

Een episodisch  $\text{SO}_x$ - $\text{NO}_x$ -verzuringmodel voor Noord-, West- en Midden-Europa ( $2000 \times 2000 \text{ km}^2$ ) is ontwikkeld op basis van de bestaande RIVM mesoschaalmodellen (De Leeuw et al., 1986). Op basis van de hiermee opgedane ervaringen kunnen specificaties opgesteld worden voor een algemeen Europees fotochemisch/verzuringmodel. Zolang het model beperkt blijft tot  $\text{SO}_x$ ,  $\text{NO}_x$  en volgproducten kan nauw aangesloten worden bij de bestaande modelconcepten. In eerste instantie geldt dit met name voor de beschrijving van diffusie, depositie en omzetting. In een later stadium zal voor een meer gedetailleerde beschrijving van de desbetreffende mechanismen (zie hoofdstukken 3-5) gekozen worden. In dit hoofdstuk zal de discussie beperkt blijven tot de aspecten waarvoor een wezenlijke aanpassing van de in de mesoschaal toegepaste modelconcepten noodzakelijk is.

### 2.2 GEBIED EN ROOSTERDEFINITIE

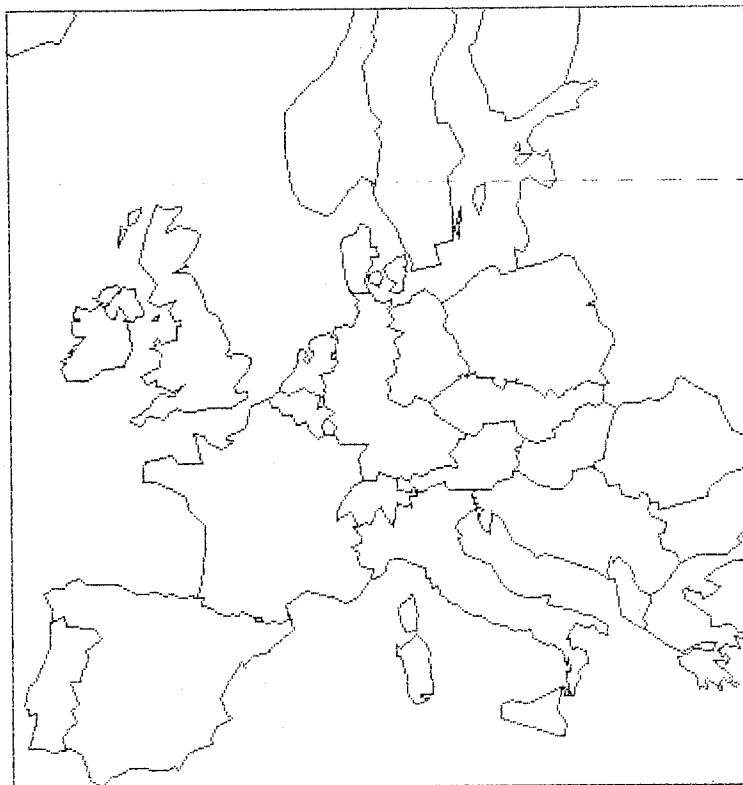
In het algemeen kan gesteld worden dat de tijdstap in een numerieke procedure voor het oplossen van de advectie diffusievergelijking bepaald wordt door de kleinste maasgrootte. De keuze van het coördinatenstelsel is dus mede bepalend voor de benodigde computertijd. In het meest ideale rekenrooster is de maasgrootte over het hele gebied gelijk. Helaas zijn ook op dit punt de aardse omstandigheden verre van ideaal.

Het meest voor de hand liggende rekenrooster wordt gevormd door bolcoördinaten, de bekende lengte- en breedtegraden. Voor Europese breedte neemt naar het noorden de maaswijdte in lengterichting echter sterk af: voor Italië en Noorwegen ( $40^\circ - 65^\circ \text{ NB}$ ) leidt dit tot een verhouding van 1,8:1. Een vrijwel equidistant rooster wordt verkregen door gebruik te maken van bolcoördinaten nu echter in een geroteerd assenstelsel zodanig dat de nieuwe evenaar over het gebied van interesse komt te liggen.

De optimale verhouding in maaswijdte wordt verkregen door de evenaar te verschuiven naar het midden van het beoogde modelgebied. Voor een gebied dat zich uitstrekt van Spanje tot halverwege Finland ( $35 \text{ N} - 65 \text{ N}$ ) resulteert dit bij een projectie op  $50 \text{ NB}$  in een maaswijdteverhouding van 1:1.04.

Momenteel worden op het KNMI meteorologische analyses routinematig uitgevoerd in een op 60 NB verschoven coördinatensysteem. De resultaten van deze analyses worden gebruikt als invoer voor het hier beschreven model. Hoewel er geen principiële noodzaak is om de coördinatensystemen van de meteorologische modellen en het verspreidingsmodel gelijk te kiezen, is het verschil tussen de optimale keuze ( $\phi = 50$  NB) en de KNMI-standaard ( $\phi = 60$  NB, resulterend in een maaswijdte-verhouding van 1:1.10) dermate klein dat de geringere numerieke efficiency opweegt tegen de optimale aansluiting met de meteorologische modellen.

Het gekozen modelgebied is gegeven in figuur 2.1 waarbij als randvoorwaarde gesteld is dat het modelgebied alle landen van de Europese Gemeenschap omvat. Bij een oplossend vermogen van  $0.55^\circ \times 0.55^\circ$  (ca  $60 \times 60 \text{ km}^2$ ) omvat het aangegeven modelgebied  $55 \times 52$  roosterpunten. Is men alleen in de landen van de Europese Gemeenschap geïnteresseerd dan is het mogelijk om de noordelijke begrenzing ca 750 km zuidelijker te leggen (zie stippellijn, modelgrootte nu  $43 \times 52$  roosterpunten). Een dergelijke verkleining zal de benodigde computertijd en geheugenruimte reduceren. Belangrijk nadeel is echter dat in de verkleinde versie de invloed van continentale emissies op Scandinavië slechts in



Figuur 2.1 Modelgebied Europees verzuringsmodel.

bepaalde mate is te schatten. De beschrijving van de situatie in Scandinavië wordt nog verder bemoeilijkt omdat nu het emissiegebied rond Leningrad buiten het modelgebied valt. Het is aannemelijk dat dit gebied een niet te verwaarlozen bijdrage aan Scandinavië levert.

Een definitieve keuze van modelgebied en maasgrootte kan echter pas gemaakt worden als eventuele randvoorwaarden van het numerieke advectionsschema bekend zijn (indien fast fourier transformaties gebruikt worden moet het aantal roosterpunten gelijk zijn aan de macht van twee).

### 2.3 VERTIKALE STRUCTUUR

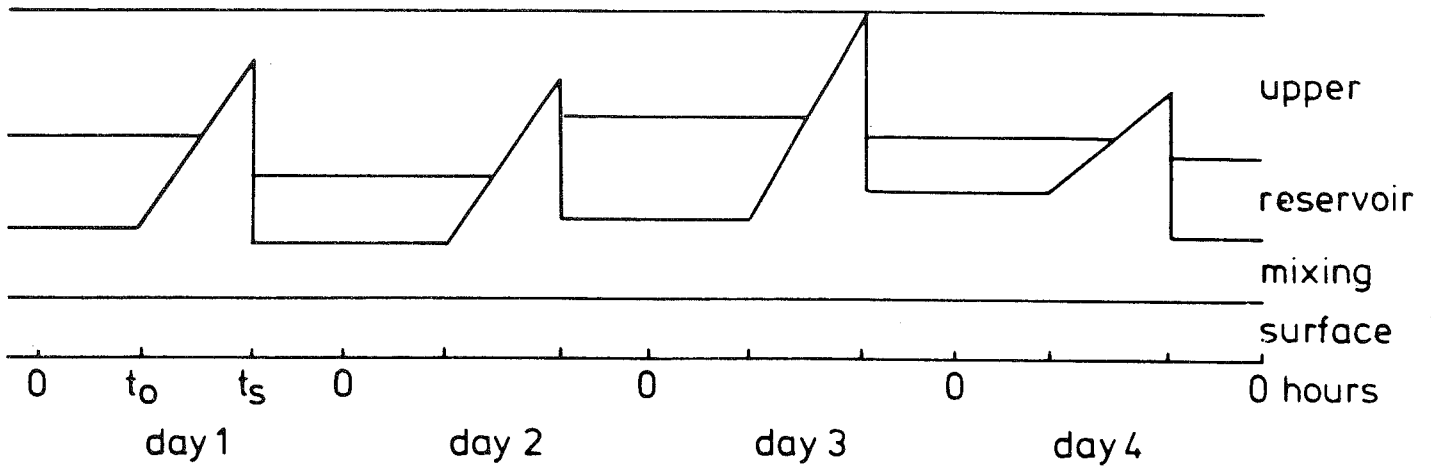
Vertikale detaillering wordt bereikt door bij emissie en tijdens transport vier lagen te onderscheiden:

#### 1. Oppervlaktelaag

De onderste 50 m van de atmosfeer is de oppervlaktelaag. Hierin vinden emissies plaats van lage oppervlaktebronnen (verkeer, ruimteverwarming). De in deze laag aanwezige verontreiniging wordt aan het aardoppervlak verwijderd door droge depositie. Het transport van verontreiniging van en naar de boven de oppervlaktelaag gelegen menglaag wordt bepaald door de verticale diffusie. Een uitvoerige beschrijving van de depositie- en diffusieprocessen wordt gegeven door De Leeuw et al. (1985). Horizontale advection in de oppervlaktelaag wordt verwaarloosd.

#### 2. Menglaag

De menglaag wordt verondersteld 's nachts een constante dikte te hebben. Overdag zal door instraling de dikte van de menglaag toenemen, waardoor verontreiniging uit de hoger gelegen reservoirlaag wordt ingemengd (zie figuur 2.2). Bij hogere concentraties in de reservoirlaag zal dit leiden tot stijging van de concentratie op grondniveau. De stijgsnelheid van de menglaaghoogte wordt afgeleid uit de resultaten van acoustische sonderingsmetingen en/of Lidarmetingen. Aan het einde van de middag zal bij afnemende instraling de verticale stabilisatie toenemen en zal opnieuw een relatief dunne nachtelijke menglaag instellen. De behandeling van de menglaaghoogte is geheel in overeenstemming met de mesoschaalmodellen. Advection in de menglaag wordt beschreven met het 1000 mbar-windveld.



Figuur 2.2 Schematisch dagverloop van de opbouw van de verticale structuur.

### 3. Reservoirlaag

Boven de menglaag bevindt zich, minstens gedurende de nacht, een laag waarin de door hoge bronnen uitgeworpen verontreiniging wordt getransporteerd. De bovenbegrenzing van de reservoirlaag wordt gegeven door de effectieve hoogte van de hogere bronnen. Tussen de meng- en reservoirlaag vindt uitsluitend transport plaats bij een stijgende menglaaghoogte. Advectie in de reservoirlaag wordt beschreven met het 850 mbar windveld.

### 4. Toplaag

De toplaag dient als een semi-permanent reservoir van verontreiniging die vrijkomt uit de menglaag tijdens de namiddag stratificatie. Transport van toplaag naar menglaag vindt uitsluitend plaats bij een stijgende menglaaghoogte indien geen reservoirlaag aanwezig is (zie fig. 2.2). Concentraties in de toplaag zijn verder van belang bij de beschouwing van het natte depositie proces. Advectie in de toplaag wordt beschreven met het 850 mbar-windveld. De bovenbegrenzing van de toplaag wordt bepaald door de maximale menglaaghoogte die bereikt wordt gedurende de gehele simulatieperiode.

## 2.4 EMISSIES

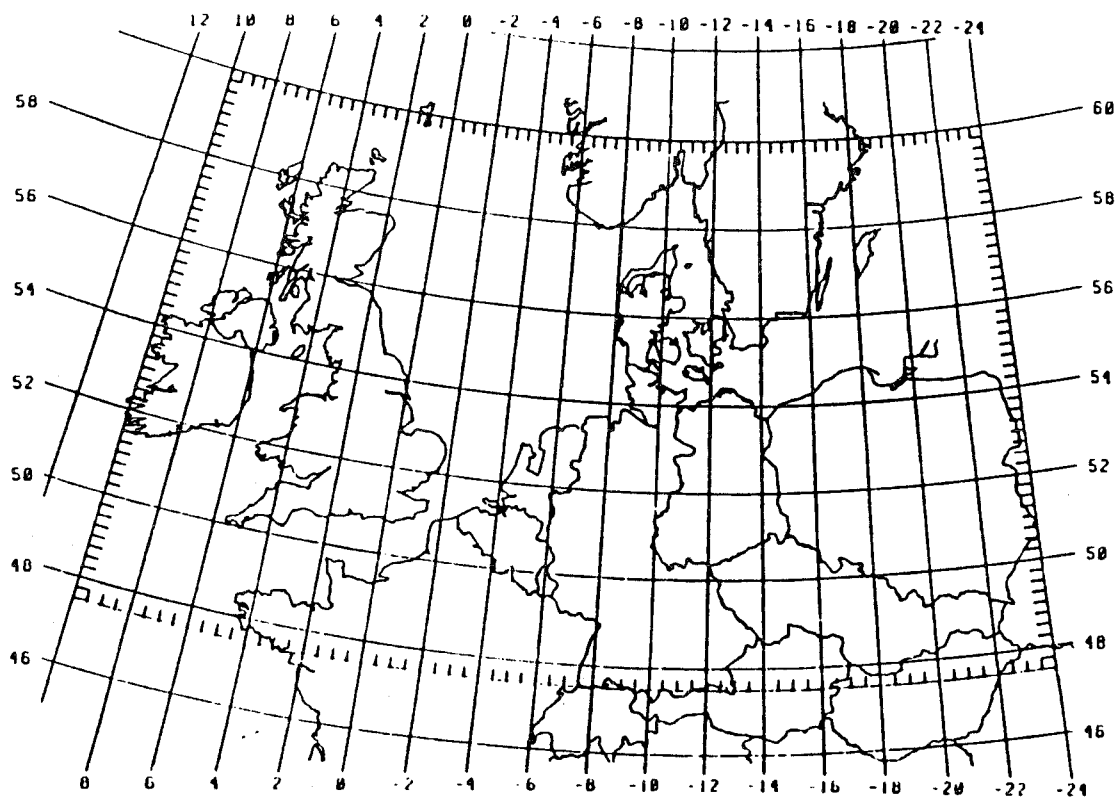
De enige emissie-inventarisatie die momenteel beschikbaar is voor het gekozen modelgebied is het ECE-EMEP-bestand. In dit bestand zijn jaargemiddelde  $SO_x$ - en  $NO_x$ -emissies gegeven met een ruimtelijk opsollend vermogen van  $150 \times 150 \text{ km}^2$ ; het basisjaar van de inventarisatie is omstreeks 1980. Daar-

naast zijn schattingen van de totale antropogene emissies aan koolwaterstoffen bekend. Door het IMO zijn de Europese  $\text{NH}_3$ -emissies geïnventariseerd met een detaillering van  $75 \times 75 \text{ km}^2$ .

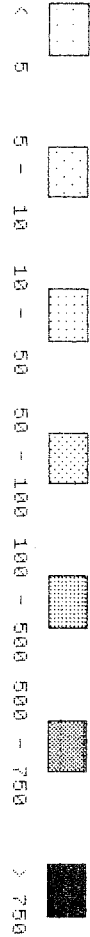
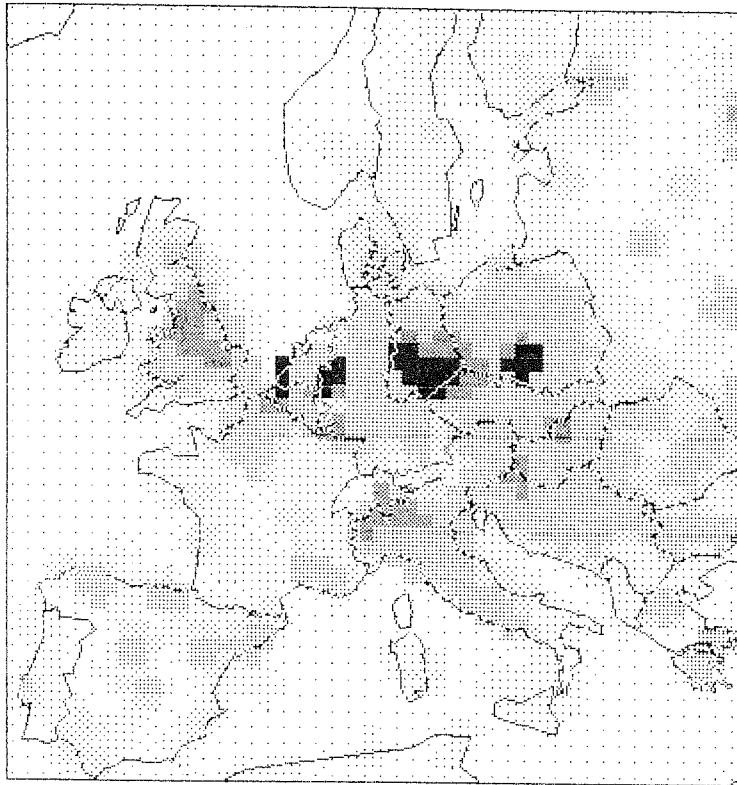
In de ECE-EMEP-besstanden is slechts de totale emissie per roostervierkant gegeven. Gezien het tijdsverloop in bronsterkte (met name verkeersemis-sies) en gezien de temperatuursafhankelijkheid (ruimteverwarming, verdampings-verliezen) is een onderverdeling van de emissies in een beperkt aantal brongroepen gewenst. Een schatting van de verdeling over de brongroepen verkeer, ruimteverwarming, kleine industrie en grote industrie alsmede het tijdsgedrag en de hoogteverdeling van  $\text{SO}_x$ - en  $\text{NO}_x$ -emissies is overgenomen van De Leeuw et al., 1986.

Voor het centrale gedeelte van het modelgebied zijn nauwkeuriger emissieschattingen gemaakt in het kader van het PHOXA-project (zie figuur 2.3). In de (nabije) toekomst zal ernaar gestreefd worden om binnen het in figuur 2.3 gegeven gebied het PHOXA-emissiebestand te implementeren.

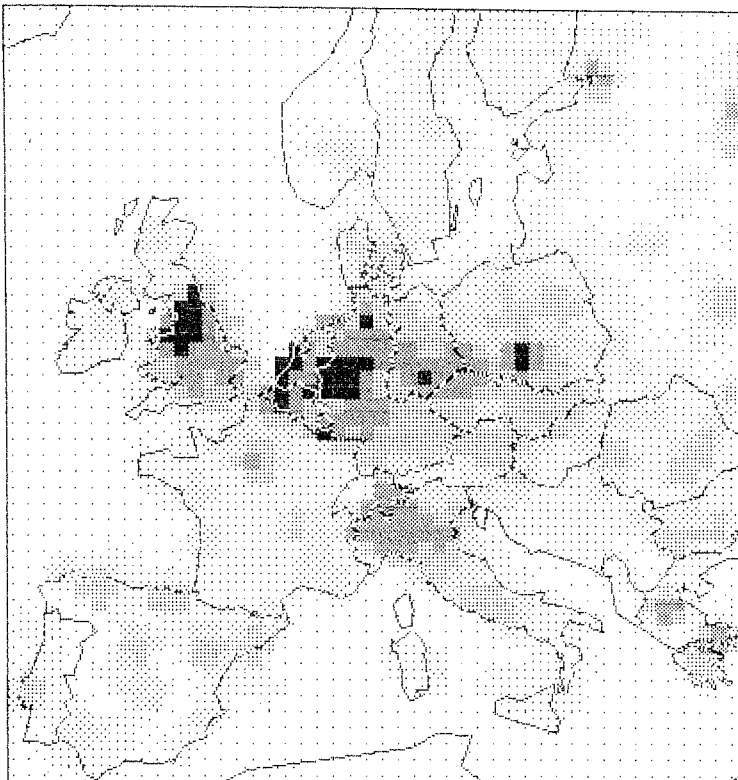
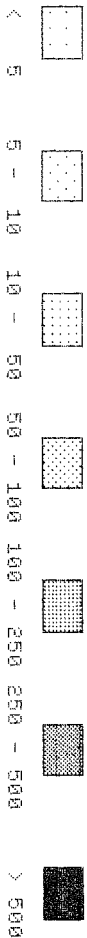
De emissievelden, gebaseerd op de ECE-EMEP-inventarisaties, en in Nederland en directe omgeving aangevuld met informatie uit de TNO-emissie-inventarisatie voor  $\text{SO}_x$  en  $\text{NO}_x$  zijn gegeven in figuur 2.4.



Figuur 2.3 Het PHOXA-modelgebied.



SO<sub>x</sub>-emissies in 100 ton S/jaar (totaal: 21204 kton S/jaar)



NO<sub>x</sub>-emissie in 100 ton NO<sub>2</sub>/jaar (totaal: 15242 kton NO<sub>2</sub>/jaar)



**Figuur 2.4** Ruimtelijke verdeling van SO<sub>x</sub>- en NO<sub>x</sub>-emissies (gebaseerd op ECE-EMEP-gegevens).

## 2.5 DEPOSITIE

In het verzuringsmodel kan de droge depositie op dezelfde wijze beschreven worden als in de bestaande modellen. Wel moet de ruimtelijke variatie in ruwheidslengten (en de daarmee verband houdende stabiliteitsparameters en depositiesnelheden) in rekening gebracht worden. Een gedetailleerde beschrijving van de droge depositie wordt gegeven in hoofdstuk 5.

Zolang wolken-fysische processen niet expliciet in het model zijn opgenomen, moet volstaan worden met een eenvoudige parametrisering van de natte depositie. In de bovenste laag wordt de verwijdering door rain-out beschreven onder de veronderstelling dat er een bepaalde evenredigheid bestaat tussen lucht- en regenwaterconcentraties (resp.  $C_a$  en  $C_i$ ). Deze evenredigheid wordt beschreven met behulp van de (in-cloud) scavenging verhouding  $S = C_i/C_a$ . De verandering in concentratie wordt nu gegeven door

$$\frac{dC}{dt} = - \frac{SR}{H} C$$

waarin R de regenintensiteit en H de laagdikte is. De in-cloud scavenging verhouding is voor de verschillende componenten gegeven in tabel 2.1.

In de overige lagen wordt het wash-out proces geparametriseerd met behulp van een scavenging coëfficiënt ( $\Lambda_b$ )

$$\frac{dC}{dt} = - \Lambda_b C .$$

De gebruikte scavenging coëfficiënten zijn samengevat in tabel 2.1.

Voor  $SO_2$  is aangenomen dat natte verwijdering bij voorkeur plaatsvindt vanuit de bovenste laag. In de daaronder liggende lagen vindt slecht (gedeeltelijke) wash-out plaats indein de verhouding van concentraties in neerslag (bepaald door de hogere lagen) en de concentratie in lucht (bepaald door de laag zelf) kleiner is dan de in tabel 2.1 gegeven verhouding. De natte verwijdering van  $SO_2$  wordt irreversibel verondersteld; is, gegeven de concentraties in neerslag en lucht, de neerslag oververzadigd met  $SO_2$  dan treedt er geen diffusie vanuit de waterfase naar de gasfase op.



Tabel 2.1 Wash-out ratio W en scavenging coëfficiënt  $\Lambda$  ( $s^{-1}$ ).

component	S	$\Lambda_b^*$
SO <sub>4</sub>	10 <sup>6</sup>	7.62 R <sup>0,89</sup>
NO <sub>3</sub>	10 <sup>6</sup>	7.62 R <sup>0,89</sup>
SO <sub>2</sub>	5.10 <sup>4</sup> (zomer)	(zie tekst)
	6.10 <sup>4</sup> (winter)	
NO <sub>2</sub>	0	0
NO	0	0
O <sub>3</sub>	0	0

\* Regenintensiteit R uitgedrukt in m/s.

## 2.6 CHEMISCHE OMZETTINGEN

De beschrijving van de chemische omzettingen van SO<sub>x</sub> voldoen niet alleen goed op de mesoschaal maar ook op een grotere ruimtelijke schaal (De Leeuw et al., 1986). Ook in het verzuringsmodel kan deze beschrijving als uitgangspunt dienen.

In de mesoschaalmodellen wordt de NO<sub>x</sub>-chemie beschreven door middel van het fotostationaire evenwicht en de oxidatiereacties van NO<sub>2</sub> met O<sub>3</sub> of OH. Ook op een grotere ruimtelijke schaal lijkt dit mechanisme te voldoen. Binnen de mesoschaalmodellen is voor de parametrisering van de oxidantconcentratie aangenomen dat de snelheid waarmee oxidant fotochemisch gevormd wordt, gelijk is binnen het gehele modelgebied; de produktiesnelheid is slechts afhankelijk van de lichtintensiteit. Impliciet wordt hier dus een nagenoeg uniforme verdeling van precursors verondersteld. In een groter modelgebied zal deze aanname niet langer gerechtvaardigd zijn. In eerste benadering kan de oxidantvorming evenredig gesteld worden met lichtintensiteit en NO<sub>x</sub>-concentratie waarbij verondersteld wordt dat de concentraties aan koolwaterstoffen sterk gecorreleerd zijn met de NO<sub>x</sub>-niveaus omdat beide verontreinigingen veelal van dezelfde bron (verkeer, industrie) afkomstig zijn.

## 2.7 TOEKOMSTIGE ONTWIKKELINGEN

Het hier geschetste verzuringsmodel is sterk geënt op de bestaande mesoschaalmodellen. Op tal van plaatsen zijn dan ook aannamen gedaan die voor een mesoschaalmodel gerechtvaardigd zijn, doch die bij toepassing op Europese schaal discutabel zijn. In dit hoofdstuk zijn al enkele gewenste verfijningen c.q. ontwikkelingen van het model genoemd.

Binnen het KNMI-RIVM-overleg wordt momenteel of zal binnenkort aandacht besteed worden aan de volgende punten die van belang zijn voor de toekomstige ontwikkeling van het verzuringsmodel:

- implementatie van het PHOXA-emissiebestand;
- automatisering van de procedures om de benodigde meteorologische invoergegevens te verzamelen. Belangrijk in deze is de interpolatie (in tijd en ruimte) van de neerslagvelden en de constructie van een menghoogteveld;
- numerieke advection-schema's;
- terreinaspecten; diversificatie van ruwheidslengten is van belang voor stabiliteit en hiermee ook voor de depositiesnelheid. Daarnaast zal aandacht besteed moeten worden aan de orografie en land/zee-overgangen;
- parametrisering van wolken-fysische processen; parametrisering van rain-out en wash-out;
- randvoorwaarden en startconcentraties; initialiseringsprocedure;
- uitbreiding met transport/depositie van  $\text{NH}_3$ - en  $\text{NH}_4$ -aerosol.

Bij de verdere ontwikkeling tot een fotochemisch model dient tevens aandacht besteed te worden aan:

- keuze componenten en chemisch mechanisme;
- integratiemethode voor de chemische module;
- wolkenchemie, koppeling met gasfasechemie;
- uitbreiding van de emissie-inventarisatie met koolwaterstoffen; parametrisering van de natuurlijke emissies;
- subgridverschijnselen; hoewel ook van belang in het verzuringsmodel zullen niet-lineariteiten als gevolg van subgrid-processen in het fotochemisch een rol spelen, te denken valt o.a. aan
  - . neerslagverdeling binnen een gridcel;
  - . reactief pluimmodel inbouwen;
  - . depositie onderscheiden naar primaire en secundaire terreinklasse;
  - . wolkenprocessen in relatie tot bedekkingsgraad.

Voor een nadere uitwerking van een aantal van deze aandachtspunten wordt verwezen naar de volgende hoofdstukken.

### 3. NUMERIEKE ASPEKTEN VAN VERSPREIDINGSMODELLEN

#### 3.1 INLEIDING

Belangrijke schakels in het proces van het ontwerpen van een evenwichtig model voor de verspreiding van luchtverontreiniging zijn de keuze van een numeriek voorspelmodel en de actuele implementatie. Op een natuurlijke wijze zorgen restricties ervoor dat er slechts een beperkte klasse van mogelijkheden is. Een essentieel onderdeel bij de specificaties van het episodemodel dat in dit rapport wordt beschreven, is dat het model op een computer van beperkte capaciteit (b.v. een HP 9000) moet worden geïmplementeerd. Bovendien wordt een redelijke turn-around tijd verwacht voor het simuleren van een episode. In de keuze van een numeriek schema moet er echter van worden uitgegaan, dat de computerkapaciteit binnen afzienbare tijd sterk zal toenemen, terwijl de prijs matig zal blijven. Vervolgens legt de betrouwbaarheid van beginvoorwaarden voor de concentraties van de chemische componenten die deel uitmaken van de simulatie, beperkende condities op ten aanzien van de gedetailleerdheid waarmee het mogelijk is een simulatie verantwoord te voltooien. Ook draagt de kwaliteit van de meteorologische velden bij aan de verzameling van beperkingen, met name op het gebied van een soepel data-transport.

Bij de konstruktie van het episodemodel (zie overige hoofdstukken) is gebruik gemaakt van de hierboven beschreven beperkingen. Deze restricties zijn bepalend voor het ontwerp van een numeriek schema dat op een optimale wijze de natuurkundige behoudswetten benadert.

Het moet worden benadrukt dat het ontwerpen van zo'n benaderingstechniek een niet-triviale materie is, dat een speciale expertise vergt. Juist in omstandigheden waar meetgegevens relatief schaars zijn, moeten de meest geavanceerde numerieke methoden worden gebruikt. Als regel kan worden gehanteerd dat de fouten, die onvermijdelijk door het numerieke proces worden geïntroduceerd van kleinere orde moeten zijn dan de onzekerheid die in de meetgegevens aanwezig zijn.

In de rest van deze inleiding zal worden ingegaan op reductie van de behoudswetten tot de individuele onderdelen die aanleiding geven tot transport en transformatie van de chemische componenten, nl. advektie, diffusie en chemische reactie. In de daaropvolgende paragrafen zullen de specifieke methoden voor deze mechanismen worden toegelicht. Voor een vollediger exposé wordt verwezen naar Van Stijn et al. (1987).

### 3.1.1 De vergelijkingen

De vergelijkingen die het verspreidingsproces beschrijven, worden gegeven door de behoudsvergelijkingen voor de passieve scalars  $c_i$  ( $i = 1, \dots, p$ ) in een turbulente stroming (Businger, 1984; Pasquill en Smith, 1983)

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} + \nabla \cdot (\underline{u} c_i) = \nabla \cdot (K \cdot \nabla c_i) + f_i(c_1, \dots, c_p) + S. \quad (3.1)$$

Hier is  $\underline{u} = (u, v, w)$  het voorgeschreven advektieve snelheidsveld en  $\underline{k}$  een tweede orde eddy-diffusiviteitstensor. De functies  $f_i$  beschrijven de complexe, vaak niet-lineaire interacties tussen de chemische componenten. De bron-term  $S$  beschrijft de invloed van oppervlakte- en puntbronnen, van depositie en rain-out processen, etc. Uit de overige hoofdstukken blijkt dat het noch noodzakelijk, noch wenselijk is om (3.1) in zijn gehele vorm op te lossen. De meest essentiële fenomenen worden, in cartesische coördinaten, beschreven door

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} + u \frac{\partial c_i}{\partial x} + v \frac{\partial c_i}{\partial y} = \frac{\partial}{\partial z} K_z \frac{\partial c_i}{\partial z} + f_i(c_1, \dots, c_p) + S. \quad (3.2)$$

Dit is een stelsel niet-lineair gekoppelde parabolische partiële differentiaalvergelijkingen. Het linkerlid geeft weer dat componenten  $c_i$  horizontaal worden geadvekteerd. De eerste term in het rechterlid laat zien dat slechts verticale eddy-diffusie van belang is.

Om het probleem mathematisch te completeren, zijn beginvoorwaarden

$$c_i(x, 0) = c_i^0(x) \quad i = 1, \dots, p, \quad (3.3)$$

noodzakelijk. Indien op een kunstmatig begrensde gebied wordt gerekend, zijn ook randvoorwaarden nodig. Hiervoor kan eenvoudig een uitdrukking voor continuïteit van massa over de rand worden gekozen. Deze wordt in de meeste situaties beschreven door de inhomogene Robin randvoorwaarde

$$a_i(\underline{x}, t) \frac{\partial c_i}{\partial n} + b_i(\underline{x}, t) c_i = g_i(\underline{x}, t), \quad (3.4)$$

waarin  $\underline{n}$  de normaal op de rand is.

In de analyse van numerieke schema's wordt ervan uitgegaan dat het meteorologische windveld  $\underline{u}$  en de initiële concentraties  $c_i^0$  gegeven zijn, tenminste op een voorgeschreven rooster. Voorts zullen de relaties voor  $k_z$  en  $f_i$  bekend worden verondersteld.

### 3.1.2 De methode van fraktionele stappen

De moeilijkheden die opdoemen bij de numerieke oplossing van (3.2-4) vinden hun oorzaak in het volledig verschillende karakter van het advectiegedeelte, het turbulente diffusiegedeelte en de chemische reactie termen  $f_i$ . In de atmosfeer spelen advektieve processen over het algemeen een dominante rol ten opzichte van diffusieve processen. De eerdergenoemde restricties zullen aanleiding geven tot het gebruik van grove roosters. Afbreekfouten die het gevolg zijn van de numerieke approximatie van de vergelijkingen zullen hierdoor een onevenredig grote invloed krijgen en de fysische diffusie overschaduw, tenzij de twee delen met aparte, toegesneden methoden kunnen worden behandeld.

Een verdere bron van moeilijkheden wordt gevormd door de forcerende term in (3.2), de reaktieterm  $f_i$ . Afgezien van het feit dat de niet lineariteit van  $f_i$  aanleiding zal geven tot een grillig gedrag, compliceert het ook de numerieke oplosmethode omdat de eigenwaarden voor het evolutieproces (tijd-konstanten) een zeer breed spectrum van tijdschalen bestrijkt. Het is in fotochemische reacties mogelijk om een situatie tegen te komen waarbij individuele reaktietijden in de orde van  $10^8$  s van elkaar verschillen.

Er zijn diverse mogelijkheden om de geschetste moeilijkheden te onder-  
vangen. De hier het meest van toepassing zijnde optie is geïntroduceerd door Yanenko (1971) en verder uitgewerkt door Marchuk (1975). In deze methode van fraktionele stappen wordt de differentiaalvergelijking gesplitst in elementaire delen. Hier kunnen we (3.2) als volgt splitsen

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} + u \frac{\partial c_i}{\partial x} + v \frac{\partial c_i}{\partial y} = S, \quad (3.5a)$$

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} K_z \frac{\partial c_i}{\partial z}, \quad (3.5b)$$

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} = f_i(c_1, \dots, c_p) \quad (3.5c)$$

Indien een tijdstap  $\Delta t$  wordt gedefinieerd waarover (3.5) wordt geïntegreerd, dan geeft de methode van fraktionele stappen aan dat de advectiestap (3.5a), de diffusiestap (3.5b) en de chemiestap (3.5c) na elkaar kunnen worden uitgevoerd. Dit impliceert dat voor elk deel een numerieke methode kan worden ontworpen die compatibel is met het fysische karakter ervan en als zodanig leidt tot een rekenkundig efficiënt, stabiel en nauwkeurig schema.

### 3.1.3 Oppervlakte- en puntbronemissies

Elk numeriek schema dat in aanmerking komt als oplosmethode voor (3.5a) heeft zijn eigen compatibele wijze om de bronterm  $S$  te diskretiseren. Deze bronterm bevat o.a. een oppervlakteforcering  $S_{opp}$  en een forcering door middel van puntbronemissies  $S_p$ .

De oppervlakteforcering zal moeten worden gekonstrueerd uit een emissiebestand. Op Europese schaal zijn er emissiebestanden met een oplossend vermogen van 5-20 km. Indien  $S_{opp}$  glad verloopt, zullen de onderzochte numerieke schema's een goede benadering van deze forcering garanderen.

Indien er echter puntbronnen voorkomen in de initiële situatie of in het rechterlid van de vergelijking, dan geeft dit aanleiding tot moeilijkheden. Op een eindig rooster kan het tijdverloop van een dergelijke bron niet goed berekend worden. Een voor de hand liggende oplossing is dan het concentratieveld voor een tijdstap  $\Delta t$  analytisch te benaderen door middel van b.v. een Gaussisch model. Indien het veld daarna voldoende glad is geworden ten opzichte van de gebruikte maaswijdten, kan het worden gesuperponeerd op het numeriek berekende concentratieveld. Een uitwerking hiervan geeft Karamchandani et al. (1983). Ook indien in de beginfase in een pluim reacties plaatsvinden onder invloed van de lokaal hoge concentraties kan deze aanpak van voordeel zijn.

## 3.2 NUMERIEKE METHODEN VOOR DE ADVEKTIEVERGELIJKING

In deze paragraaf zullen een aantal methoden worden aangegeven, die het meest geschikt zijn voor het oplossen van de behoudsvorm van de advektievergelijking (3.5a) in twee ruimtedimensies

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \text{div} (\underline{u} c) = 0 \quad (3.6)$$

samen met passende in- en uitstroom randcondities, binnen de voorwaarden die het episodemodel met zich meebrengt. Als methoden zullen worden gekozen die methoden die als beste uit vroegere vergelijkingsstudies naar voren gekomen zijn, maar ook methoden die in de afgelopen jaren nieuw zijn ontwikkeld. Juist dit laatste aspect maakt deze studie waardevol.

### 3.2.1 Fysische eigenschappen

Als we formulering (3.6) vergelijken met die van (3.5a) dan merken we op dat in de fysische modellering is aangenomen dat het windveld divergentievrij is:

$$\operatorname{div} \underline{u} = \frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} = 0 \quad (3.7)$$

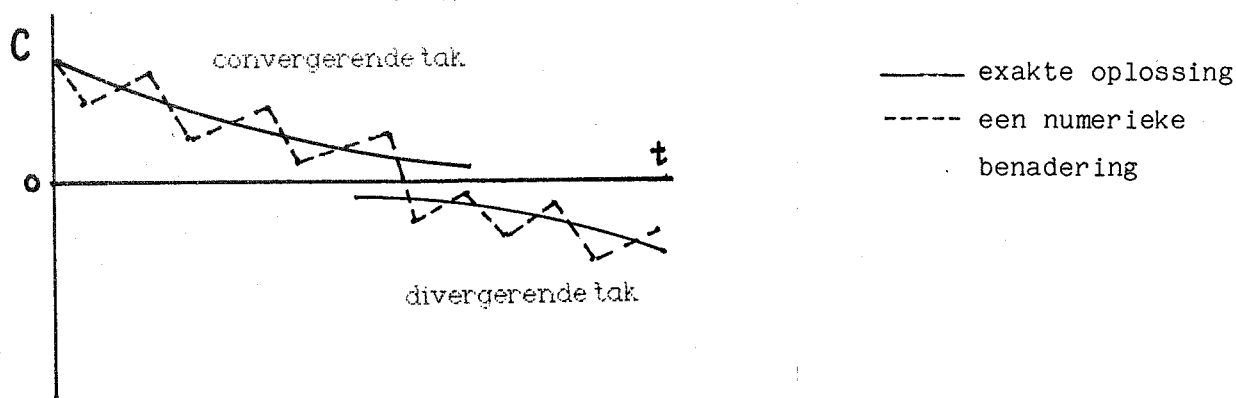
op iedere hoogte  $z$ . Over het algemeen zullen echter methoden worden onderzocht die eigenschap (3.7) niet bezitten. Dit wordt vermeld bij de technische beschrijving van de methoden.

Het is wenselijk dat de gezochte numerieke benadering voldoet aan een aantal eigenschappen van de vergelijking (3.6).

Ten eerste bezit (3.6) de eigenschap dat een positieve initiële situatie positief blijft. Dit is voornamelijk van belang voor het goed kunnen oplossen van de chemische reactievergelijking (3.5c). Een eenvoudig voorbeeld toont aan dat negatieve concentratie van een component een destabiliserende werking hebben. Hiertoe behoeft slechts de testvergelijking

$$\frac{dc}{dt} = -\alpha c^2, \quad \alpha > 0 \quad (3.8)$$

te worden onderzocht. Indien met een onjuiste numerieke methode een negatieve concentratie wordt geproduceerd, dan zal het evenwicht  $c \equiv 0$  asymptotisch onstabiel worden, zie fig. 3.1.



Figuur 3.1

Voor stelsels chemische reacties zoals (3.5c) met een breed spectrum aan tijdskonstanten, kan het negatief worden van een concentratie desastreus zijn. De positiviteitseigenschap blijkt echter bijzonder restriktief te zijn

voor numerieke methoden, zoals uit het vervolg van deze beschrijving blijkt. Vervolgens bezit (3.6) de eigenschap dat massa behouden blijft. Dit blijkt door een integratie over de fysische ruimte  $\Omega$  uit te voeren:

$$\frac{d}{dt} \int_{\Omega} c \, dx = - \int_{\partial\Omega} c \, \underline{u} \cdot \underline{n} \, dS . \quad (3.9)$$

Het rechterlid geeft de flux van materiaal over de rand  $\partial\Omega$  met normaal  $\underline{n}$  weer. Indien deze nul is, toont (3.9) de strikte vorm van massabehoud. Het is duidelijk dat een schema dat aan (3.9) in diskrete vorm voldoet een grote voorkeur geniet.

Als het windveld  $\underline{u}$  konstant is, dan is de advektie-eigenschap van (3.6) expliciet aan te geven. Voor een initiële concentratie  $c(x,y,0) = c^0(c,y)$  is de oplossing dan eenvoudig

$$c(x,y,t) = c^0(x-ut, y-vt) . \quad (3.10)$$

Het is onmogelijk voor numerieke, benaderende schema's om aan deze eigenschap te voldoen (behalve in triviale gevallen), omdat deze in feite aangeeft dat er oneindig veel behoudswetten zijn. Relatie (3.10) kan echter wel gebruikt worden om de prestatie van de diverse numerieke methoden te meten.

### 3.2.2 Numerieke eigenschappen

Binnen de beperkte ruimte in dit rapport is het niet mogelijk om een exposé te geven van de elementaire implicaties van de numerieke benadering. Hiervoor verwijzen wij naar de leerboeken van Richtmyer en Morton (1967), Roache (1976) en Peyret en Taylor (1983). Wel kunnen enige opmerkingen geplaatst worden die betrekking hebben op de specifieke benadering voor het episode model.

Het blijkt dat de meeste (voor de hand liggende) schema's waarin massabehoud is geëist dispersief van karakter zijn. Positieve schema's zijn daarentegen overwegend diffusief van karakter. Deze tegenstelling kan als eerste argument worden aangedragen voor het feit dat het "optimale" schema niet het meest eenvoudige kan zijn.

Als hierbij de genoemde restricties van par. 3.1 in acht worden genomen, dan betekent het dat we op zoek zijn naar een schema dat bovendien een zo hoog mogelijke nauwkeurigheid garandeert onder een zo laag mogelijke resolutie. Als



sekundaire wens kan worden gesteld, dat de rekentijd aanvaardbaar moet zijn. Ook hieruit blijkt dat het schema analytisch een zekere complexiteit zal vertonen.

Indien er met zeer veel restrikties moet worden gewerkt, is het gebruik van "truuks" een mogelijkheid die overwogen moet worden. Zo kan de behandeling van puntbronnen (par. 3.1) anders worden aangepakt dan de numerieke analyse aangeeft. Of, indien lokaal een negatieve concentratie wordt geproduceert, de reaktiekonstante van een komponent tijdelijk op nul worden gezet, etc. Wel moet zoveel mogelijk de aanvaardbaarheid van dergelijke ad hoc schema's worden bekeken.

In een episodemodel zijn er een aantal overwegingen, waardoor het gebruik van niet-equidistante rekenroosters de voorkeur zou kunnen genieten. Een eerste situatie ontmoeten we wanneer er een grote onregelmatigheid is van de beschikbare gegevens. Een tweede situatie kan zich voordoen indien het gewenst is om een lokale verfijning in het rekenrooster aan te brengen. In beide gevallen is een eindige elementen methode een goede start. Zie hiervoor Strang en Fix (1973) of Van Kan et al. (1983). Hierop zal verder niet worden ingegaan.

Opgemerkt kan nog worden dat de methode van fraktionele stappen, beschreven in par. 3.1.2, toelaat dat de vergelijking (3.6) verder gesplitst kan worden in

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial c}{\partial t} = - \frac{\partial uc}{\partial x} , \\ \frac{\partial c}{\partial t} = - \frac{\partial vc}{\partial y} . \end{array} \right. \quad (3.11)$$

Sommige methoden gebruiken deze aanpak en vandaar dat het dan voldoende is om de analyse van de methode in één ruimtedimensie te geven. Andere methoden maken expliciet gebruik van kruistermen in de afbreekfout, zodat dan een werkelijke multidimensionele behandeling ontstaat.

### 3.2.3 De advektieschema's

Voor een vergelijkend onderzoek naar de meest in aanmerking komende advektieschema's zijn in eerste instantie de beste methoden uitgekozen uit gepubliceerde, vergelijkende onderzoeken. Deze zijn:

- A. de Pseudo-spektrale methode, zie Van Dop et al. (1982),
- B. de Second moment methode, zie Long et al. (1981),
- C. de Chapeau-functie methode, zie Chock (1985).

Hiernaast zijn er twee nieuwe methoden die de aandacht verdienen, namelijk

- D. de methode van Smolarkiewicz (1984),
- E. de deeltjes methode (Praagman, 1986).

Voor een publikatie van dit onderzoek is het noodzakelijk dat er nog een of twee goede alternatieven extra worden betrokken in de vergelijkingsstudie. Een mogelijke kandidaat is Schneider (1984).

In paragraaf 3.2.5 zal een technische beschrijving worden gegeven van de methoden A t/m E.

#### 3.2.4 Testproblemen en criteria

Een drietal zeer verschillende testen zijn uitgekozen om te kunnen bepalen of de gekozen numerieke methoden aan zekere criteria voldoen. Alle testen zijn gebaseerd op de eigenschap (3.9). De testen worden als volgt beschreven.

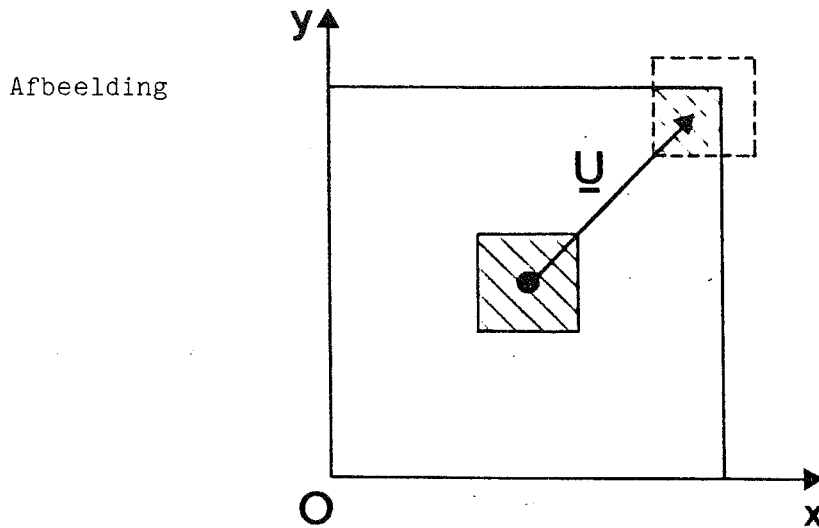
T1 Scherpe gradiënten en grensoverschrijding.

Initiële concentratie:  $c^0(x,y) = 1$  op het blok B,  
 $= 0$  elders.

Blok B :  $B = \{(x,y) \mid i_1 \Delta x \leq x \leq i_2 \Delta x, j_1 \Delta y \leq y \leq j_2 \Delta y\}$

Roosterafstanden :  $\Delta x = \Delta y = 20000$  (m)

Snelheden :  $u = v = 20000/3600$



T2 Een glad, oscillerend concentratieveld.

Initiële concentratie:  $c^0(x,y) = \alpha + \beta \cos^2\left(\frac{\pi}{L_x} x\right) \cos^2\left(\frac{\pi}{L_y} y\right)$

Golflengten :  $L_x =$  lengte in x-richting,  
 $L_y =$  lengte in y-richting.

Roosterafstanden :  $\Delta x = \Delta y = 20000$

Snelheden :  $u = \frac{20000}{3600}$  ,  $v = 0$

T3 Een lokale concentratie in een roterend windveld (de "Molenkamp" test).

De advektievergelijking

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \underline{u} \cdot \text{grad } c = 0$$

wordt in poolcoördinaten geschreven als

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \underline{u} \cdot \left[ \frac{\partial c}{\partial r} \underline{e}_r + \frac{1}{r} \frac{\partial c}{\partial \phi} \underline{e}_\phi + \frac{\partial c}{\partial z} \underline{e}_z \right] = 0 .$$

Voor een starre rotatie geldt

$$\underline{u} = \underline{\Omega} \wedge \underline{r} .$$

Indien we de rotatie om het (x,y) vlak laten plaatsvinden, moet

$$\underline{\Omega} = \omega \underline{e}_z, \text{ zodat } \underline{u} = \omega \underline{e}_z \wedge r \underline{e}_z = \omega r \underline{e}_\phi .$$

De advektievergelijking wordt dus

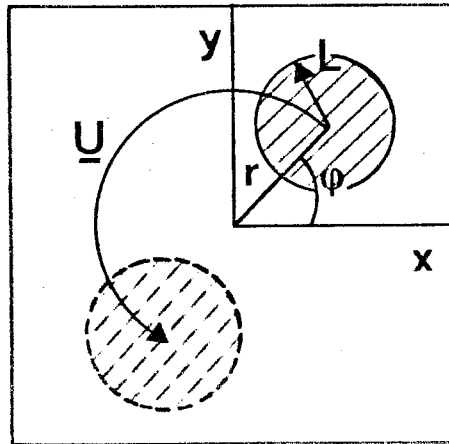
$$\frac{\partial c}{\partial t} + \omega \frac{\partial c}{\partial \phi} = 0 ,$$

met als oplossing  $c(r, \phi, t) = c^0(r, \phi - \omega t)$ .

Initiële concentratie:  $c^0(r, \phi) = A \cos^2\left[\frac{\pi}{2L} \|\underline{x} - \underline{x}^0\|\right]$  als  $\|\underline{x} - \underline{x}^0\| \leq L$   
 $= 0$  elders.

Lengten :  $L = 3\Delta x$ ,  $\underline{x}^0 = [3\Delta x, 0, 0]^t$ ,  $\omega = 2\pi/6 \cdot 3600$   
 $\Delta x = \Delta y = 20000$ .

Afbeelding :



Om objectief te kunnen meten hoe groot de afwijkingen zijn die de numerieke methoden veroorzaken ten opzichte van de exakte oplossingen van T1-T3, zijn een aantal criteria geïntroduceerd. Deze worden als volgt gekatalogiseerd:

$$K1 \quad \text{Max}_{x_i, y_j} c_{ij}^n, \quad \text{Min}_{x_i, y_j} c_{ij}^n .$$

$$K2 \quad \text{Massabehoud} \quad \sum_{i,j} c_{ij}^n, \quad \iint_{\Omega} c(x, y, t) dx dy .$$

De som is een benadering van een oppervlakte integraal, consistent met de benadering van de differentiaalvergelijking (3.6).

$$K3 \quad \text{Kwadratisch behoud} \quad \sum_{i,j} (c_{ij}^n)^2, \quad \iint_{\Omega} c^2(x, y, t) dx dy .$$

$$[\text{Indien } \int_{\partial\Omega} c \underline{u} \cdot \underline{n} dS = 0 \text{ geldt } \frac{d}{dt} \iint_{\Omega} c^n d\underline{x} = 0 \quad n \in \mathbb{IN}] .$$

K4 Normen (N: totaal aantal roosterpunten):

- gemiddelde absolute fout:  $\frac{1}{N} \sum_{i,j} |c_{ij}^n - c(x_i, y_j, t^n)|$  ,
- gemiddelde kwadr. fout :  $[\frac{1}{N} \sum_{i,j} |c_{ij}^n - c(x_i, y_j, t^n)|^2]^{1/2}$  ,
- max. absolute afwijking :  $\max_{i,j} |c_{ij}^n - c(x_i, y_j, t^n)|$  .

K5 Absolute cpu-tijd.

Relatieve cpu-tijd (ten opzichte van de Upwind methode).

Geheugengebruik per component.

Geheugengebruik overall.

K6 Een speciale test voor T3.

Het centrum  $\underline{\sigma}^0$  op  $t=0$  voor test T3 wordt gedefinieerd als  $\underline{\sigma}^0 = \underline{x}^0$ .

Voor  $t>0$  wordt deze gedefinieerd door  $\underline{\sigma} = \underline{R}(\omega t) \underline{\sigma}^0$ , waarin  $\underline{R}$  een rotatiematrix is.

het centrum  $\tilde{\underline{\sigma}}$  van de numerieke benadering  $c_{ij}^n$  wordt gegeven door

$$\tilde{\underline{\sigma}} = [\sum_{i,j} x_i c_{ij}^n, \sum_{i,j} y_j c_{ij}^n, 0]^t / \sum_{ij} c_{ij}^n .$$

De criteria K6 zijn dan

$$v = |\tilde{\underline{\sigma}}| / |\underline{\sigma}| ,$$

$$\alpha_v = \arccos [ \underline{\sigma} \cdot \tilde{\underline{\sigma}} / |\underline{\sigma}| |\tilde{\underline{\sigma}}| ] .$$

### 3.2.5 Technische beschrijving van de advektieschema's

Om een indruk te geven van de oplosmethodieken A t/m E voor de advektievergelijking, volgen hieronder hun technische beschrijvingen op een kwalitatieve wijze.

#### A. De Pseudo-spektrale methode

De advektievergelijking in twee plaatsdimensies wordt door middel van de methode van fraktionele stappen opgesplitst tot (3.11). Het is dus voldoende om

$$\frac{\partial c}{\partial t} + u \frac{\partial c}{\partial x} = 0 \quad (3.12)$$

te beschouwen.

Omdat, speciaal bij scherpe gradiënten in het  $c$ -veld, de moeilijkheid is om  $\partial c/\partial x$  voldoende nauwkeurig te bepalen, maakt deze methode gebruik van een transformatietechniek naar een spektrale ruimte.

Omdat de data op een equidistant rooster worden aangeleverd, ligt het voor de hand een Fourierruimte als spektrale ruimte te kiezen. De methode is schematisch aan te geven als

$$c \rightarrow F(c) \rightarrow F\left(\frac{\partial c}{\partial x}\right) = ik F(c) \rightarrow \frac{\partial c}{\partial x}, \quad (3.13)$$

waarin  $F$  de Fourier transformatie is. De Fast Fourier Transform van Cooley en Tukey (1965) zorgt voor een effectieve transformatietechniek. Om te vermijden dat er een complexe konvolutie moet worden uitgevoerd in de spektrale ruimte, wordt de vermenigvuldiging van  $u$  met  $\partial c/\partial x$  in een fysische roosterpuntruimte uitgevoerd.

Een wezenlijke moeilijkheid wordt veroorzaakt, doordat de Fourier benadering vooronderstelt dat de oplossing periodiek moet zijn. Dit, samen met de integratiemethoden in de tijd zorgen ervoor dat er verscheidene uitwerkingen van de analyse zijn. We noemen Gottlieb en Orszag (1979) (GO) en Christensen en Prahm (1976) (CP).

De periodiciteit heeft tot gevolg dat grensoverschrijding van de concentratie weer terugkeert aan de tegenoverliggende grens. Om dit tegen te gaan, lossen GO dit op door  $c$  kwasi-periodiek te maken. Zij introduceren  $C^2$ -periodiciteit door van  $c$  een (numeriek benaderde)  $n^e$  graads polynoom af te trekken. Dit heeft maar gedeeltelijk succes. CP laten grensoverschrijdende concentraties "wegdempen" door over een (klein) gebied een relaxatieterm aan te brengen. Er is nog geen aandacht aan dit probleem gegeven.

De tijdtintegratie wordt in CP verricht door een Leap-Frog schema. Een implementatie van GO in Van Dop et al. (1982) maakt gebruik van de klassieke Runge-Kutta 4 methode, die impliciet een diffusie van hogere orde introduceert welke gunstig op het resultaat werkt.

### Opmerkingen

De voordelen van de methode zijn:

- de benadering in de fysische ruimte is zeer nauwkeurig;
- de tijdsintegratie is voldoende/zeer nauwkeurig;
- het geheugenbeslag is faktor 4 minder ten opzichte van differentiemethoden bij gelijkblijvende nauwkeurigheid.

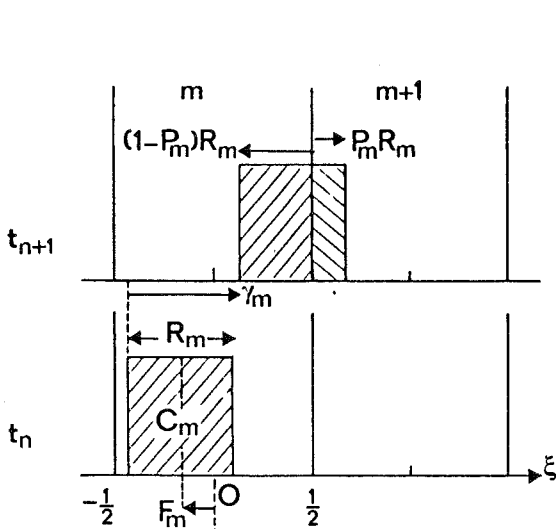
De nadelen zijn:

- de randbehandeling is niet triviaal;
- de methode is niet-positief. Indien er geen randreflekties zijn dan worden negatieve waarden echter bij niet scherpe gradiënten uiterst gering:

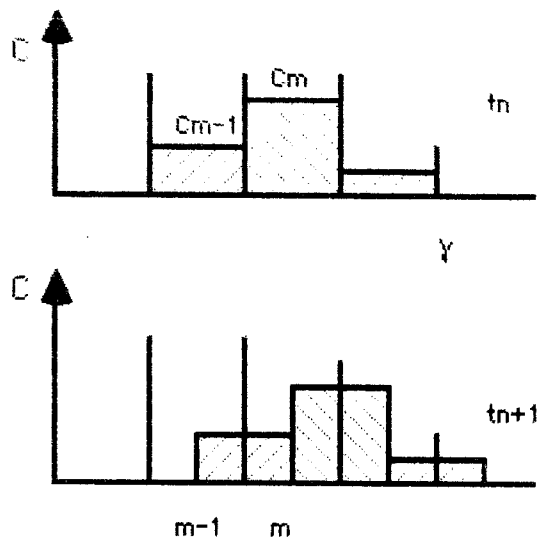
$$|\min_{i,j} c_{ij}^n| \approx \frac{1}{100} \max_{ij} c_{ij}^n.$$

### B. De Second-Moment methode

Deze methode is geïntroduceerd door Egan en Mahoney (1971) en verbeterd door Pedersen en Prahm (1974). Het is een uitbreiding van de upwind-methode, met als karakteristieke eigenschap dat één blokvormige beginconcentratie zijn vorm behoudt. Dit is mogelijk door naast de massa  $\bar{C}_m$  in cel  $m$  ook een dimensioneloos gemiddelde  $F_m$  en breedtemaat  $R_m$  bij te houden.



Figuur 3.2



Figuur 3.3

Uit fig. (3.2) blijkt dat, als we meten in de dimensieloze koördinaat  $\xi = (x-x_m) / \Delta x$ , er geldt

$$P_m R_m = F_m + \gamma + \frac{1}{2} R_m - \frac{1}{2}, \quad (3.14)$$

waarin  $\gamma = u \Delta t / \Delta x$  het Courant getal heet. Indien  $u > 0$ , en het blok overschrijdt de grens met cel  $m+1$  dan geldt  $0 < P_m < 1$ , of  $P_m > 1$ . Voor  $P_m < 0$  blijft alle massa in cel  $m$ . De definities voor de momenten zijn

$$\begin{aligned} \bar{C}_m &= -\frac{1}{2} \int_{-1/2}^{1/2} c(\xi) d\xi \\ F_m &= -\frac{1}{2} \int_{-1/2}^{1/2} \xi c(\xi) d\xi / \bar{C}_m \\ R_m^2 &= 12 \int_{-1/2}^{1/2} (\xi - F_m)^2 c(\xi) d\xi / \bar{C}_m \end{aligned} \quad (3.15)$$

Door fig. (3.3) te beschouwen is het mogelijk door middel van formules (3.15) evolutievergelijkingen voor de momenten af te leiden. Deze hangen af van de waarde van  $P_m$  uit (3.14). Een beslissingstabel levert afhankelijk van de waarde van  $P_m$ , samen met de evolutievergelijkingen nieuwe waarden van  $\bar{C}_m$ ,  $F_m$  en  $R_m$ . Uit fig. (3.2) blijkt dat op deze wijze subgrid gebeurtenissen kunnen worden bijgehouden, mits gerepresenteerd in blokfuncties.

#### Opmerkingen

De voordelen van de methode zijn:

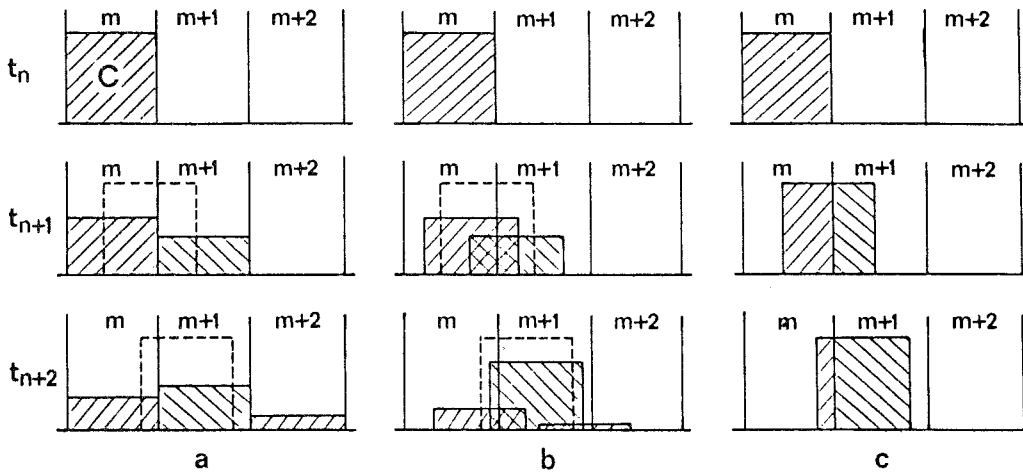
- het Lagrangiaanse karakter zorgt ervoor dat concentraties strikt niet-negatief blijven;
- één blokfunctie wordt exakt verplaatst ( $u$  konstant);
- subgrid bewegingen zijn mogelijk.

De nadelen zijn:

- per komponent zijn 3 arrays nodig (in twee dimensies 5 arrays!);
- de methode is quasi-Lagrangiaans en heeft dus numerieke diffusie.

Door na opwind alleen de F-korrektie of de F en de R korrekties toe te passen voor één blokfunctie, zien we het volgende beeld ontstaan (Egan en Mahoney, 1971)





Figuur 3.4 An initially rectangular concentration distribution advected to the right in the three sequential time steps with  $\gamma = 0.4$ . Dashed distribution corresponds to transport by continuum advection. (a) Simple finite-difference. (b) Difference scheme using reconstruction with first moment of concentration distribution. (c) Difference scheme using reconstruction with first and second moments.

### C. De Chapeau-functie methode

Chock (1985) vindt deze methode als beste van zijn omvangrijke vergelijkend onderzoek. Volledig heet de methode de Chapeau function method, forward Euler with balancing diffusion. Hij gaat uit van de symbolische vergelijking.

$$\frac{\partial c}{\partial t} = Lc, \quad \text{hier } L = -\frac{\partial}{\partial x} (U \cdot), \quad x \in [a, b]. \quad (3.16)$$

Een Taylorontwikkeling voor  $\partial c / \partial t$  laat zien dat

$$c^{n+1} \doteq c^n + \Delta t Lc + \frac{1}{2} \Delta t^2 L^2 c + O(\Delta t^3) \quad (3.17)$$

Hierop past Chock de Galerkin approximatie toe met chapeau-basisfuncties. Voor het hyperbolische gedeelte kiest hij in- en uitstroom randvoorwaarden. Voor de elliptische term echter

$$\left. \frac{\partial U}{\partial x} \right|_a = \left. \frac{\partial U}{\partial x} \right|_b = \left. \frac{\partial c}{\partial x} \right|_a = \left. \frac{\partial c}{\partial x} \right|_b = 0, \quad (3.18)$$

zodat er geen artificiële flux over de randen ontstaat.

Indien op de massamatrix lumping wordt toegepast, ontstaat een expliciet schema. Voor een constante advektiesnelheid  $u$  is de methode identiek aan de zeer dispersieve methode van Lax-Wendroff. De ongelumpete versie levert goede resultaten, indien het niet-lineaire filter van Forester (1977) wordt gebruikt om ongewenste oscillaties te elimineren. Voor lineaire basisfuncties is dit filter massabehoudend.

#### Opmerkingen

De voordelen van de methode zijn:

- de rekentijd is redelijk;
- de geheugenopslag is minimaal;
- goede plaatsrepresentatie.

De nadelen zijn:

- indien lumping wordt gebruikt, is de methode erg dispersief;
- de methode is niet (echt) positief.

#### D De methode van Smolarkiewicz [14]

Evenals Egan and Mahoney (1971) en Chock (1985) maakt Smolarkiewicz (1984) een correctie op het upwind schema. Hij tracht het analytisch te doen als Chock, maar stelt daarenboven dat de positiviteit moet worden gegarandeerd. Het eenvoudigst is het schema te illustreren aan de advektievergelijking met één plaatsdimensie,

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \frac{\partial uc}{\partial x} = 0 . \quad (3.19)$$

De basisstap van de constructie is het positieve upwind schema op een staggered rooster:

$$c^* = c^n - \{ F(c_i^n, c_{i+1}^n, u_{i+\frac{1}{2}}^n) - F(c_{i-1}^n, c_i^n, u_{i-\frac{1}{2}}^n) \} \quad (3.20)$$

waarin de fluxen worden gedefinieerd door

$$F(c_i, c_{i+1}, u) = [ (u + |u|) c_i + (u - |u|) c_{i+1} ] \frac{\Delta t}{2\Delta x} . \quad (3.21)$$

Deze upwind stap genereert een numerieke diffusie met coëfficiënt

$$K_{\text{impl}} = \frac{1}{2} |u| (\Delta x - |u| \Delta t) . \quad (3.22)$$

De heuristiek van de methode is om deze diffusie tegen te gaan. Chock doet dit in het gelumpete geval door (3.22) in de ontwikkeling van (3.20) in te vullen, hetgeen resulteert in een Lax-Wendroft schema. Smolarkiewicz, echter, houdt vast aan de advektievorm en konstrueert daardoor een niet-lineair, positief schema. De numerieke diffusie wordt teniet gedaan door een "anti-diffusie snelheid" te introduceren.

$$\tilde{u} = \begin{cases} -\frac{K_{\text{impl}}}{c} \frac{\partial c}{\partial x} & \text{als } c > 0 , \\ 0 & \text{als } c = 0 . \end{cases} \quad (3.23)$$

Op basis hiervan en met  $c$  wordt een tweede upwind stap (3.19) uitgevoerd, welke  $c^{n+1}$  oplevert. Het is mogelijk meerdere soortgelijke korrektiestappen uit te voeren, hetgeen de nauwkeurigheid inderdaad laat toenemen, maar de rekentijd ook.

In meerdere dimensies wordt in het schema ook voor kruis-diffusie-termen gekorrigeerd.

#### Opmerkingen

De voordelen van de methode zijn:

- het schema is positief;
- de rekentijd is redelijk;
- de geheugenopslag is aanvaardbaar;
- het konsept is eenvoudig.

De nadelen zijn:

- de numerieke analyse is (nog) empirisch omdat het een niet-lineair schema betreft.

#### E. De deeltjes methode

De deeltjesmethode (Praagman, 1986) kan gebruikt worden om de grootheid  $c(x,y,t)$  te bepalen als oplossing van de advectievergelijking:

$$\frac{\partial c}{\partial t} + u \frac{\partial c}{\partial x} + v \frac{\partial c}{\partial y} = 0 . \quad (3.24)$$

Aangenomen wordt dat de snelheidsvector  $(u,v)$  in een aantal punten op het ge-

bied van interesse gegeven is en dat dankzij een gegeven structuur (een elementennet of een differentienet) voor elk punt uit het gebied de snelheid op eenvoudige wijze via interpolatie is vast te stellen.

Om de veranderingen in het c-veld te berekenen wordt op  $t=0$  het hele gebied bedekt met vierkantjes waaraan een initiële hoeveelheid,  $S$ , wordt toegekend. Indien de vierkantjes een oppervlak  $O$  hebben dan geldt voor de concentratie in zo'n vierkantje:  $c = S/O$  ( $g/m^2$ ).

Vervolgens wordt per tijdstap  $\Delta t$  uitgerekend wat de verplaatsing van het zwaartepunt van ieder vierkantje is. De verplaatsing wordt berekend door lokaal de differentiaalvergelijkingen

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dx}{dt} = u \\ \frac{dy}{dt} = v \end{array} \right. \quad (3.25)$$

met de klassieke 4e orde Runge-Kutta methode op te lossen. Tijdens het proces moeten  $u$  en  $v$  nog enkele malen berekend worden door interpolatie.

Op de rand wordt bijgehouden wat de stroominrichting is. Bij instroming wordt een aantal nieuwe vierkantjes gecreëerd die een door de gebruiker te definiëren hoeveelheid  $S$  meevoeren. Bij uitstroming wordt ieder passerend vierkantje uit de berekening genomen. Na afloop van iedere reeks stappen wordt een hernummering van de vierkantjes toegepast.

#### Opmerkingen

De voordelen van de methode zijn:

- negatieve concentraties kunnen nooit ontstaan;
- baanberekening via 4e orde Runge-Kutta is zeer nauwkeurig;
- eenvoudige randbehandeling;
- minimale geheugenruimte nodig.

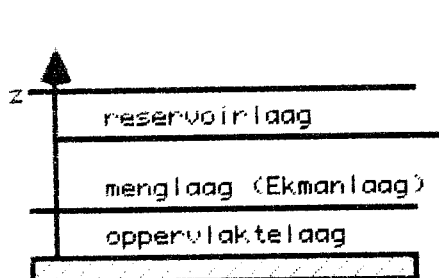
De nadelen luiden:

- plotten van contourlijnen levert problemen (afronden) vanwege het feit dat de concentratie per vierkantje en niet per punt is gegeven. Een vierkantjesplot is uiteraard eenvoudig.

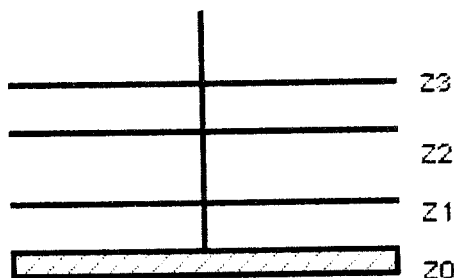
Tot nu toe is onduidelijk wat de relatie van de rekentijd is tot die van andere methoden. Voor een uitvoeriger beschrijving en conclusies verwijzen we naar Van Stijn et al. (1987).

### 3.3 DE NUMERIEKE AANPAK VOOR DE DIFFUSIEVERGELIJKING

De numerieke aanpak voor de diffusievergelijking (3.5b) lijkt niet veel moeilijkheden te geven. In dit geval doen veel schema's het goed, zodat het daarom voldoende is een centraal gediskretiseerd schema te kiezen. In deze laten we ons sterk leiden door de fysica van het probleem. In hoofdstuk 1 is in de modellering uitgegaan van het feit dat er meteorologisch in de atmosfeer een aantal "fysische" lagen van een speciaal karakter te onderscheiden zijn. Deze zijn de oppervlaktelaag en de menglaag. Voor modelleringsdoeleinden is hierop nog een reservoirlaag aangebracht. Zie fig. 3.5.



Figuur 3.5



Figuur 3.6

Een gelijksoortige numeriek wiskundige aanpak is te vinden in de eindige volume- of celmethode (zie b.v. Peyret en Taylor, 1983). Deze methode gaat uit van de integraalrepresentatie van (3.5b). Daarna wordt het gebied verdeeld in elementaire rechthoeken, waarin de integratie wordt uitgevoerd (zie Fig. 3.6). Merk op dat in (3.5b) slechts één plaatsdimensie ( $z$ ) is overgebleven.

In een interval  $(z_k, z_{k+1})$  wordt (3.5b) nu

$$\frac{\partial}{\partial t} \int_{z_k}^{z_{k+1}} c dz = k_z \left. \frac{\partial c}{\partial z} \right|_{z_k}^{z_{k+1}} . \quad (3.26)$$

Indien de laagdikte  $\Delta z_k$  varieert, moeten hiervoor extra termen worden geïntroduceerd. Als nu  $c_k$  een gemiddelde waarde in  $(z_k, z_{k+1})$  is en  $\Delta z_k = z_{k+1} - z_k$  dan

$$\frac{\partial}{\partial t} (\Delta z_k \cdot c_k) = k_z \left. \frac{\partial c}{\partial z} \right|_{z_k}^{z_{k+1}} . \quad (3.27)$$

Het is nu aan de fysische modellering om de fluxen in het rechterlid goed te parameteriseren die de interactie tussen de verschillende lagen be-

schrijft. Zie hiervoor elders in dit rapport. Een aantal opmerkingen resteren.

- In konvektieve omstandigheden is de diffusie zeer goed te beschrijven door instantane menging over de menglaaghoogte toe te passen (zie Van Dop et al., 1982).
- Het dispersieproces vindt in stabiele omstandigheden voornamelijk plaats doordat de windrichting (en -sterkte) in de menglaag verandert met de hoogte  $z$ . Op het moment is er voor elke laag één advektie aktie geprojecteerd. Het moet worden nagegaan of dit proces redelijkerwijs aldus kan worden beschreven.
- De numerieke stabiliteitseis geeft aan dat  $\Delta t \sim \Delta x^2$ , terwijl deze lineair is voor het advektieproces. Desondanks is het mogelijk de integratie voor (3.26) met (2\*) grotere  $\Delta t$  te laten uitvoeren dan voor de advektiestap.

#### 3.4 NUMERIEKE BEHANDELING VAN DE CHEMIE

Tot op heden is er geen aandacht geschonken aan de specifieke, gedetailleerde numerieke problemen die optreden bij de integratie van (3.5c). Duidelijk is echter dat het stelsel reactievergelijkingen zeer stijf zal zijn. Een behandeling moet daarom worden gezocht in de methode van Gear (1971). In zijn proefschrift geeft Hundsdorfer (1984) een overzicht op het gebied van de numerieke methoden voor stijve differentiaalvergelijkingen. Praktisch kan worden overwogen het spektrum van tijdconstanten te splitsen in "langzaam" en "snel" reagerende stoffen. Een beschrijving van deze techniek is te vinden bij McRae et al. (1982).

#### 4. METEOROLOGISCHE DATA VOOR VERSPREIDINGSMODELLEN

##### 4.1 HET WINDVELD

In de proefperiode zijn 6-uurlijkse ECMWF-windvelden gebruikt. Dit zijn grofmazige, niet divergentie-vrije velden van windvectoren in drukvlakken. Gebruikt zijn 1000 mbar en 850 mbar. Deze velden worden geconverteerd naar het gewenste rooster.

Er worden voorbereidingen getroffen om met het LAM-model windvelden te genereren. Een gisveld voor neerslag ten behoeve van de regenanalyse komt dan ook uit het LAM. Dit worden 3-uurlijkse velden. Hieronder volgt een samenvatting van de wijze waarop met het LAM windvelden worden geproduceerd.

Een analyse van b.v. wind of neerslag wordt gebaseerd op de beschikbare waarnemingen en een gisveld. Dit laatste is een zo goed mogelijk schatting van het te analyseren veld. Het wordt gebruikt om de waarnemingen aan te vullen in "lege" gebieden (b.v. boven zee of in de bovenlucht) en om de kwaliteit van de waarnemingen te beoordelen. De kwaliteit van het gisveld werkt direct door in de kwaliteit van de uiteindelijke analyse. Daarom wordt in moderne analysesystemen gebruik gemaakt van zo volledig mogelijke modellen van de atmosfeer om vanuit een voorafgaande analyse een gisveld te voorspellen. Merk op dat de voorafgaande analyse ook tot stand is gekomen met behulp van een gisveld. Zo ontstaat een pseudo-cyclisch proces. Men kan zich dit proces voorstellen als een voortdurende doorgaande modelrun welke op regelmatige intervallen wordt bijgestuurd in de richting van de waarnemingen.

Op het KNMI is het LAM (Limited Area Model) beschikbaar als gisveldmodel. Dit model is een rechtstreekse dochter van het succesvolle ECMWF-model voor 5- à 10-daagse verwachtingen. Het beschrijft een uitgebreid scala van processen die zich in de atmosfeer over een deel van de aardbol afspelen, zoals advectie en wolkenvorming. Daarom kan het betrouwbare gisvelden van b.v. het driedimensionale windveld en de neerslag genereren. Door de technische ontwikkelingen in de computerwereld is het LAM niet extreem duur, hoewel het een zeer uitgebreid programma is.

In de KNMI-implementatie draait het analysesysteem op de CRAY in Reading, Engeland. Om de 3 uur wordt een analyse van luchtdruk en wind geproduceerd. Deze wordt samen met een ECMWF-analyse van vocht gebruikt als beginconditie voor een 3-uursvoorspelling met het LAM, waardoor een volgend gisveld wordt verkregen. Dat voor luchtdruk en wind gaat de volgende cyclus op het

ECMWF in, dat voor de neerslag in de afgelopen 3 uur wordt op het KNMI verder verwerkt in een neerslaganalyse.

In de volgende sectie wordt uitgebreid ingegaan op het gecompliceerde probleem van de neerslaganalyse met behulp van het LAM en synoptische waarnemingen.

## 4.2 NEERSLAGANALYSE

### 4.2.1 Inleiding

Het KNMI en het RIVM werken samen aan het ontwikkelen van een numeriek verspreidingsmodel voor luchtverontreiniging. Dit model zal een groot deel van Europa omvatten. Het beschrijft transport, omzetting en verwijdering van verscheidene stoffen. Omdat natte depositie een belangrijk verwijderingsproces is, bestaat er behoefte aan neerslaggegevens per roosterpunt en met een grote resolutie in de tijd. De keus is gevallen op tijdstappen van 3 uur.

De synoptische stations melden elke 3 uur het overheersende weer van de afgelopen uren. De hoeveelheid neerslag echter wordt per 6 uur, of zelfs per 12 uur gemeld. Verder zijn synopgegevens niet altijd foutloos. Er moet nog een controle plaatsvinden. Ook ontbreken vaak gegevens.

Boven zee wordt in het algemeen geen neerslag gemeten. Sommige voor- spelmodellen voorspellen wel neerslag boven zee. Daarmee kan de kwaliteit van de neerslaganalyse verbeterd worden. Uiteindelijk moeten de gegevens van synopstations ruimtelijk geïnterpoleerd worden naar roosterpunten. Deze waarde moet representatief zijn voor het roostervak rondom dat punt.

In de secties 4.2.2 t/m 4.2.4 worden achtereenvolgens de gevolgde weg voor extractie, tijdsinterpolatie, en plaatsinterpolatie behandeld. In par. 4.2.5 worden de resultaten gepresenteerd.

### 4.2.2 Data extractie

Boven Europa staan synoptische waarnemingen per uur ter beschikking. Op de hoofduren (00, 06, 12, 18) gelden de verleden codes, W1 en W2, voor de afgelopen 6 uur, op de tussenuren (03, 09, 15, 21) gelden ze voor de afgelopen 3 uur. Op de overige uren gelden ze voor 1 uur. Tijden zijn altijd in GMT. De hoeveelheid neerslag wordt bepaald als 6- of 12-uurssom. De 12-uurssommen worden alleen gemeld om 6 en 18 GMT. De meeste stations melden ook een hoeveel-



heid om 00u en 12u GMT, maar dan een 6-uurssom. De hoeveelheid neerslag wordt gecodeerd als RRR. De lengte van de meetperiode als  $t_R$ . Voor de preciese betekenis van deze codes zie de appendix.

Eerst extraheren we uit de synopfiles de codes ww, W1, W2, RRR en  $t_R$  om de 3 uur voor een gehele dag voor het gekozen gebied. De gegevens worden gerangschikt per station.

- De code RRR wordt omgezet in mm neerslag.
- Een hoeveelheid neerslag van 40 mm tot 100 mm wordt alleen meegenomen als ww of W1 een bui geven (ww > 90 of W1 > 7).
- Is W2 als / gecodeerd, dan wordt ze gelijk gemaakt aan W1 bij gebrek aan nadere informatie.

Om de hoeveelheden neerslag te kunnen vergelijken, bepalen we de gridsom. De gridsom is de som van de neerslaghoeveelheid van alle gridpunten in een bepaald veld.

#### 4.2.3 Een tijdsinterpolatie-schema voor 6- en 12-uursneerslagsommen

##### Interpolatie naar 6-uurssommen

De eerste stap naar een 3-uursveld, is het, per station, in de tijd interpoleren van de 12-uurssommen, en de 6-uurssommen. Dit doen we in twee stappen met behulp van de W1 en W2 code. Eerst worden zo veel mogelijk 6-uurssommen bepaald. Vervolgens worden deze verdeeld in twee 3-uurssommen. Uit metingen van regenhoeveelheden op 00 , en 06 , 12 , 18 en 24 GMT op één station willen we 6-uurssommen halen. Is de meetperiode voor een waarneming  $t_R = 1$  of 2 (maal 6 uur) dan blijft dat zo. Staat er een andere waarde voor  $t_R$ , dan wordt deze op grond van het waarnemingstijdstip op 1 (00, 12, 24) of op 2 (6, 18) gezet zonder correctie van RR.

Voor het interpoleren in de tijd hebben we maximaal de waarnemingen van drie achtereenvolgende tijdstippen nodig. En wel:

- RR0 : de gemeten neerslaghoeveelheid op het te onderzoeken tijdstip;
- RR-6: de gemeten hoeveelheid, 6 uur eerder;
- RR+6: de gemeten hoeveelheid, 6 uur later;
- TRO : de meetperiode in eenheden van 6 uur voor het te onderzoek tijdstip;
- TR-6: de meetperiode van 6 uur geleden;
- TR+6: de meetperiode van 6 uur later;
- W0 : de weegfactor voor het te onderzoeken tijdstip;

W-6 : de weegfactor voor 6 uur geleden;  
 W+6 : de weegfactor voor 6 uur later;  
 RVO : de gezochte 6-uurs som.

Om eventueel ontbrekende metingen te kunnen schatten, worden weegfactoren toegekend, die gebaseerd zijn op de W1W2-codering. We bepalen eerst een weegfactor per tijdstip op één station volgens tabel 4.1. Zie ook schema 4.1. Als W1 of W2  $\geq 5$ , dan geldt n (nat), anders d (droog); obk: waarneming ontbreekt. W kan zijn W-6, W0 of W+6.

Tabel 4.1 Bepaling weegfactor op één tijdstip.

W1	W2	Weegfactor W
n	n	2
n	d	1
d	d	0
obk	obk	1

Opmerking: Voor tabel 1 worden W1 en W2 van de hoofduren gebruikt, geldig voor de afgelopen 6 uur. W1 is groter dan, of gelijk aan W2(3).

Nu kunnen we de 6-uurssom op één tijdstip als volgt bepalen (zie ook schema 4.2):

- betreft de meting RRO een meting over 6 uur ( $TR0 = 1$ ) dan is dit al de 6-uurs som.  $RVO = RRO$ ;
- betreft de meting RRO een 12-uursperiode ( $TR0 = 2$ ) dan moet de meting van het vorige tijdstip RR-6 hier afgetrokken worden.  $RVO = RRO - RR-6$ .

Ontbreken er gegevens, dan kunnen we proberen ze aan te vullen.

1. Geeft W1W2 dd ( $W0 = 0$ ), dan wordt altijd  $RVO = 0$ .
2. Ontbreekt bij een 12-uurs som de voorafgaande 6-uurs som, dan wordt RRO gewogen verdeeld over RV-6 en RVO:

$$RVO = \frac{WO}{W-6 + WO} * RRO .$$

3. Ontbreekt de te onderzoeken meting RRO, dan leiden we de waarde af volgens de neerslagmeting en de weegfactoren uit de naastliggende waarden (W-6, WO, W+6, RR-6 en RR+6).

- a. Ontbreekt ook de volgende meting RR+6, dan wordt alleen RR-6 gebruikt volgens:

$$RVO = \frac{WO}{W-6} * \frac{RR-6}{TR-6} ,$$

tenzij  $W-6 = 0$ , of  $RR-6 = \text{obk}$  (ontbreekt). Dan vervalt RVO.

- b. Is RR+6 aanwezig, en geldig voor een 12-uurs periode ( $TR-6 = 2$ ), dan berekenen we RVO met

$$RVO = \frac{WO}{W-6 + WO} * RR+6 \text{ (zie ook 2)}$$

(WO = ongelijk 0 wegens 1)

- c. Is RR+6 aanwezig, en geldig voor een 6-uurs periode ( $TR+6 = 1$ ), dan kijken we of ook RR-6 aanwezig is. Zo ja, dan gaan we gewogen interpoleren

$$RVO = \frac{WO}{W-6 + W+6} * \left( \frac{RR-6}{TR-6} + RR+6 \right) ,$$

tenzij  $W-6 + W+6 = 0$ . Dan vervalt RVO.

- d. Ontbreekt RR-6, dan nemen we

$$RVO = \frac{WO}{W-6} * RR+6 ,$$

tenzij  $W+6 = 0$ . Dan vervalt RVO.

N.B.: door weegfactoren te gebruiken, is er kans dat de gevonden waarde RVO tot 2 maal groter is dan de hoogste meting uit de omgeving aangeeft.

### Interpolatie naar 3-uurssommen

W1 en W2 zijn te vertalen in n (nat) of d (droog). Verder zijn W1 en W2 op de tussenuren geldig voor de voorafgaande 3 uur. Omdat de hoogste (= natste) code voorrang heeft, kan W1 voor 6 uur nooit "droger" zijn dan W1 voor 3 uur.

We krijgen zo voor elk tijdstip een waarde dd ( $W1$  en  $W2 < 5$ ), nn ( $W1$  en  $W2 \geq 5$ ) of nd ( $W1 \geq 5$ ,  $W2 < 5$ ). Zie ook schema 4.1. De code op de hoofduren geldt voor twee periodes van 3 uur. Geeft daarvan de eerste periode dd, dan is eventuele neerslag zeker in de tweede periode gevallen. Geven echter beide periodes neerslag (nn of nd) dan kan het in de 2e periode droog gebleven zijn. De gekozen verdeling staat in tabel 4.2. Zie ook schema 4.3.

Tabel 4.2 Bepaling verdeling van een 6-uurs som in twee 3-uurs sommen.

3-uur	6-uur	verdeling*		toelichting
dd	dd	0	0	
dd	nd	0	1	
dd	nn	0	1	
nd	nd	7/12	5/12	1e periode zeker nat
nd	nn	1/3	2/3	1e periode stukje droog
nn	nn	7/12	5/12	2e periode misschien stukje droog
nn	nd	2/3	1/3	wellicht droog in 2e periode

\* Uit steekproeven is gebleken dat bij deze verdeling de 2e 3-uurs periode ongeveer evenveel neerslag krijgt als de eerste 3-uurs periode.

Geldt voor de 3-uurs W1W2 dezelfde natte klassificatie als voor de 6-uurs W1W2 (dus nn/nn of nd/nd), dan kunnen we naar de ww-code kijken. Uit een kleine steekproef blijkt dat we bij een "droge" ww op het laatste uur de betreffende 3-uurs periode droog kunnen stellen.

De zo gevonden 3-uurssommen, voorzien van coördinaten in het modelrooster, worden per tijdstip geordend. In tabel 4.3 staat hoeveel stations met ge-

schikte waarnemingen bij de extractie van de synopfiles gevonden zijn, en hoeveel stations uiteindelijk meedoen aan de ruimtelijke interpolatie.

Tabel 4.3 Stationstelling.

Tijdstip	Extractie	Interpolatie
86050318	924	803
86050321	814	803
86050400	829	803
86050406	755	788
Gemiddeld over 2 dagen	928	788

Op sommige tijdstippen zijn er meer 3-uurssommen dan gevonden stations in de extractie. Dit wordt als volgt veroorzaakt.

Is er op een nevenuur geen waarneming van ww en W1, dan kan toch de 6-uurssom bekend zijn. Is die gevonden hoeveelheid 0 mm, dan wordt niet meer gekeken naar W1 of ww. Er ontstaat een schijnwaarneming. Bedenk dat op de verschillende tijdstippen vaak andere stations gevonden worden. Dit wordt gedeeltelijk veroorzaakt doordat schepen als ze varen steeds als een nieuw station gedetecteerd worden.

Op de in tabel 4.3 genoemde tijdstippen werden in totaal 1157 stations gevonden, waarvan 887 landstations. Hiervan meldden 607 ook minstens eenmaal ww en W1, waaronder 459 landstations. Bij de 2256 verrichtte interpolaties van 6-uurs naar 3-uurssommen, bleek in 1860 gevallen een der beide W1-meldingen te ontbreken.

#### 4.2.4 Ruimtelijke interpolatie

Voor het naar de gridpunten interpoleren gebruiken we een zgn. Successive Correction Method (Cresman) (zie Cats, 1985a, 1985b). Hierin kan een gisveld gebruikt worden. Voor deze proefperiode hebben we een gisveld uit het LAM gebruikt. Wordt er geen gisveld aangeboden, dan wordt het gisveld 0 (droog) verondersteld.

Het interpolatieprogramma werkt als volgt. De neerslag wordt geanaly-

seerd door per gridpunt nabij gelegen metingen op te zoeken. Tot op afstand  $3r$  van een gridpunt in X en Y richting worden metingen gewogen meegeteld volgens:

$$\alpha_k = \frac{1}{1 + \frac{R^2}{r^2}} \quad (4.1)$$

met  $\alpha_k$  = de weegfactor per meting voor afstand  
 $r$  = de interpolatiestraal en  
 $R$  = de afstand gridpunt-meetpunt.

Dit gebeurt eerst met een grote straal ( $r = 1$  gridpuntsafstand) zodat b.v. ook op zee regen "valt". Vervolgens met een kleine straal ( $r = \frac{1}{4}$  gridpuntsafstand) om een groter oplossend vermogen te krijgen waar veel stations zijn. Beide velden worden gemiddeld.

Verder wordt de invloed van de kustlijn verwerkt door een zgn. kustfactor  $I_C$ . Er wordt een land-zee masker gebruikt waarop in de gridpunten aan de kust  $M = 1$  staat. In zee staat  $M = 2$ , op land staat  $M = 0$ . Er geldt:

$$I_C = (M(\text{waarneming}) - M(\text{gridpunt}))^2 \quad (4.2)$$

De invloed van een waarneming op een gridpunt wordt gewogen met

$$\alpha_c = \frac{1}{1 + I_C} \quad (4.3)$$

Met  $\alpha_c$  = de weegfactor per meting voor de ligging ten opzichte van de kustlijn. Het resultaat van de waarnemingen voor het gridpunt is het volgens (4.1) en (4.3) gewogen gemiddelde. De invloed van het gisveld wordt bepaald door de gisveldfout  $f_g$  voor de eerste scan in te stellen. De defaultwaarde is 120 mm. De fout in de waarneming  $f_0$  is 1 mm. Het gisveld wordt nu gecorrigeerd, waarbij het resultaat van de waarnemingen meetelt volgens

$$\alpha_g = \frac{1}{1 + \frac{f_0^2}{f_g^2}} \quad (4.4)$$

waarin  $\alpha_g$  = de weegfactor per meting ten opzichte van het gisveld. Een geschikte waarde blijkt  $f_g = 4$ .

Nu rest nog één probleem. Het interpolatie programma levert velden op met op sommige punten zeer weinig regen, echter bijna geen punten die droog

zijn. Omdat een regenveld een discreet karakter heeft worden geïnterpoleerde neerslaghoeveelheden beneden 0.3 mm verwaarloosd. Door introductie van de afkapwaarde  $a$  bereiken we dat er ook droge gebieden zijn. Dit is beter in overeenstemming met de werkelijkheid.

#### 4.2.5 Resultaten

Het eindresultaat van deze procedure is vergeleken met een zgn. subjectieve analyse. Er zijn regenkaarten met 12-uurssommen om 06 GMT en om 18 GMT, We moeten dus telkens 4 velden optellen.

Door de grofmazigheid van het grid worden pieken afgevlakt. De grens nat-droog is getuned. De hierbij gevonden waarde 0.3 mm is overigens gebruikelijk bij "modelregen". Zie figuren 4.1 en 4.2.

#### 4.2.6 Conclusie

In het algemeen moet worden opgemerkt dat neerslag een verschijnsel is dat vaak qua duur en ruimtelijke uitgebreidheid een schaal heeft die kleiner is dan het oplossend vermogen van het verspreidingsmodel. Interpolatie naar het rooster ( $\Delta x \sim 100$  km;  $\Delta t \sim 3$  uur) van het numeriek model leidt dan onvermijdelijk tot "uitsmering" van de neerslag en vervlakking van het patroon. Eigenlijk is neerslag een subgridverschijnsel, en zou als zodanig geparаметeriseerd moeten worden. Een complicerende factor is dat het neerslag waarnemingsnetwerk ook veel te grofmazig is in ruimte en tijd om het neerslagpatroon in details te kunnen bepalen. Neerslagmeting is te zien als statistische monsternamen. Verwerking zou dan ook met statistische technieken moeten plaatsvinden. Voorlopig hebben we een bruikbaar model. Met geschikte waarden voor de interpolatiestralen, de afkapwaarde  $a$  en de gisveldfout  $fg$  krijgen we een serie 3 uurlijkse velden, die per 4 gesommeerd, redelijk overeenkomen met de 12-uurlijkse subjectieve analyse.

Wenselijk is een nader onderzoek naar de waarde van de 3-uursvelden. Het gebruik van een gisveld werkt zeker kwaliteitsverhogend.

Schema 4.1 Bepaling 3-uursneerslagsommen uit synopgegevens.

De synop geeft  $RRRt_R$  ww W1W2.

Dit wordt vertaald naar: RR: gemeten neerslag in mm.

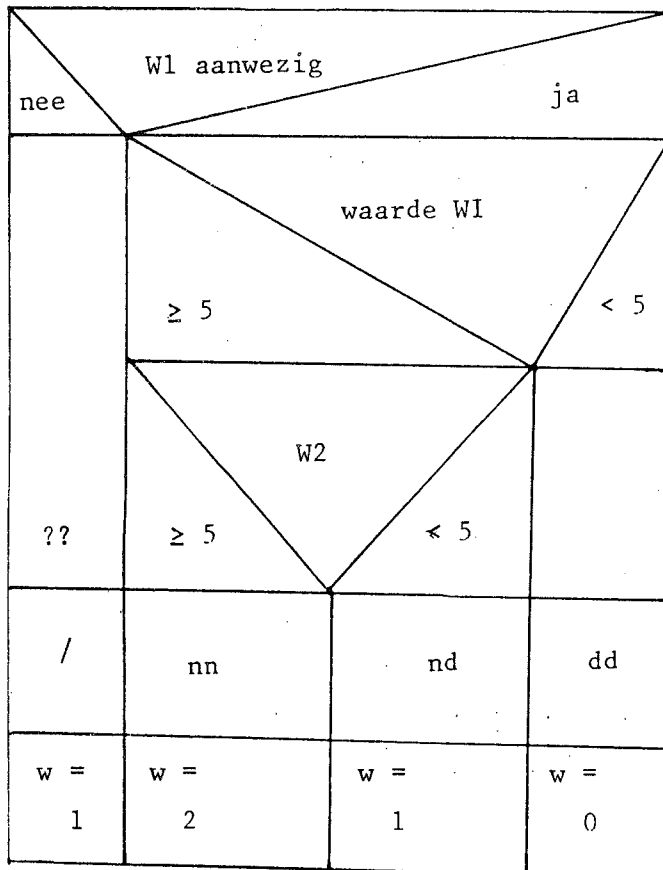
TR: 1 of 2 (periodes van 6 uur)

W : zie schema 4.1.

Het algoritme voor de bepaling van 3-uurlijkse neerslaghoeveelheden wordt hieronder toegelicht in diagrammen.

Vor het gebruik hiervan gelden 2 spelregels:

1. men gaat van boven naar beneden;
2. men mag geen verticale lijn passeren.



Toelichting

Vraag: is W1 aanwezig?

Antwoord.

Vraag: zegt W1 droog ( $<5$ ) of nat ( $\geq 5$ )?.

Splitsing in twee gebieden.

Vraag: geeft W2 droog of nat)?

- opm. 1) als w2 aanwezig is,  
is 2 dat ook;  
2)  $W2 \leq W1$ .

Conclusie: 4 gevallen.

Klassificatie voor bepaling 3-uurssommen (schema 4.3).

Waarde van W ter bepaling 6-uurssommen (schema 4.2).



Schema 4.2 Bepaling 6-uurssommen.

Indices : 0 : periode in bewerking  
 -6 : vorige 6-uurs periode  
 +6 : volgende 6-uurs periode

Symbolen: RR : waargenomen neerslag in mm  
 TR : aantal 6-uurs perioden in RR  
 W : weegfactor vervangt W1 W2  
 RV : bezochte 6-uurs som  
 X : laten vervallen

0 droog		W0									
+0 dus 1 of 2: neerslag		RR <sup>0</sup> aanwezig?									
Ja RR <sup>0</sup> gemeten		TR Geldig voor hoeveel perioden?									
nee niet gemeten		Is de volgende meting RR <sup>+6</sup> aanwezig?									
2 12-uurs som		1 6-uurs som		1 6-uurs som		1 6-uurs som		2 12-uurs som		2 12-uurs som	
Is RR <sup>-6</sup> de vorige meting aanwezig?		nee		RR <sup>0</sup> is de bezochte hoeveelheid		1 RR <sup>+6</sup> = een 6-uurs som		nee		RR <sup>-6</sup> aanwezig?	
Ja voorafgaande 6-uurs som aanwezig		geen		Is de vorige meting RR <sup>-6</sup> aanwezig?		nee ontbreekt		12-uurs som		1 of 2	
afrekken RV = RR <sup>0</sup> - RR <sup>-6</sup>		bijbehorende 6-uurs som		Ja aanwezig		0		12-uurs som gewogen verdelen		extrapoleren	
waarde RV		12-uurs som gewogen verdelen		WI + WII		0		RV =		Hier valt niets meer te zeggen	
< 0		RV =		Interpoleren		0		RV =		0	
> 0		RV =		probleem		0		RV =		0	
Fourje X		RV =		X		0		RV =		X	
RV goed RR <sup>0</sup> - RR <sup>-6</sup>		RV =		X		0		RV =		X	
RV = 0		RV =		X		0		RV =		X	

Schema 4.3 Bepaling 3 uurssommen uit 6-uurssommen.

W3 en W6 aanwezig		Zijn W3 en W6 aanwezig?			nee
nd of nn Het heeft geregend in 1e halve periode		klasse van W3		dd	W3 of W6 ontbrekend
klasse W3		nn		le halve periode droog	
nd Het heeft een gedeelte van de tijd geregend		Het kan 3 uur lang geregend hebben			
klasse W6		klasse W6		klasse W6	
nn	nd	nn	nd	nn of nd	dd
Het is in de eerste helft ook wel eens droog geweest. Van de tweede helft weten we dat niet.  RRV <sub>a</sub> = 1/3 RV RRV <sub>b</sub> = 2/3 RV	De 1e n kan op de eerste helft slaan, echter ook op de 2e helft. Dus:  RRV <sub>a</sub> = 7/12 RRV <sub>b</sub> = 5/12	Het stukje droog is in de 2e helft gebeurt.  RRV <sub>a</sub> = 2/3 RV RRV <sub>b</sub> = 1/3 RV	Eerste helft droog. 2e helft nat. Dus alle neerslag in 2e helft.  RRV <sub>a</sub> = 0 RRV <sub>b</sub> = RV	De hele periode droog.  RRV <sub>a</sub> = 0 RRV <sub>b</sub> = 0	RRV <sub>a</sub> = RV/2 RRV <sub>b</sub> = RV/2

symbolen: W3: nn, nd, dd uit schema 1 geldig voor 3 uur  
 W6: nn, nd, dd uit schema 1 geldig voor 6 uur  
 RV: 6-uurs neerslagsom  
 RRV<sub>a</sub>: 3-uur neerslag in eerste helft van de periode  
 RRV<sub>b</sub>: 3-uur neerslag in tweede helft van de periode  
 X: laten vervallen

Appendix    Betekenis van de gebruikte codes uit de synops

Overgenomen uit Meteorologische codes (1982).

$W_1W_2$	Verleden weer (Code 4561) (FM 12 en 13)	
0	bewolkt gedeelte 4/8 of minder in het gehele tijdvak	
1	bewolkt gedeelte meer dan 4/8 in een deel van het tijdvak en 4/8 of minder in een ander deel van het tijdvak	
2	bewolkt gedeelte meer dan 4/8 in het gehele tijdvak	
3	zandstorm, stofstorm of hoge driftsneeuw	
4	mist (ijsmist) of zware heiligheid	
5	motregen	geen bui(en)
6	regen	geen bui(en)
7	sneeuw, of regen en sneeuw gemengd	geen bui(en)
8	bui(en)	
9	onweder(s) met of zonder neerslag	

1. De periode, waarover  $W_1$  resp.  $W_2$  wordt beoordeeld is:

6 uren voor de waarnemingen van 0000, 0600, 1200 en 1800 GMT:

3 uren voor de waarnemingen van 0300, 0900, 1500 en 2100 GMT:

1 uur voor de waarnemingen van de overige waarnemingstijden en voor waarschuwingsrapporten.

2. De codecijfers voor  $W_1$  en  $W_2$  moeten zodanig worden gekozen dat  $W_1W_2$  en  $w$  tezamen een zo volledig mogelijke beschrijving geven van het weer in de betrokken periode.

Wanneer b.v. het weertype een volledige verandering ondergaat in de betrokken periode moeten de codecijfers voor  $W_1$  en  $W_2$  zodanig worden gekozen dat zij het weer beschrijven dat voorkwam vóór het weertype dat met  $w$  wordt gecodeerd.

3. Indien, met inachtneming van het vorenstaande, met betrekking tot het verleden weer, meer dan één codecijfer voor  $W_1$  kan worden gegeven, wordt het hoogste codecijfer voor  $W_1$  gemeld, en het daarop volgende hoogste cijfer voor  $W_2$ .

4. Indien in de hele periode waarover  $W_1$  en  $W_2$  wordt bepaald één en hetzelfde weertype is voorgekomen, wordt het bij dat weertype horende codecijfer zowel voor  $W_1$  als voor  $W_2$  gegeven.

Wanneer het b.v. in de hele periode heeft geregend (geen bui) wordt  $W_1W_2$  gecodeerd als 66.

5. Indien het verleden weer slechts bekend is over een gedeelte van het tijdvak waarover  $W_1W_2$  wordt bepaald, mag  $W_1$  worden gecodeerd zoals gebruikelijk en voor  $W_2/$  worden gecodeerd.

ww Weer op het ogenblik van waarneming en algemeen karakter van het weer in het afgelopen uur (Code 4677) (FM 12 en 13).

1. De ww-code is verdeeld in tien decaden. In de decaden zijn weersomstandigheden beschreven, welke alle betrekking hebben op een bepaald weertype.
2. Het codecijfer dat het beste het weer op het ogenblik van waarneming of (waar dit in de code bij name is genoemd) in het afgelopen uur aangeeft, wordt gekozen.
3. Wanneer de weersomstandigheden kunnen worden weergegeven door meer dan één ww-codering wordt het hoogste codecijfer gekozen. Het codecijfer 17 heeft evenwel voorrang boven alle codecijfers 20-49.

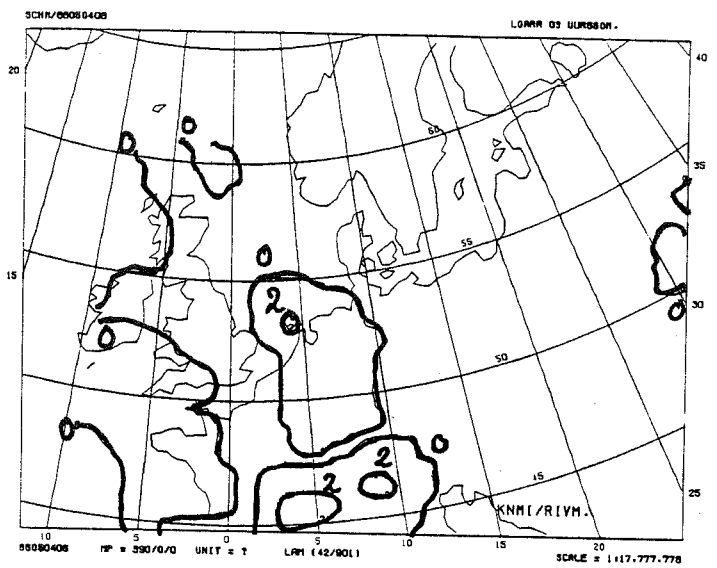
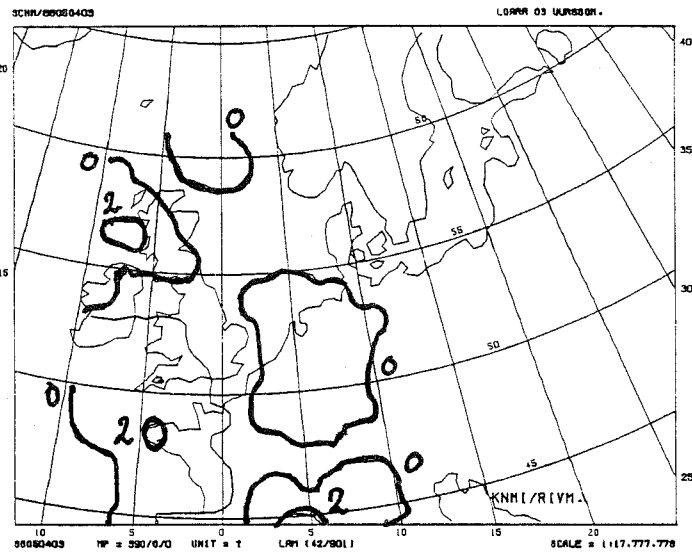
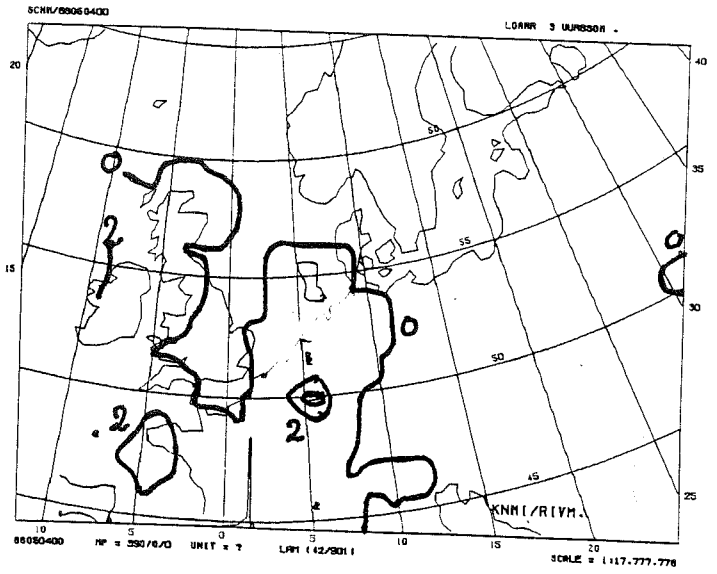
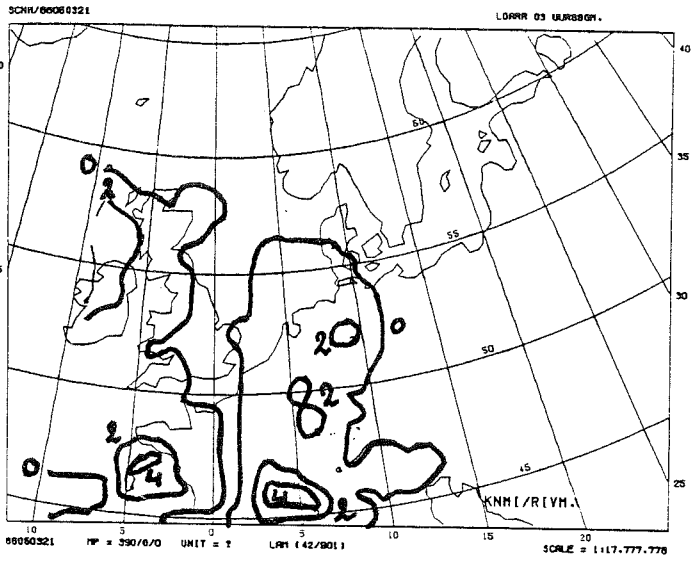
$t_R$  Duur van de periode waarover de neerslag is bepaald in eenheden van 6 uur eindigend op het waarnemingstijdstip (FM 12 en 13).

RRR Neerslaghoeveelheid in de periode  $t_R$  (Code 3590) (FM 12 en 13).

---

Codecijfer	mm	codecijfer	mm
000	niet in gebruik	990	enkele druppels
001	1	991	0.1
002	2	992	0.2
.	:	993	0.3
:	:	994	0.4
:	.	995	0.5

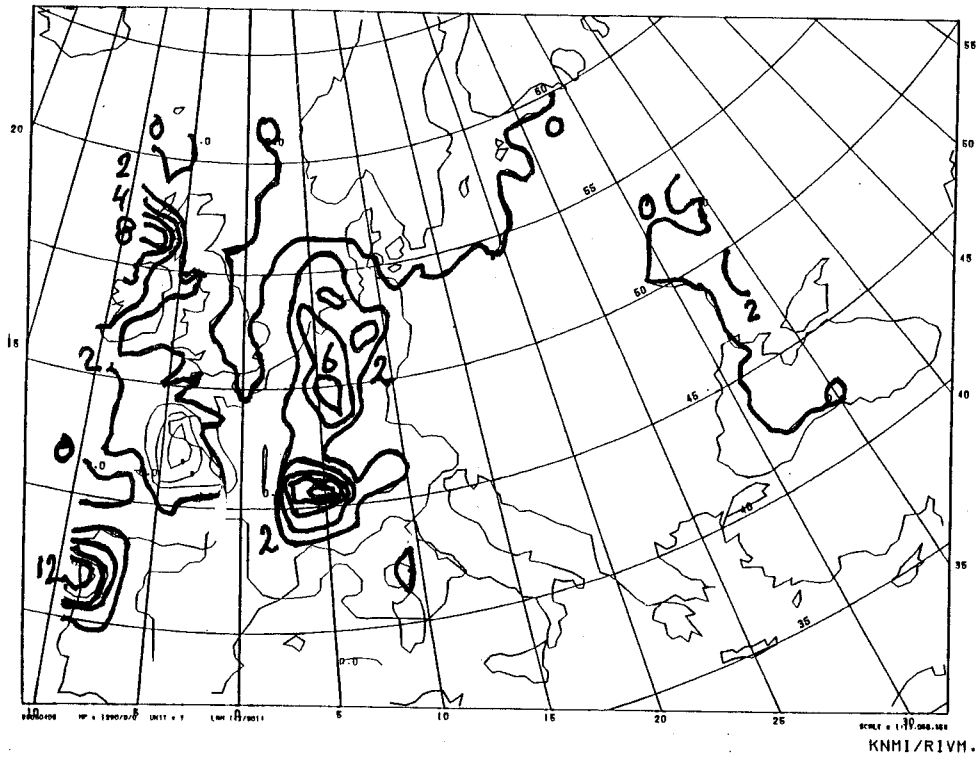
---



Figuur 4.1 3-uurlijkse neerslagvelden.

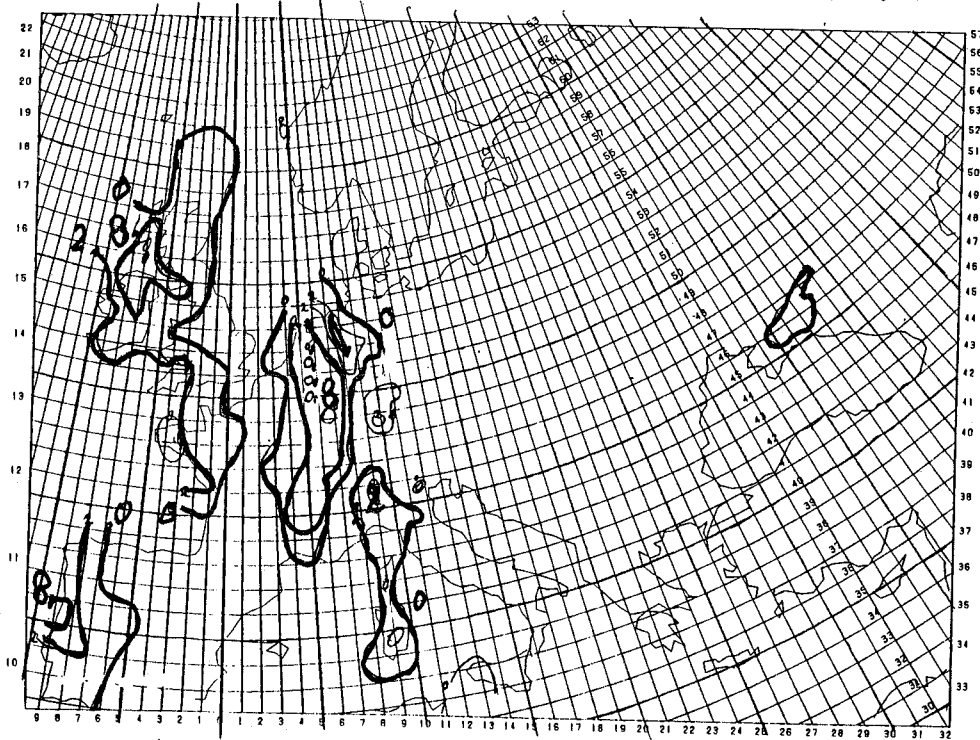
LCRRR/86050406

REGEN 12 UUR.



SUDAN/86050406

12-uurs som



Figuur 4.2 Gesommeerde velden en handanalyse.

### 4.3 MENGHOOGTE EN TURBULENTIE

Bij de verspreiding van luchtverontreiniging spelen de menghoogte en turbulentie-intensiteit een grote rol. Om deze te kunnen berekenen, is de schatting noodzakelijk van nog enkele additionele meteorologische parameters, zoals temperatuur, bedekkingsgraad en verticale temperatuuropbouw. Er zijn theoretisch veel mogelijkheden om deze te genereren. Het ligt echter voor de hand aan te sluiten bij bestaande modellen.

#### 4.3.1 Berekening van de menghoogte

Voor het berekenen van de menghoogte gebruiken we de formulering volgens Van Dop et al. (1982), eventueel aangevuld met de stabiliteitsprocedures volgens Van Ulden en Holtslag (1985). Als startwaarde gebruiken we

$$z_i = 0.2 u_* \frac{1}{f},$$

waarin  $z_i$  = de menghoogte,

$u_*$  = de wrijvingslengte, en

$f$  = de coriolisparameter.

In stabiele omstandigheden gebruiken we:

$$z_i = 0.26 * L * \left\{ (1 + 13600 u_* / L^{1/2} - 1) \right\}$$

met  $L$  = de Obukhov-lengte.

In onstabiele omstandigheden gebruiken we een groeimodel

$$\frac{dz_i}{dt} = \frac{H_o \left\{ 1 + 2 C_1 + \frac{2 k^2 C_2^2}{C_1} \left(\frac{L}{z_i}\right)^2 \right\}}{\gamma z_i \left\{ 1 - \left(\frac{k C_2}{C_1}\right) \frac{L}{z_i} \right\}}$$

met  $H_o = - \frac{u_*^3 T}{kgL}$

$k$  = de von Karman constante

$g$  = de zwaartekracht versnelling

$H_o$  = de warmteflux aan de grond ( $\text{kms}^{-1}$ )

$C_1 = 0.2$

$C_2 = 2.5$

$u_*$  wordt berekend uit  $U_{10} = \left(\frac{u_*}{k}\right) \left\{ \ln \left(\frac{10}{z_0}\right) - \psi_1 \left(\frac{10}{L}\right) \right\}$

$\psi_1$  = een stabiliteitscorrectie

$z_0$  = de ruwheidslengte

#### 4.3.2 Het temperatuurprofiel

In de groeiformule voor de menghoogte overdag onder onstabiele omstandigheden is het verticale temperatuurprofiel nodig. Dit profiel wordt op enkele plaatsen gemeten met behulp van sondes (weerballonnen). Deze sondes melden de zogenaamde karakteristieke punten: de temperatuur (T) en de druk (P) worden gemeten. Deze set gegevens staat bekend als "temp".

Uit de druk wordt eerst de hoogte (h) bepaald, zodat we een h-T grafiek hebben. In deze grafiek bepalen we de temperatuur om de 50 meter. Hieruit halen we per laagje  $\Delta h$  de parameter.

$$\gamma = \frac{d\theta}{dh} = \frac{\Delta t}{\Delta h} + \Gamma .$$

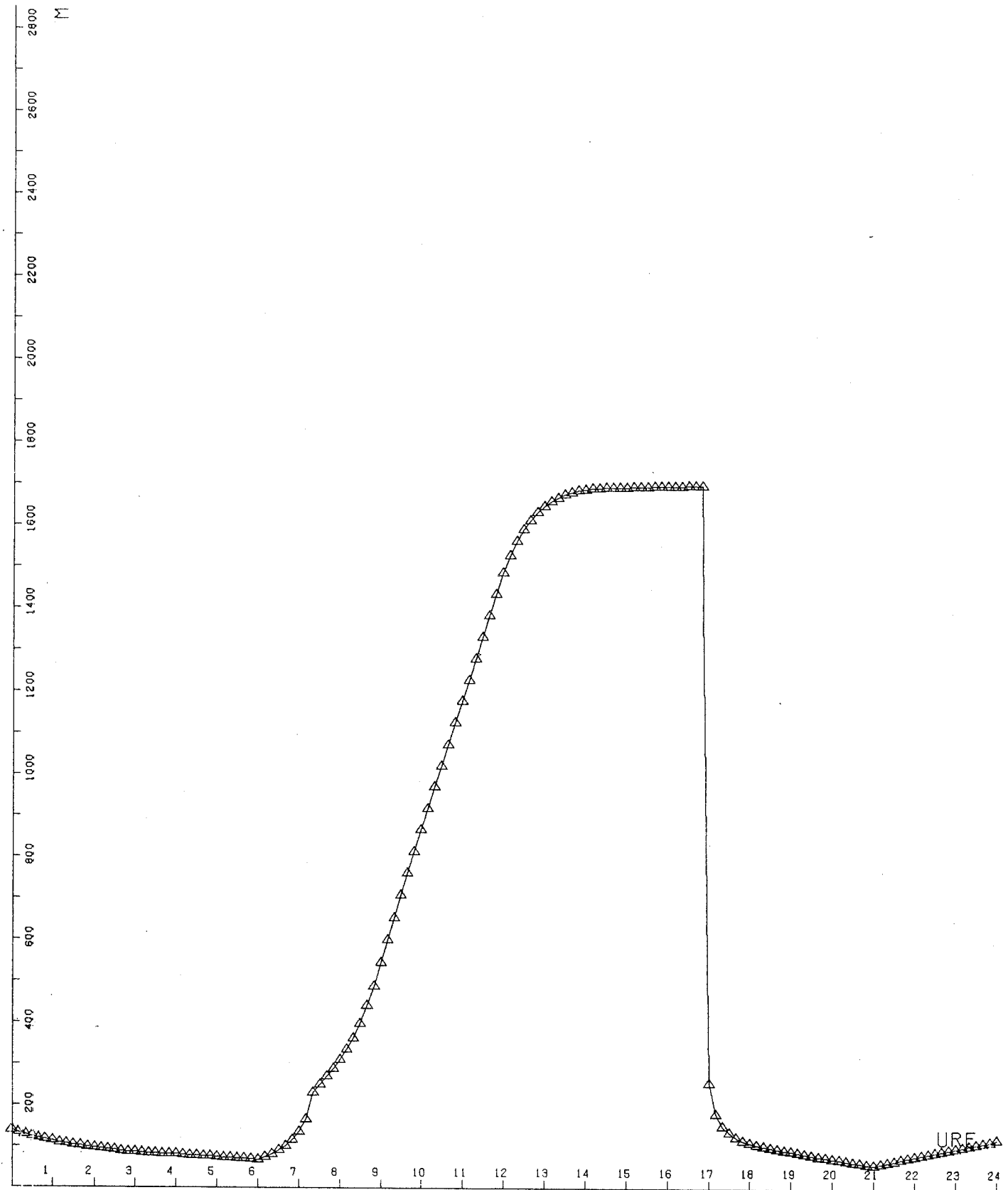
$\gamma$  = de toename van de potentiële temperatuur met de hoogte. Uit iedere temp kunnen we op deze wijze een reeks van  $\gamma$ -waarden berekenen.

#### 4.3.3 Overige parameters

De parameters  $u_*$  en L worden uit modellen gehaald. Twee modellen komen in aanmerking.

- a. De Forecast-Analyse cyclus, geprogrammeerd door Cats (FOAN). Een kwalitatief goed, doch "duur" model voor het genereren van windvelden. We kunnen ook enige bijproducten hiervan gebruiken. Met FOAN is een episode gedraaid. FOAN levert de Obukhov lengte (L) en de 10 meter wind ( $U_{10}$ ). EXTEMP levert de temperatuurprofielen ( $\gamma$ ). Met  $Z_0$  hebben we dan voldoende gegevens. Resultaten zie fig. 4.3.1.
- b. Het Limited Area Model (LAM). Dit is een meerlagen-model, eveneens voor het genereren van windvelden. Het LAM levert de 10 meter wind. EXTEMP levert de temperatuurprofielen. T en N worden op een defaultwaarde gezet.  $u_*$  en L worden iteratief uit de 10 m wind geschat met gebruik van  $z_0$  en de zonnestand (z). We kunnen ook N en T uit de synops halen om het model te verbeteren.





Figuur 4.3 Groei van de menghoogte volgens FOAN.

#### 4.4 TERREINEIGENSCHAPPEN

##### 4.4.1 Inleiding

Emissie en verwijdering van luchtverontreiniging treden voornamelijk op in de onderste laag van de atmosfeer, de grenslaag. Ook de blootstelling en een belangrijk deel van het transport vindt plaats in deze laag. De eigenschappen van de grenslaag staan onder invloed van het onderliggende oppervlak. Drie belangrijke processen waarin terreineigenschappen een rol spelen, zijn:

- 1) het transport van mechanische energie (of moment) naar het oppervlak;
- 2) het verticale transport van warmte van en naar het oppervlak;
- 3) het transport van materiaal van en naar het oppervlak (depositie, verdamping).

Bij de beschrijving van de verspreiding van luchtverontreiniging over een groot gebied (enkele honderden kilometers) ontbreken vaak gegevens van het oppervlak, en wordt alleen een land/zee onderscheid gemaakt.

In dit hoofdstuk worden twee data sets beschreven die verschillende eigenschappen van het landoppervlak weergeven. Aan de hand van deze gegevens wordt aan elk gridpunt in het modelgebied een ruwheidslengte en een depositiesnelheid toegekend.

##### 4.4.2 Beschrijving van de data bestanden

Wilson en Henderson-Sellers (1985) hebben een database aangemaakt met land cover, en "soil" gegevens. Deze gegevens hebben betrekking op gebieden van 1° bij 1° voor de gehele aarde. Voor de beschrijving zijn een groot aantal landkaarten gebruikt, en zijn 52 verschillende land-typen onderscheiden (zie voor een lijst hiervan tabel 4.4. De klassen zijn gemaakt op grond van vier factoren:

- 1) de hoogte van de oppervlakte elementen;
- 2) de dichtheid van de oppervlakte elementen;
- 3) de variatie van de landbedekking met het seizoen;
- 4) de vochtigheid van de bodem.

Per gebied van 1° bij 1° worden twee klassen toegekend:

- de primaire klasse, deze beschrijft (het best) meer dan 50% van het oppervlak;
- de secundaire klasse, deze beschrijft (het best) tussen 25 en 50% van het oppervlak.

Beide klassen kunnen aan elkaar gelijk zijn, in dat geval bestaat het oppervlak voor meer dan 75% uit één bepaalde klasse. Bijlage A geeft beide klassen voor een gebied iets groter dan Europa.

Een tweede bron van gegevens betreft een beschrijving van de orografie van de hele aarde van het ECMWF (European Centre for Medium Range Weather Forecasts). Per oppervlakte van  $1/6^\circ$  bij  $1/6^\circ$  is weergegeven:

1. de gemiddelde hoogte;
2. de maximale hoogte;
3. de minimale hoogte;
4. het land/zee masker.

Bijlage B toont de orografie van het modelgebied.

Voor de landgebruik-klassifikatie is een betrouwbaarheidsschatting uitgevoerd. Deze is gebaseerd op:

- a. een waardering van de bronnen,
- b. mate van overeenstemming tussen de verschillende bronnen,
- c. de verandering van deze gegevens in de tijd en
- d. andere moeilijkheden bij de toekenning van de klassen.

Betrouwbaarheidsklasse 1 betekent de hoogste, en 5 de laagste betrouwbaarheid. Voor het gebied weergegeven in de bijlage A was de betrouwbaarheid voor het grootste gedeelte groot (1), en altijd matig (3) of beter.

Tabel 4.4 Landbedekking klassen (uit: Wilson and Henderson-Sellers 1985) met enkele ruweidslengten  $z_0$  (uit o.a. Wieringa, 1983), en geschatte oppervlakteweerstanden ( $r_c$ ) voor  $SO_2$  (uit o.a. Voldner, 1986).

$r_c$ (s/m)	$z_0$ (m)	Code	Type
0.0	0.0002	00	open water
0.0	0.005	01	inland water
50.0	0.03	02	bog or marsh
700.0	0.0002	03	ice
0.0	0.03	04	paddy rice
---	---	05	mangrove
200.0	1.0	10	dense needleleaf evergreen forest
200.0	0.5	11	open needleleaf evergreen woodland
200.0	1.0	12	dense mixed forest
200.0	0.5	13	open mixed woodland
200.0	0.5	14	evergreen broadleaf woodland
400.0	0.17	15	evergreen broadleaf cropland
---	---	16	evergreen broadleaf shrub
---	---	17	open deciduous needleleaf woodland
---	---	18	dense deciduous needleleaf forest
---	---	19	dense evergreen broadleaf forest
200.0	1.0	20	dense deciduous broadleaf forest
200.0	0.5	21	open deciduous broadleaf woodland
200.0	0.5	22	deciduous tree crop
200.0	0.5	23	open tropical woodland
200.0	0.35	24	woodland plus shrub
---	---	25	dense drought deciduous forest
---	---	26	open drought deciduous woodland
---	---	27	deciduous shrub
---	---	28	thorn shrub
100.0	0.07	30	temperate meadow and permanent pasture
100.0	0.1	31	temperate rough grazing
100.0	0.24	32	tropical grassland plus shrub
---	---	33	tropical pasture
100.0	0.24	34	rough grazing plus shrub
100.0	0.24	35	pasture plus tree
100.0	0.10	36	semi-arid rough grazing
100.0	0.30	37	tropical savanna
---	---	39	pasture plus shrub
400.0	0.17	40	arable cropland
400.0	0.17	41	dry farm arable
---	---	42	nursery and market gardening
---	---	43	cane sugar
400.0	0.24	44	maize
400.0	0.35	45	cotton
---	---	46	coffee
400.0	0.35	47	vineyard
400.0	0.17	48	irrigated cropland
---	---	49	tea
200.0	1.0	50	equatorial rainforest
---	---	51	equatorial tree crop
---	---	52	tropical broadleaf forest
700.0	0.03	61	tundra
700.0	0.17	62	dwarf shrub
700.0	0.005	70	sand desert and barren land
700.0	0.03	71	scrub desert and semi-desert
700.0	0.1	73	semi-desert and scattered trees
---	---	80	urban

#### 4.4.3 Toekenning van een effectieve ruwheid aan de verschillende terreinklassen

Het logaritmische windprofiel voor een neutrale, stationair en horizontaal homogene oppervlaktelaag ( $z \gg z_0$  en  $z/h < 0.1$ , waarin  $h$  de mennghoogte), kan geschreven worden als (Tennekes, 1973):

$$u(z) = \frac{u_*}{k} \ln(z/z_0) \quad (4.1)$$

waarin  $z$  de hoogte,  $u_*$  de wrijvingssnelheid en  $k$  de Von Kármán constante is. De ruwheidslengte  $z_0$  is gedefinieerd als de hoogte waar de windsnelheid volgens het logaritmische windprofiel, gelijk is aan nul.

In het gridmodel zal een ruimtelijk gemiddelde of effectieve ruwheidslengte ( $z_{\phi_{eff}}$ ) bepaald moeten worden. De effectieve ruwheidslengte van een inhomogeen terrein is gedefinieerd als de ruwheidslengte van een (fictief) homogeen terrein, welke, gegeven de windsnelheid, een gelijk ruimtelijk gemiddeld moment transport naar het oppervlak tot gevolg heeft (Fiedler en Panofsky, 1972).

Als aangenomen wordt dat de impulsflux naar het oppervlak gelijk is aan  $\overline{u'w'} = -u_*^2$ , en dat het windprofiel steeds in evenwicht is met het onderliggende oppervlak met ruwheid  $z_0$ , dan is de gemiddelde impulsflux

$$\langle u_*^2 \rangle = \sum_{i=1}^n f_i u_{*i}^2 \quad (\langle \rangle \text{ geeft een ruimtelijk gemiddelde aan}) \quad (4.2)$$

De weegfactoren  $f_i$  zijn gelijk aan de fractie van het oppervlak waarboven de stress gelijk is aan  $u_{*i}^2$ .

Een relatie tussen  $u_*$ ,  $z_0$  en de geostrofische wind is gegeven in de volgende vergelijking

$$\ln\left(\frac{u_*}{fz_0}\right) = A + \left(\left(\frac{kG}{u_*}\right)^2 - B^2\right)^{1/2} \quad (4.3)$$

Deze weerstandswet is afgeleid voor stationaire, horizontaal homogene grenslagen. In neutrale omstandigheden wordt voor  $A$  1.01 en voor  $B$  5.14 gevonden.

Als verondersteld wordt dat de geostrofische wind boven het gehele oppervlak constant is, dan geldt vergelijking (4.3) ook voor  $u_*^2 = \langle u_*^2 \rangle$  en  $z_0 = \langle z_{0_{eff}} \rangle$ . Als we  $G$  een waarde opleggen, en als de verschillende ruwheidslengten ( $z_{0_i}$ ) bekend zijn, kan, door middeling van de stress ( $u_{*i}^2$ ) met behulp van vergelijking (2) en (3), de effectieve ruwheidslengte  $z_{0_{eff}}$  berekend

worden.

Op diverse manieren zijn de effectieve ruwheidslengten van een aantal "standaard" landschappen bepaald. Davenport onderscheidde 8 verschillende klassen landschappen, en daar zijn later de bijbehorende ruwheidslengten voor bepaald. In tabel 4.5 staan de door Wieringa (1983) bepaalde ruwheidslengten voor de verschillende terreintypen.

Tabel 4.5 Visuele beschrijving van Davenport-ruwheidsklassen (uit: Wieringa, 1983).

---

1-zee: $z_0=0,0002m$	Open zee of plas, met een vrije strijk lengte van tenminste 5 km, (ongeacht de hoogte der eventuele golven).
2-glad: $z_0=0,005m$	Landoppervlak zonder merkbare obstakels of begroeiing. Bijvoorbeeld wad, strand, ijsvlakte, sneeuwlandschap zonder bomen.
3-open: $z_0=0,03m$	Vlak land met alleen oppervlakkige begroeiing (gras) en soms geringe obstakels. Bijvoorbeeld startbanen, weideland zonder windsingels, braakliggend bouwland.
4-ruwweg open: $z_0=0,1m$	Bouwland met regelmatig laag gewas, of weideland met sloten die minder dan 20 slootbreedten van elkaar liggen. Verspreide obstakels (lage heggen, enkelvoudige rijen kale bomen, alleenliggende boerderijen) kunnen voorkomen op onderlinge afstanden van minstens 20x hun eigen hoogte.
5-ruw: $z_0=0,25m$	Bouwland met afwisselen hoge en lage gewassen. Grote obstakels (rijen bebladerde bomen, lage boomgaarden enzovoort) met onderlinge afstanden van omstreeks 15x hun hoogte. Wijngaarden, maisvelden en dergelijke.
6-zeer ruw: $z_0=0,5m$	Obstakelgroepen (grote boerenhofsteden, stukken bos en dergelijke) gescheiden door open ruimten van omstreeks 10x de typische obstakelhoogte. Voorts verspreid struikgewas, jong dicht opeen gepland bos en boomgaardgebieden.
7-gesloten: $z_0=1,0m$	Bodem regelmatig en volledig bedekt met vrij grote obstakels, met tussengelegen ruimten niet groter dan een paar obstakelhoogten. Bijvoorbeeld grote bossen, laagbouw in dorpen en kleine steden.
8-stadskern: $z_0 \leq 2m$	Centrum van grote stad met afwisselend laag- en hoogbouw. Ook: bossen met grote oude bomen en veel onregelmatige open plekken.

---

In tabel 4.4 staan de landbedekkingsklassen van Wilson/Hendersson-Sellers, met de daaraan toegekende effectieve ruwheden. Aan ieder vierkant van

1° bij 1° is hiermee een primaire en secundaire effectieve ruwheidslengte ( $z_{0\text{prim.}}$  en  $z_{0\text{sec.}}$ ) toegekend.

De  $u_{*\text{prim.}}$  en  $u_{*\text{sec.}}$  zijn berekend met behulp van de Rossby gelijkvormigheidsvergelijking (4.3), met  $z_{0\text{prim.}}$  en  $z_{0\text{sec.}}$  en met de geostrofische wind  $G$  van 3, 5 en 10 m/s. Voor deze drie winden is de gemiddelde stress berekend volgens

$$\langle u_*^2 \rangle = f_{\text{prim.}} u_{*\text{prim.}}^2 + f_{\text{sec.}} u_{*\text{sec.}}^2 \quad \text{met } f_{\text{prim.}} = 0.67 \text{ en } f_{\text{sec.}} = 0.33$$

$\langle u_*^2 \rangle$  is daarna geïnterpoleerd naar het modelrooster (zie bijlage C). Vergelijking (4.3) wordt daarna weer gebruikt voor de berekening van  $\langle z_{0\text{eff.}} \rangle$ , met  $G = 3, 5$  en  $10$  m/s, en de daarbij horende  $\langle u_*^2 \rangle$  (zie bijlage C).

Zoals te verwachten was, varieert de ruwheidslengte weinig als voor  $G$  achtereenvolgens 3, 5 en 10 m/s genomen wordt. In bijlage E staan de effectieve ruwheidslengten berekend met  $G = 5$  m/s. Deze week in alle gevallen 1 cm of minder af van de  $\langle z_{0\text{eff.}} \rangle$  berekend met  $G = 3$  of  $G = 10$  m/s.

Uit een vergelijking van de  $z_0$  berekend door Van Dop (1983) blijkt dat de waarden nogal laag uitvallen. Dit is te verklaren met het feit dat de schaal (1° bij 1°) veel grover was dan die bij Van Dop. Zeer ruwe gebieden, zoals steden, worden door het grove grid niet opgemerkt. In het gebied waarvoor de gemiddelde effectieve ruwheid berekend is, kwam klasse 80 ("urban") niet één keer voor. Omdat het om zeer ruwe gebieden gaat, kunnen ze de gemiddelde effectieve ruwheid wel beïnvloeden.

#### 4.4.4 Toekenning van een depositiesnelheid van $\text{SO}_2$ voor de verschillende terreinklassen

De droge depositie kan, naar analogie van de wet van Ohm, beschreven worden als een aantal in serie staande weerstanden (zie ook paragraaf ...). De aerodynamische weerstand geeft het turbulente transport van materiaal naar het oppervlak weer en is daarom afhankelijk van de stabiliteit van de atmosfeer en de windsnelheid. In neutrale omstandigheden (dus zonder stabiliteitscorrectie) kan geschreven worden (Wesely and Hicks, 1977)

$$r_{a,z} = \frac{1}{ku_*} \ln(z/z_0) .$$

in bijlage E staat de aerodynamische weerstand voor  $z = 25$  m weergegeven, waarbij  $u_*$  berekend is volgens vergelijking (4.3) met  $G = 10$  m/s en waarin de

$z_0$  uit bijlage D is gebruikt.

De laminaire grenslaagweerstand  $r_s$  geeft het transport weer van de stof door een dunne laag naar het oppervlak (plant, bodem) en kan worden benaderd met (Wesely and Hicks, 1977)

$$r_s = 2.6 (ku_*)^{-1} .$$

In bijlage F staat een voorbeeld van de laminaire weerstand  $r_s$  voor het modelgrid. De wrijvingsnelheid  $u_*$  is berekend met de Rossby gelijkvormigheidsvergelijking (4.3), met  $G = 10$  m/s en  $z_0$  uit bijlage D.

De oppervlakteweerstand ( $r_c$ ) voor  $SO_2$  van verschillende landschappen staan in tabel 4.6 weergegeven. Met behulp van deze tabel is een grove schatting gemaakt van de oppervlakteweerstand van de Wilson landbedekkingsklassen (zie tabel 4.4).

In bijlage G staat  $r_c$  weergegeven na interpolatie naar het modelgebied. De wegingsfactoren voor de primaire en secundaire klasse waren:  $f_{\text{prim.}} = 0.67$  en  $f_{\text{sec.}} = 0.33$ .

De depositiesnelheid op 25 m ( $V_{d25}$ ) wordt nu berekend met

$$V_{d25} = (r_{a,25} + r_s + r_c)^{-1} .$$

In bijlage H staat deze depositiesnelheid voor  $SO_2$  weergegeven. In dit voorbeeld wordt de depositiesnelheid boven land vooral bepaald door de oppervlakteweerstand  $r_c$ . Omdat in de literatuur zeer uiteenlopende waarden voor  $r_c$  gevonden worden, is de daarmee berekende depositiesnelheid onzeker.



Tabel 4.6 Oppervlakteweerstand ( $r_c$ ) van  $SO_2$  in s/cm (schatting na een literatuurstudie; uit Voldner et al., 1986).

Surface type	Winter		Spring		Summer		Fall	
	Day	Night	Day	Night	Day	Night	Day	Night
Coniferous forest	10	10	2	7	2	7	2	7
Deciduous forest	20	20	3	7	2	7	5	10
Cultivated land	7	7	0	0	4	4	2	2
Grassland	7	7	1	1	1	2	2	2
Urban	10	10	10	10	10	10	10	10
Swamp	7	7	0.5	0.5	0.5	1	1	1
Open water	0	0	0	0	0	0	0	0
Snow/ice	7	7	-	-	-	-	-	-

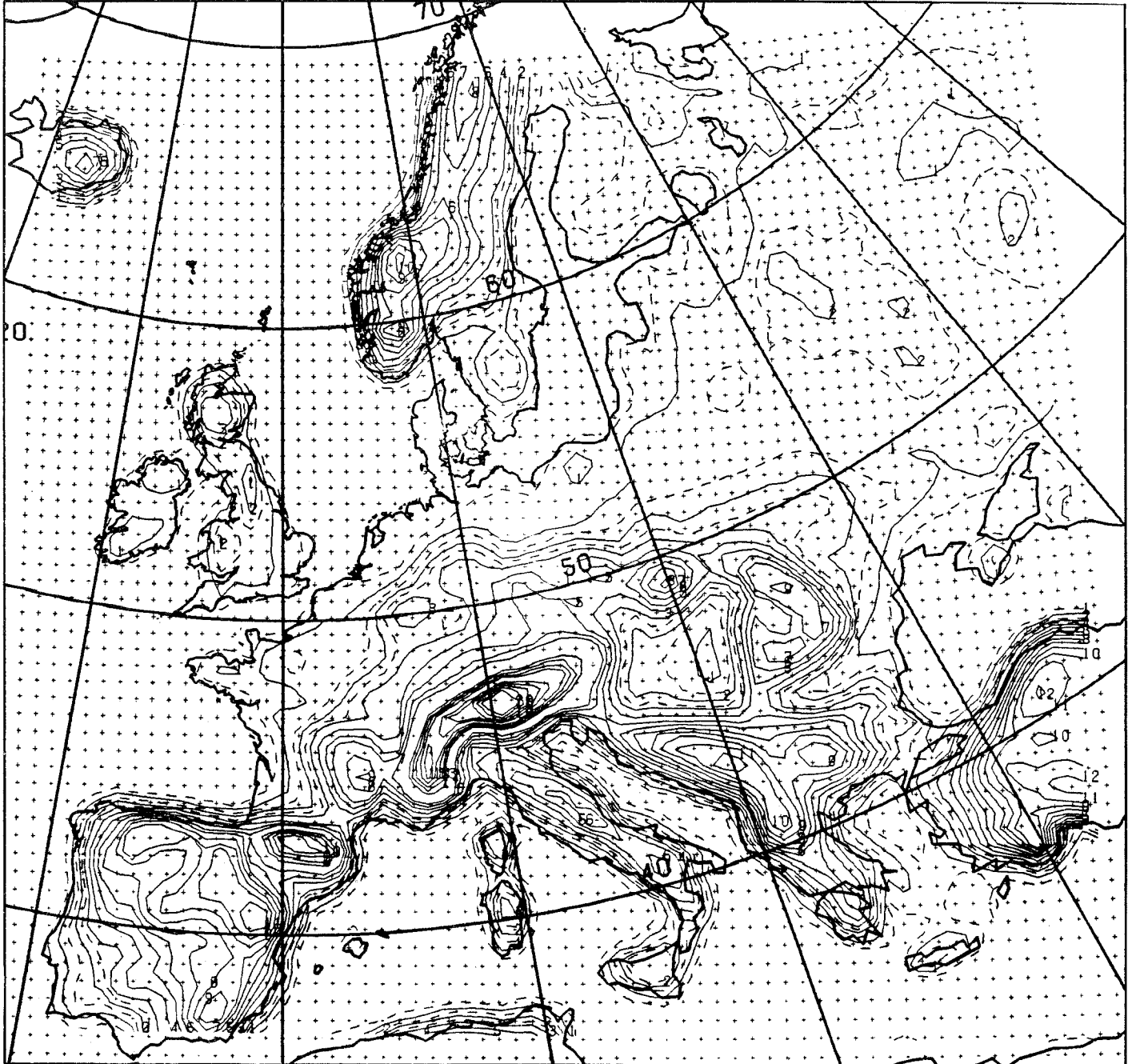


Bijlage A Primaire (boven) en secundaire (onder) landbedekking klassen in Europa (uit: Wilson/Hendersson-Sellers, 1985).

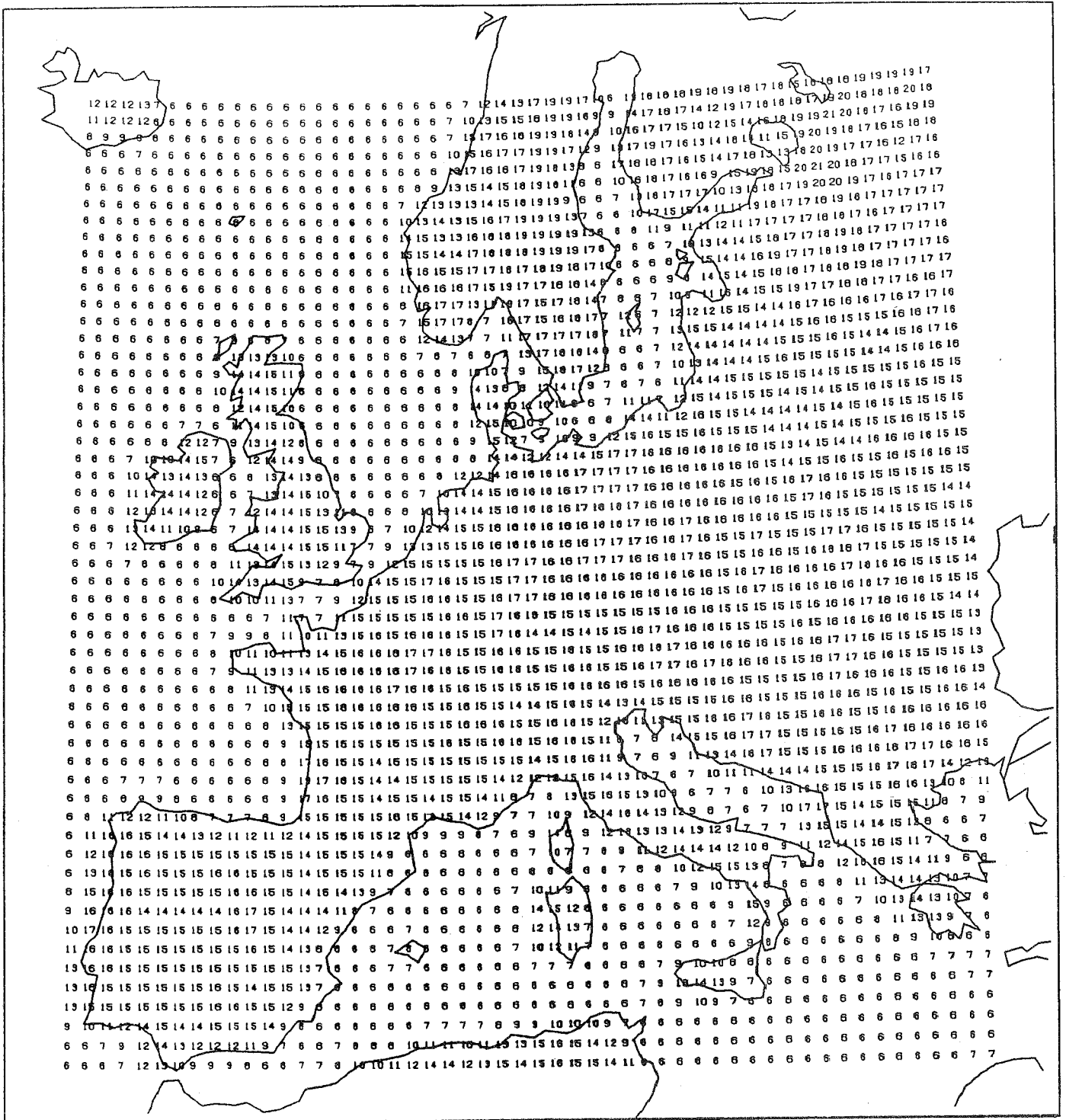
Table with 48 columns and approximately 50 rows of numerical data. Each row starts with a letter (J or 61) and contains a sequence of numbers, including various zeros and digits 1-9, representing land coverage classes in Europe.

Table with 48 columns and approximately 50 rows of numerical data, similar to the first table. Each row starts with a letter (J or 61) and contains a sequence of numbers, representing land coverage classes in Europe.

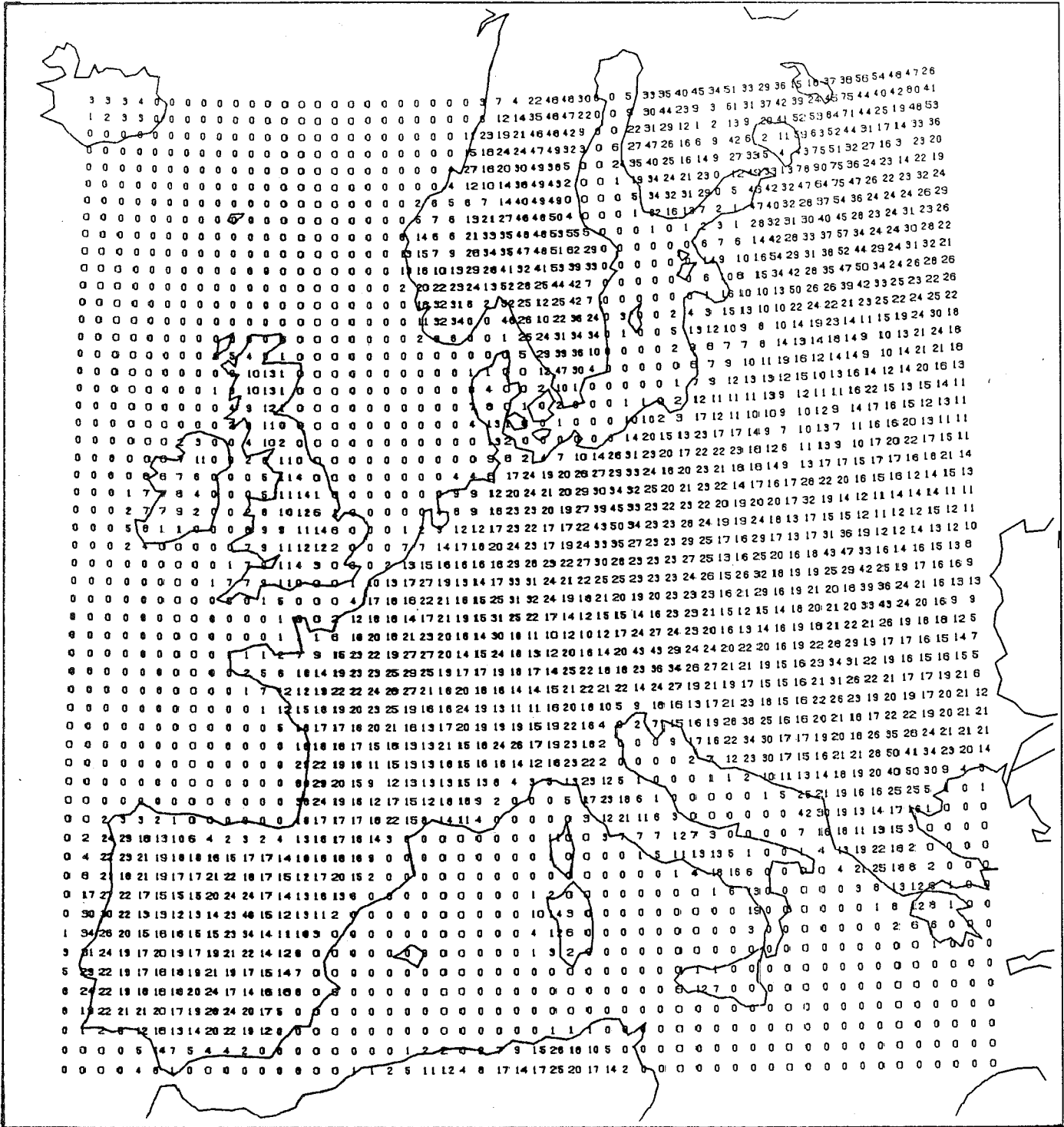
Bijlage B Hoogtekaart van het modelgebied (gegevens van het ECMWF)  
( $10^2$  meter).



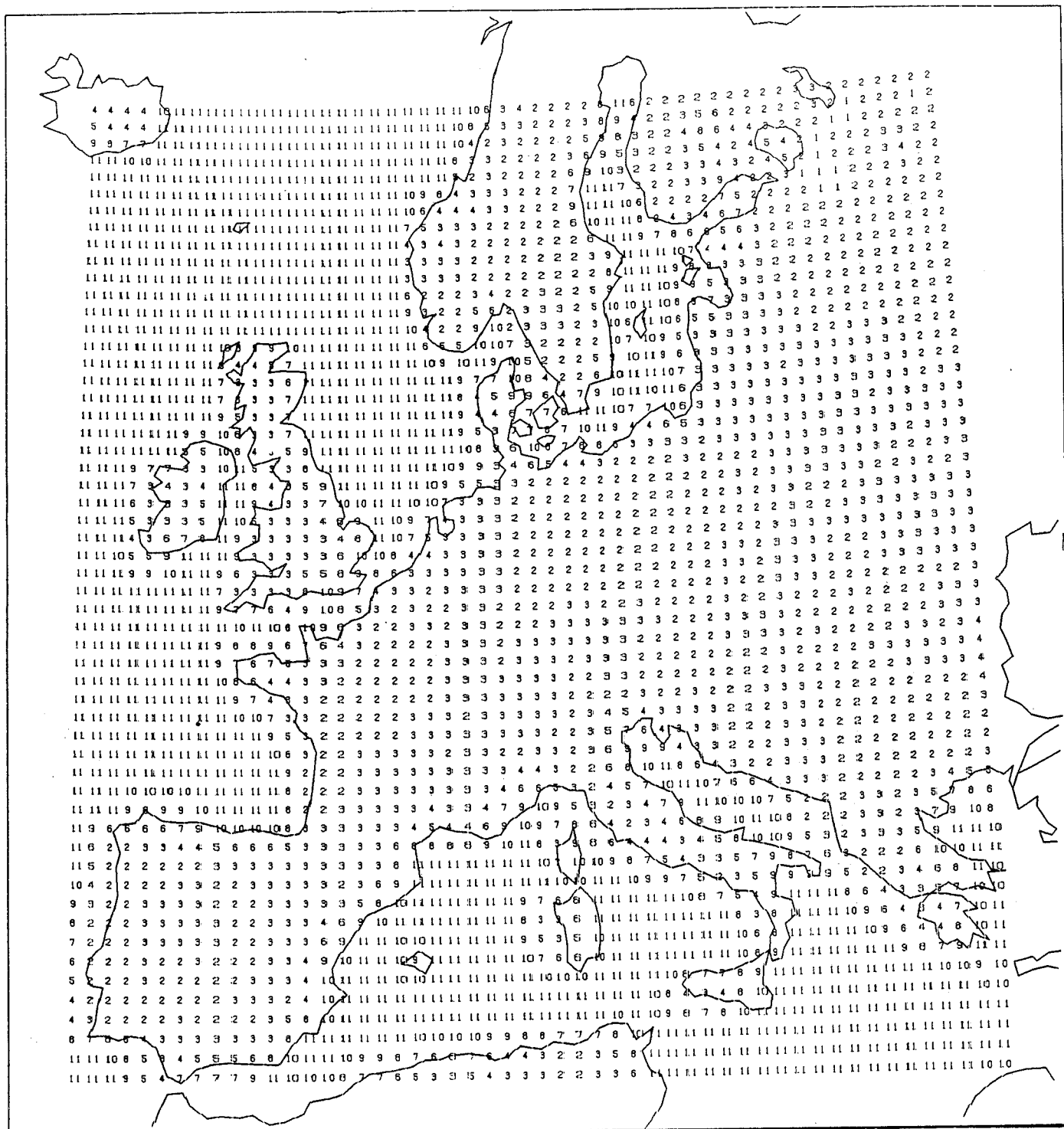
Bijlage C  $\langle u_x^2 \rangle$  in  $10^{-2}$  m/s,  $G = 10$  m/s.



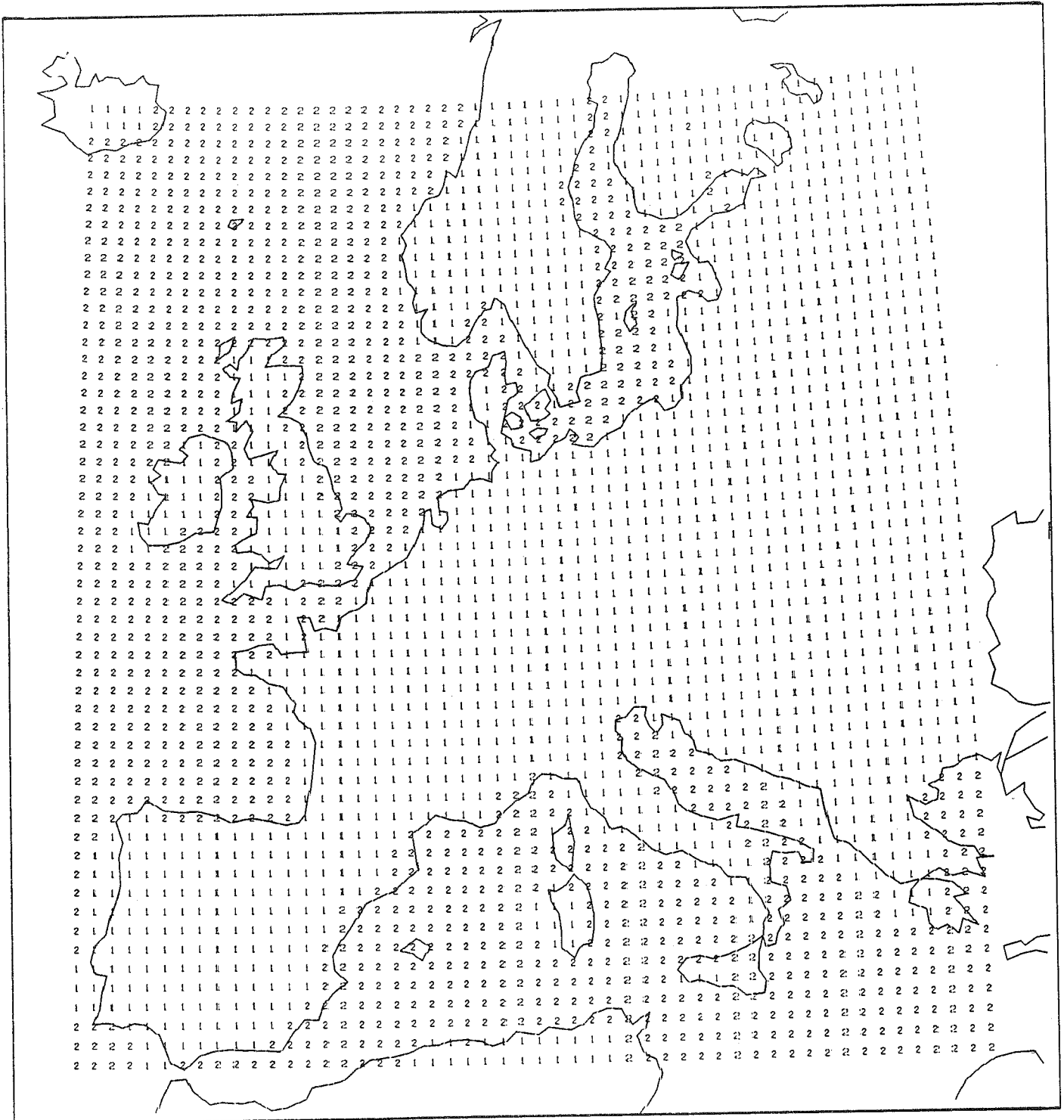
Bijlage D Gemiddelde effectieve ruwheid <math>\langle z\_{o\text{eff}} \rangle</math> in cm.



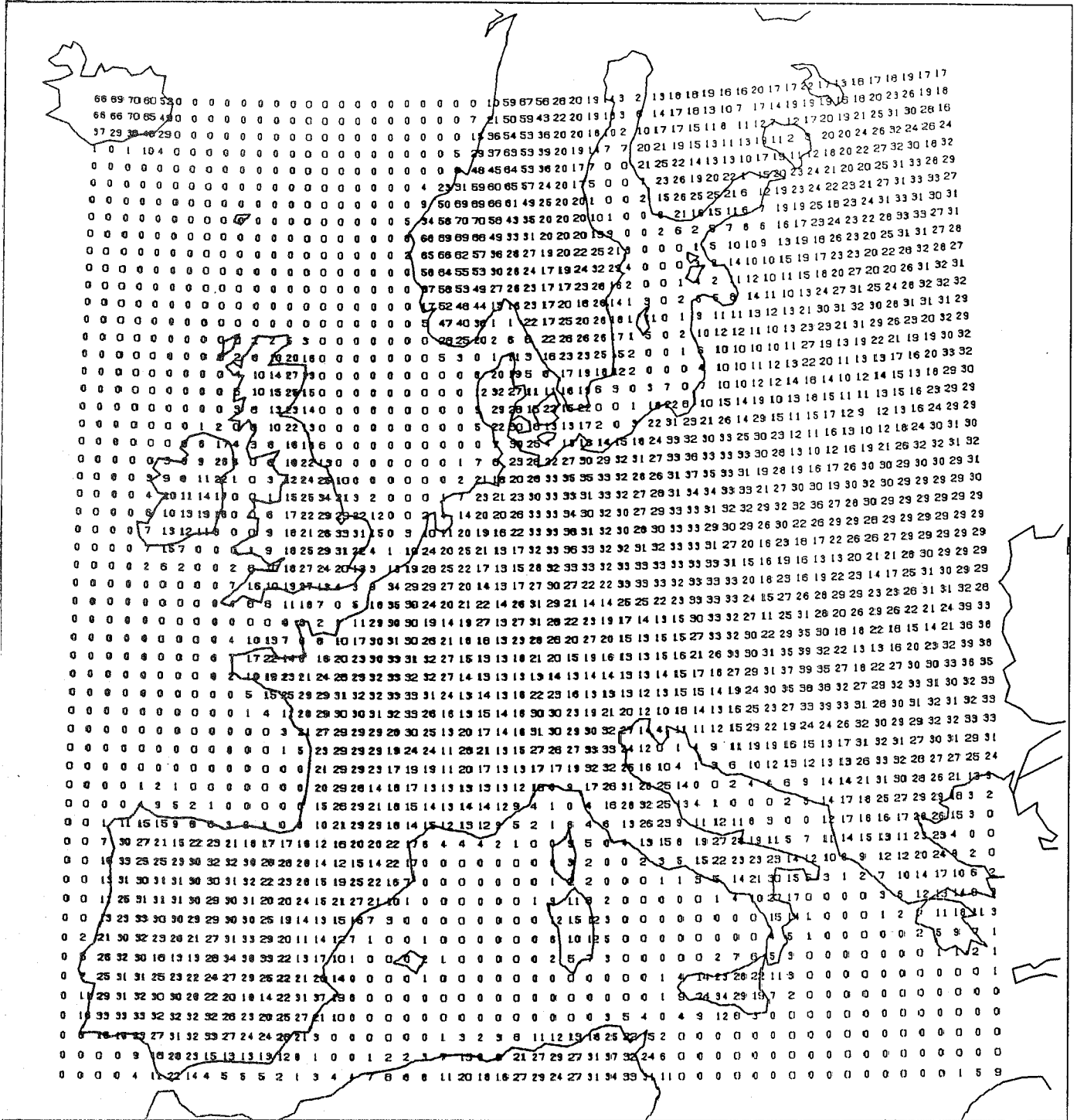
Bijlage E Gemiddelde aerodynamische weerstand op z = 25 m,  $r_{a,25}$  in 10 s/m berekend met G = 10 m/s.



Bijlage F Gemiddelde laminaire grenslaagweerstand ( $r_s$ ) in 10 s/m berekend met  $G = 10$  m/s.

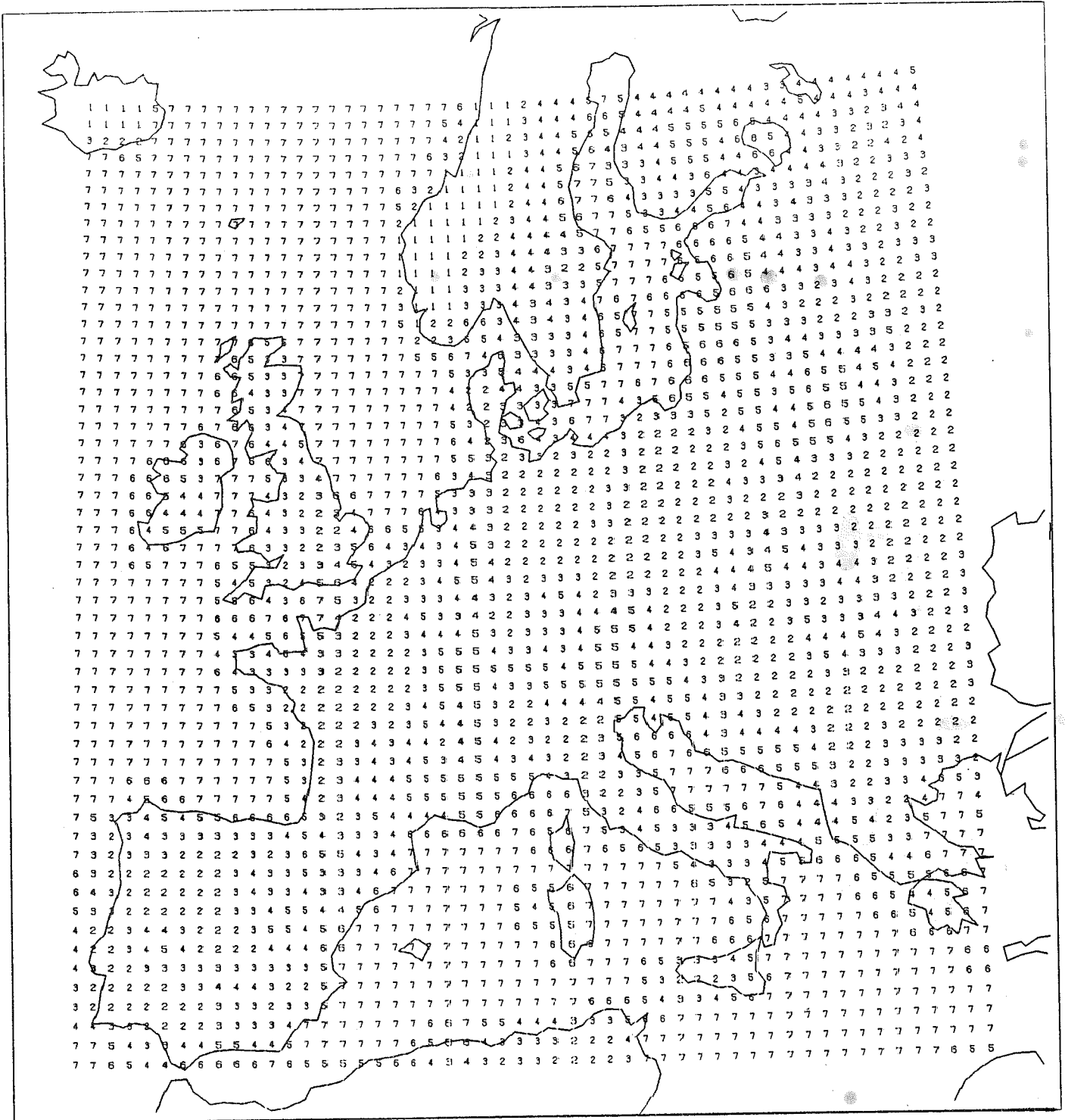


Bijlage G Gemiddelde oppervlakteweerstand voor SO<sub>2</sub> (r<sub>c</sub>) in 10 s/m.





Bijlage H Gemiddelde depositiesnelheid  $V_{d25} = (r_a + r_s + r_c)^{-1}$  voor  $SO_2$  in  $10^{-1}$  cm/s voor  $z = 25$  m en  $G = 10$  m/s.



## 5. MODELLEN VOOR DEPOSITIE EN CHEMISCHE TRANSFORMATIE

### 5.1 CHEMISCHE ASPECTEN

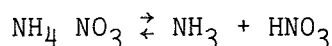
Een foto-oxidant/verzuringmodel moet tenminste schattingen geven van luchtconcentratie van de volgende componenten:

gasfase: NO, NO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub>, SO<sub>2</sub>, NH<sub>3</sub>, HNO<sub>3</sub>, PAN

aerosolfase: NO<sub>3</sub>, SO<sub>4</sub>, NH<sub>4</sub>.

Voor het modelleren van SO<sub>2</sub>-oxidatie in wolken zijn o.a. van belang de luchtconcentratie van H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> en de zuurgraad van het wolkenwater. Ten einde de pH van wolkenwater te bepalen, moet informatie beschikbaar zijn over de afzonderlijke aerosolcomponenten: H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, NH<sub>4</sub>HSO<sub>4</sub>, (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> en NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>.

Gezien het evenwicht:



en gezien het grote verschil in droge depositie snelheden tussen HNO<sub>3</sub> en NO<sub>3</sub>-aerosol is het eveneens van belang onderscheid te maken in gas- en deeltjesvorming NO<sub>3</sub>. In een foto-oxidant/verzuringmodel bedraagt het aantal te advecteren componenten dus minimaal 12. Afhankelijk van het chemische mechanisme zal het aantal componenten (sterk?) uitgebreid moeten worden.

Fotochemische reactiemechanismen voor atmosferische transportmodellen kunnen in drie typen onderverdeeld worden.

- Surrogaatmechanisme. In deze benadering wordt de totale concentratie aan reactieve koolwaterstoffen gerepresenteerd door een mengsel van een of meer koolwaterstoffen waarvoor een expliciet mechanisme gegeven is. Zo wordt b.v. in het Dodge-mechanisme (Dodge, 1977) uitgegaan van een mengsel van 25% propaan en 75% n-butaan. Problemen bij deze benadering geeft de geldigheid van het surrogaatmengsel en behandeling van emissies.
- Lumped molecule mechanisme. In deze benadering worden specifieke koolwaterstoffen gemiddeld tot algemene verbindingen zoals b.v. olefinen, alkanen, aldehyden en aromaten. Reactieconstanten voor iedere algemene klasse zouden, gewogen naar concentratie, gemiddeld moeten worden over de samenstellende verbindingen. In de praktijk zal dit niet of nauwelijks te realiseren zijn. Immers, de relatieve samenstelling van een klasse, en dus de reactiviteit, zal in de loop der tijd veranderen. In een regionaal model waarin het chemische mechanisme zowel voor een geïndustrialiseerd

gebied als voor achtergrondgebieden toegepast moet worden, kan dit problemen opleveren. Door uitbreiding van het aantal "lumped molecules", b.v. olefinen splitsen in etheen, 1-alkenen en niet eindstandige alkenen, kunnen deze problemen grotendeels omzeild worden.

- Lumped structure mechanisme. In deze benadering wordt onderscheid gemaakt naar de functionele groepen binnen een koolwaterstof. Zo kan bijvoorbeeld aceton,  $\text{CH}_3\text{-CO-CH}_3$ , opgevat worden als 2 parafinische C-atomen en een carbonyl-C-atoom. Omdat overeenkomstige structuren min of meer dezelfde reactieconstante zullen hebben, is het middelingsprobleem geringer dan in de lumped-molecule benadering. Bekende voorbeelden van dit type mechanisme zijn door de SAI ontwikkelde Carbon Bond Mechanisms (CBM, CBM2, CBM3, CBMX) (Killus en Whitten, 1983). Een gecomprimeerde versie van het CBMX-mechanisme is toegepast in het SAI-PHOXA model.

Voor zover numerieke fotochemische modellen in de open literatuur beschreven zijn, wordt hierbij in het algemeen uitgegaan van CBM-achtige mechanismen. Om praktische redenen is toepassing van CBMX-mechanisme niet mogelijk (146 reacties, 62 componenten). CBM3 of een gecomprimeerde versie van CBMX bieden betere mogelijkheden.

Wat betreft de grootte ontlopen de verschillende mechanismen elkaar niet al te veel, 100-150 reacties, 40-50 componenten. Een aantal componenten (25-50% van het totaal) heeft een dermate korte verblijftijd dat de concentraties niet door advectie bepaald worden, maar slechts afhankelijk zijn van de precursor-concentraties. Deze methode wordt toegepast in de Quasi Steady State Approximation (QSSA, Hov, 1983). Een andere beschrijving van het chemische proces is het opzoeken van chemische veranderingen in standaardtabellen (Amble). In trajectoriënmodellen wordt tijdsintegratie veelal uitgevoerd met behulp van de Gear-methode. Hoewel deze methode zeer nauwkeurig is, is toepassing in numerieke modellen niet zonder meer mogelijk gezien het hoge CPU-verbruik.

In het MPA-model (De Leeuw et al., 1986) is ervaring opgedaan met het CBM3-mechanisme. Voor de Nederlandse situatie is de overeenstemming tussen gemeten en berekende niveaus goed te noemen. Vraag is echter of dit mechanisme ook toegepast mag worden voor een relatief schone omgeving. Immers CBM3 is in eerste instantie opgesteld voor toepassing in een stedelijke/industriële omgeving en is gevalideerd tegen smog-kamer resultaten. Verschillende terminatiereacties, die nauwelijks van belang zijn bij hoge  $\text{NO}_x$ -concentraties in een stedelijke omgeving maar die belangrijker worden bij de lage tot zeer lage  $\text{NO}_x$ -concentraties in een landelijke omgeving, zijn niet in het mechanisme

opgenomen. Daarnaast zullen in een landelijke omgeving de natuurlijke koolwaterstoffen een belangrijke rol spelen in de vorming van oxidant. De chemie van dit type koolwaterstoffen is niet expliciet opgenomen in het CBM3-mechanisme. Verder onderzoek is nodig om tot een keuze van het chemisch mechanisme te komen.

## 5.2 WOLKENCHEMIE

In de wolken spelen zich andere fysische en chemische processen af dan in de rest van de atmosfeer. Stoffen kunnen in wolken door chemische reacties uitgeput raken terwijl zij in de rest van de atmosfeer nog volop aanwezig zijn. Hierdoor kunnen omzettingssnelheden in wolken in het algemeen moeilijk beschreven worden in termen van produkten van concentraties die voor het gehele luchtpakket gelden. Om tot een bevredigende oplossing te komen, is aan het MPA-model (De Leeuw et al, 1986) een aparte module toegevoegd die uitsluitend processen in de wolk beschrijft (Asman, 1984). De invoer van deze module bestaat uit het wolkentype, hoogte van de wolk, gas- en aerosolconcentraties; als uitvoer worden effectieve tweede-orde-reactieconstanten geleverd ter bepaling van de omzettingssnelheden in het gehele luchtpakket ten gevolge van reacties in de wolk. Een analoge procedure kan ook in het huidige model gevolgd worden.

Lucht met een gegeven concentratie aan aerosolen en gassen wordt van onderaf de wolk ingezogen. Aangenomen is dat al het aerosol dienst doet als condensatiekern en momentaan oplost in wolkendruppels van één bepaalde grootte, zodanig dat de concentratie in elke druppel even groot is. De aerosolcomponenten  $H_2SO_4$ ,  $NH_4NO_3$ ,  $(NH_4)_2SO_4$ ,  $(NH_4)HSO_4$  bepalen dus de beginconcentraties aan  $NH_4$ ,  $NO_3$ ,  $SO_4$  en  $H^+$ . Vervolgens laat men gassen in de druppels oplossen en vinden er chemische reacties in de druppels plaats. Hierbij gaat het om de volgende gassen:  $CO_2$ ,  $SO_2$ ,  $HNO_3$ ,  $NH_3$ ,  $O_3$ ,  $H_2O_2$ . Gezien de geringe oplosbaarheid van  $NO$  en  $NO_2$  in water worden deze componenten niet verder betrokken in het wolkenmodel. De druppels volgen hun weg door de wolk waarbij de verblijftijd in de wolk afhankelijk is van de dikte van de wolk en de stijgsnelheid. Bij de top van de wolk verdampen de druppels ineens, daarbij weer gassen en aerosolen achterlatend.

Tabel 5.1 Standaardparameters per wolkentype.

type	watergehalte (g/m <sup>3</sup> )	stijg- snelheid (m/s)	druppel- straal (µm)	druppel- dichtheid aantal (cm <sup>-3</sup> )
mist	0.10	0.02	3	88
stratus	0.20	0.1	10	47
stratocumulus	0.25	0.1	10	60
cumulus	0.35	0.5	15	25
cumulonimbus	1.0	> 1	30	9

De diffusie van/naar de druppel toe en de veranderingen ten gevolge van chemische reacties kan beschreven worden als

$$\frac{dC_1}{dt} = \frac{3 K}{r} (C - HC_1) + P - L, \quad (5.1)$$

waarin  $r$  = druppelstraal (m)

$H$  = Constante van Henry (zie tabel)

$P, L$  = chemische produktie, resp. verlies (mol/m<sup>3</sup>/s)

$K$  = massa-overdrachtscoëfficiënt (m/s).

Indien reacties in de gasfase binnen het wolkencompartiment verwaarloosd worden, dan geldt voor de ontwikkeling van gasfaseconcentraties

$$\frac{dC}{dt} = -4\pi r^3 N \frac{3 K}{r} (C - HC_1), \quad (5.2)$$

waarin  $N$  de druppeldichtheid is.

Bij een druppel zal in een steady state situatie de flux vanuit de gasfase naar het druppeloppervlak toe even groot zijn als de flux van het druppeloppervlak de waterfase in (Peters, 1983)

$$F = k_g (C - C_{opp}) = k_1 (C_1 - C_{1,opp}). \quad (5.3)$$

Tabel 5.2 Constanten van Henry, gasfase diffusiecoëfficiënten ( $m^2/s$ ) (kamer-temperatuur).

component	$H = C/C_1$	$D_g$
SO <sub>2</sub>	$3.32 \cdot 10^{-2}$	$1.36 \cdot 10^{-5}$
O <sub>3</sub>	3.36	$1.64 \cdot 10^{-5}$
CO <sub>2</sub>	1.2	$1.66 \cdot 10^{-5}$
NO <sub>2</sub>	1.0	
NO	22.1	
H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	$6.3 \cdot 10^{-7}$	$1.84 \cdot 10^{-5}$
NH <sub>3</sub>	$5.42 \cdot 10^{-3}$	$2.34 \cdot 10^{-5}$
HNO <sub>3</sub>	$4.6 \cdot 10^{-7}$	$1.36 \cdot 10^{-5}$

waarin  $F$  = flux

$C_{opp}$  en  $C_{1,opp}$  zijn de gasfase- en waterfaseconcentraties aan het oppervlak

$k_g$  en  $k_1$  zijn massa-overdrachtcoëfficiënten in resp. de gasfase en de waterfase.

Vergelijking (5.3) kan herschreven worden als

$$F = k_g (C - C^*) = k_1 (C_1 - C_1^*),$$

waarin  $C^*$  ( $C_1^*$ ) een denkbeeldige gasfase (waterfase) concentratie is die in evenwicht zou zijn met de bulkconcentratie in de waterfase (gasfase):

$$C^* = H \cdot C_1$$

$$C_1^* = C/H.$$

De waarde van  $K_g$  kan eenvoudig bepaald worden uit  $k_g$  en  $k_1$

$$K_g = \left( \frac{1}{k_g} + \frac{H}{k_1} \right)^{-1}. \quad (5.4)$$

Voor waterdruppels die bijna niet bewegen ten opzichte van de omringende lucht geldt bij benadering dat  $k_g \approx D_g/r$  waarin  $D_g$  de gasfase diffusiecoëfficiënt is. Regendruppels bewegen echter ten opzichte van de omringende lucht waardoor

de flux relatief groter wordt (Peters, 1983):

$$k_g = \frac{D}{r} (1 + 0.276 \text{Re}^{1/2} \text{Sc}^{1/3}), \quad (5.5)$$

waarin  $\text{Re} = \text{Reynoldsgetal} = r V_t / \nu$  met  $\nu = \text{kinematische viscositeit van lucht}$  en  $V_t = \text{eindsnelheid van de vallende druppel}$ .

In goede benadering geldt echter (Heikes, 1983)

$$k_g = \frac{D}{r} (1 + 3680 r + 3.012 \cdot 10^7 r^2). \quad (5.6)$$

Voor wolkendruppels waarin geen interne circulatie plaatsvindt, geldt

$$k_1 = 3.29 D_1 / r, \quad (5.7)$$

waarin  $D_1 = \text{waterfase diffusiecoëfficiënt}$ .

De componentafhankelijke constanten van Henry en de gasfase diffusiecoëfficiënten zijn gegeven in tabel 5.2. De waterfase diffusiecoëfficiënten is voor alle componenten gelijk gehouden:  $D_1 = 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ . De fysische parameters, afhankelijk van het wolcentype zijn gegeven in tabel 5.1.

De chemische reacties waarmee in het wolkenmodel rekening gehouden wordt, zijn gegeven in tabel 5.3. Naast hydrolyse en neutralisatiereacties ter bepaling van de pH van het wolkenwater wordt alleen de oxydatie van  $\text{SO}_2$  door  $\text{O}_3$  en  $\text{H}_2\text{O}_2$  beschreven. De  $\text{O}_2$ -oxydatie van  $\text{SO}_2$ , gekatalyseerd door Fe en Mg, is volgens Möller (1980) van ondergeschikt belang: de oxydatiesnelheid via dit proces is ca. 1% van de  $\text{H}_2\text{O}_2$ -oxydatiesnelheid.  $\text{O}_2$ -oxydatie is dan ook in eerste instantie verwaarloosd. Mogelijk speelt de katalytische oxydatie door Fe en Mn 's winters wel een relatief belangrijke rol. De geringe fotochemische activiteit 's winters resulteert in lage  $\text{O}_3$  en  $\text{H}_2\text{O}_2$ -concentraties. Hierdoor zal ook de bijdrage aan sulfaatvorming van  $\text{H}_2\text{O}_2$  en  $\text{O}_3$  gering zijn. Nader onderzoek zal uit moeten wijzen of uitbreiding van het wolkenchemische schema met  $\text{O}_2$ -oxydatie noodzakelijk is.

In de in het MPA-model toegepaste wolkenmodule zijn opname en eventuele vervolgreacties van organische verbindingen en radicalen niet opgenomen. Ook hier geldt dat nader onderzoek nodig is om het belang van dit type reacties te schatten.

Zowel voor de parameters gegeven in tabel 5.2 als in tabel 5.3 geldt dat de waarde meestal bij kamertemperatuur bepaald is. Een eventuele temperatuurcorrectie is in principe mogelijk maar vooralsnog niet ingebouwd in het model.

Tabel 5.3 Reacties in wolkenwater.

reactie	k*
$\text{CO}_2 + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{HCO}_3^- + \text{H}^+$	$4.3 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$
$\text{H}^+ + \text{HCO}_3^- \rightarrow \text{CO}_2 + \text{H}_2\text{O}$	56
$\text{SO}_2 + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{H}^+ + \text{HSO}_3^-$	$3.4 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$
$\text{H}^+ + \text{HSO}_3^- \rightarrow \text{SO}_2 + \text{H}_2\text{O}$	$2 \cdot 10^5$
$\text{NH}_3 + \text{H}^+ \rightarrow \text{NH}_4^+$	$4 \cdot 10^7$
$\text{NH}_4^+ \rightarrow \text{NH}_3 + \text{H}^+$	24
$\text{HSO}_3^- + \text{O}_3 \rightarrow \text{SO}_4 + \text{O}_2 + \text{H}^+$	$4.19 \cdot 10^{-2} + \frac{100}{[\text{H}^+]}$
$\text{HSO}_3^- + \text{H}_2\text{O}_2 \rightarrow \text{SO}_4 + \text{H}^+ + \text{H}_2\text{O}$	$80 [\text{H}^+]$

\* in ( $\text{m}^3 \text{ mol}^{-1} \text{ s}^{-1}$ ) tenzij anders vermeld, kamertemperatuur.

De hydrolyse van salpeterzuur is niet expliciet opgenomen in het reactiemechanisme. Aangenomen is dat dit sterke zuur in oplossing direct gesplitst wordt in  $\text{H}^+$  en  $\text{NO}_3^-$ . De waterfase-concentratie van  $\text{HNO}_3$  is derhalve op nul gesteld. De oplosnelheid van salpeterzuur is volledig diffusie bepaald.

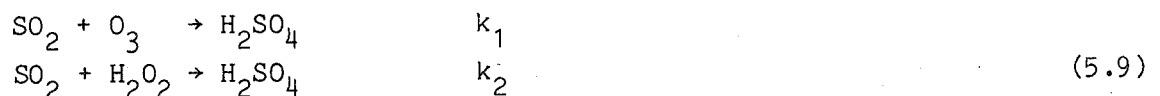
De differentiaalvergelijkingen 1 en 2 worden gebruikmaken van de Gearmethode (Gear, 1971) geïntegreerd over een periode T

$$T = H_w/w, \quad (5.8)$$

waarin  $H_w$  de dikte van de wolk is en  $w$  de verticale stijgsnelheid in de wolk. Als randvoorwaarde is aangenomen dat de  $\text{CO}_2$ -luchtconcentratie constant is.

Als uitvoergegevens levert het wolkenmodel de concentraties in wolkenwater gemiddeld over de gehele wolk en de luchtconcentratie boven de wolk na het verdampen van de druppels.

De hoeveelheid stof die gevormd resp. omgezet is in de wolk volgt uit de begin- en eindconcentratie van deze stof. Stellen we dat het netto effect van wolkenchemie beschreven wordt door de reacties





dan kunnen de bij deze reacties behorende effectieve tweede-orde-reactieconstanten bepaald worden volgens

$$K_1 = - \frac{C_o(O_3) - C_i(O_3)}{C_i(O_3)C_i(SO_2)} + \frac{w}{H_w} ,$$

$$k_2 = - \frac{C_o(H_2O_2) - C_i(H_2O_2)}{C_i(H_2O_2)C_i(SO_2)} \cdot \frac{w}{H_w} , \quad (5.10)$$

waarin  $C_i$  de concentratie van een stof voorstelt die de wolk ingaat en  $C_o$  de concentratie na verlaten van de wolk en na verdampen van de druppels voorstelt.

De aldus bepaalde reactieconstanten beschrijven de productie c.q. het verlies van  $H_2SO_4$ ,  $SO_2$ ,  $O_3$  en  $H_2O_2$  bij een volledige bedekking. Bij een bedekingsgraad  $b < 1$  worden  $k_1$  en  $k_2$  evenredig met  $b$  verlaagd.

De wolkenmodule dient van tijd tot tijd aangeroepen te worden om aan de hand van de gewijzigde omstandigheden de omzettingssnelheden opnieuw vast te stellen. Aanroep gebeurt indien de concentratie van een van de relevante componenten meer dan 25% gewijzigd is met dien verstande dat het maximale tijdsverschil tussen twee aanroepen 30 min. en het minimale tijdsverschil 15 min. bedraagt.

### 5.3 DROGE DEPOSITIE

De verandering in concentratie ten gevolge van droge depositie op het aardoppervlak wordt gegeven door

$$\frac{dC}{dt} = - \frac{v_g}{H_m} C . \quad (5.11)$$

De totale depositiesnelheid wordt bepaald door in serie staande weerstanden (Wesely en Hicks, 1977)

$$v_g = (r_a + r_d)^{-1} . \quad (5.12)$$

De aerodynamische weerstand over een oppervlaktelaag met een hoogte  $z$  wordt gegeven door

$$r_a = z \int_0^z K(z)^{-1} dz , \quad (5.13)$$

waarin  $K(z)$  de turbulente diffusiecoëfficiënt is. Gegeven het  $K$ -profiel voor de oppervlaktelaag (Businger, 1973) wordt, bij bekende wrijvingsnelheid  $u_*$  en Monin-Obukhovlengte  $L$ , de aerodynamische weerstand verkregen door integratie over de oppervlaktelaag

$$r_a = \frac{0.74}{ku_*} (\ln(z/z_0) + X(z_0) - X(z)) \quad (5.14)$$

$$X(z) = -6.4 z/L \quad L > 0$$

$$X(z) = 2 \ln(y(z) + 1) \quad L < 0$$

$$y(z) = (1 - 9 z/L)^{1/2}$$

$u_*$  en  $L$  worden bepaald uit windsnelheid en globale straling en zijn mede afhankelijk van de ruweheidslengte  $z_0$ .

Voor gasvormige componenten wordt de weerstand  $r_d$  bepaald door

$$r_d = r_s + r_c \quad (5.15)$$

De laminaire grenslaagweerstand  $r_s$  over de dunne grenslaag om de oppervlakte elementen (planten e.d.) wordt benaderd door (Wesely en Hicks, 1977)

$$r_s = 2.6 (k u_*)^{-1} \quad (5.16)$$

De oppervlakteweerstand  $r_c$  wordt onder andere bepaald door plantenfysiologische factoren en is dus afhankelijk van de chemische samenstelling van de component en van de aard van het oppervlak.

De depositiesnelheden van  $O_3$ ,  $NO$  en  $NO_2$  boven een wateroppervlak zijn gering of zelfs verwaarloosbaar klein (Van Aalst en Diederer, 1985), hetgeen overeenkomt met een hoge waarde voor  $r_c$ . Boven land bedraagt de gemeten depositiesnelheid van  $NO_2$  en  $O_3$  ca. 0.3 - 0.4 cm/s; de  $NO$ -depositiesnelheid ligt lager (0.1 cm/s). Een redelijke schatting voor  $r_c$  lijkt dan ook

$$\begin{array}{ll} NO_2 & r_c = 250 \text{ s/m} , \\ O_3 & r_c = 250 \text{ s/m} , \\ NO & r_c = 600 \text{ s/m} . \end{array} \quad (5.17)$$

Hierbij dient opgemerkt te worden dat de metingen aangeven dat onder winterse omstandigheden, en zeker bij een sneeuwdek, de depositiesnelheid lager ( $r_c$  hoger) is. De depositiesnelheid van  $SO_2$  is sterk afhankelijk van de vochtig-

heid van de bodem (Onderdelinden et al., 1984). Daarnaast neemt de depositiesnelheid af boven bevroren grond of een (droog) sneeuwdek. De  $r_c$  voor  $SO_2$  wordt door Onderdelinden et al. (1984) gegeven door

$$r_c = 20 + 50 \exp(-t_r/6) + 100 (1 - \exp(-t_d/6)) \text{ (s/m) ,} \quad (5.18)$$

waarin  $t_r$  het aantal voorafgaande uurvakken met neerslag (inclusief het beschouwde uur) en  $t_d$  het aantal voorafgaande uurvakken zonder neerslag is. Bij aanwezigheid van een sneeuwdek wordt  $r_c = 540$  s/m gehanteerd.

Er zijn duidelijke aanwijzingen dat de depositiesnelheid van  $SO_2$  mede beïnvloed wordt door de aanwezigheid van  $NH_3$ . De metingen zijn momenteel echter nog te kwalitatief om tot parametrisatie van de  $NH_3$ -interactie over te gaan.

Tabel 5.4 Oppervlakteweerstand  $r_c$  (s/m).

component		$r_c$
$SO_2$		variabel (zie tekst)
$NO_2$	land	250
	zee	2000
NO	land	600
	zee	2000
$O_3$	land	250
	zee	2000
$HNO_3$		50*
$H_2O_2$		120
PAN		180
$NH_3$		50

\* Vermoedelijk te hoog. Resultaten van de Dry Deposition Intercomparison Experiments in Champaign, USA, wijzen erop dat de oppervlakteweerstand van  $HNO_3$  verwaarloosbaar klein is (Huebert en Robert, 1985; Dolske en Gatz, 1985).

Metingen van droge depositie snelheden van overige gasvormige componenten zijn zeer schaars. In tabel 5.4 zijn  $r_c$ -waarden gegeven die zo goed mogelijk aansluiten bij de beschikbare metingen. Voor gasvormige componenten die niet in de tabel zijn opgenomen, wordt de depositiesnelheid op nul gesteld.

Voor deeltjesvorming sulfaat vonden Wesely et al. (1985) dat boven gras van 30-50 cm hoog de oppervlakteweerstand afhankelijk is van wrijvingsnelheid en atmosferische stabiliteit

$$r_d^{-1} = v_d = 0.002 u_* \quad L \geq 0 , \quad (5.19)$$

$$= 0.002 u_* \left[ 1 + \left( -\frac{300}{L} \right)^{2/3} \right] \quad L < 0 .$$

Verondersteld wordt dat deze relaties voor alle aerosolcomponenten gelden. Bekend is dat ook aerosolen 's winters een lagere depositiesnelheid hebben. Dit kan bereikt worden door de evenredigheidsconstante in vergelijking (5.19) 25% lager te stellen.

#### 5.4 NATTE DEPOSITIE

Bij het modelleren van natte depositie wordt onderscheid gemaakt in rain-out, het proces dat zich in de wolken afspeelt, en wash-out, het proces dat zich onder de wolken afspeelt. Ervan uitgaande dat wolken zich uitsluitend in de bovenste modellaag bevinden, dient rain-out in de bovenste en wash-out in de overige lagen beschreven te worden.

##### 5.4.1 Rain-out

Uit de wolkenchemische module zijn de concentraties in wolkenwater bekend. Aangenomen wordt dat de concentratie in regenwater en in wolkenwater gelijk zijn. Bij een regenintensiteit  $I$  en een regenwaterconcentratie  $C_g$  wordt de natte depositieflux in een tijdstapje  $dt$  gegeven door

$$F = - C_g \cdot I \cdot dt . \quad (5.20)$$

Anderzijds geldt dat de flux gelijk is aan de over de laagdikte geïntegreerde verandering in gaslast

$$F = - H_t d C_a , \quad (5.21)$$

waarin  $H_t$  de laagdikte en  $C_a$  de luchtconcentratie is. Verwijdering door rain-out in de bovenste laag wordt gevonden door een combinatie van beide vergelijkingen

$$\frac{dC_a}{dt} = - \frac{C_a I}{H_t} . \quad (5.22)$$

Hierbij is aangenomen dat binnen een gridcel de regenintensiteit uniform verdeeld is. De moeilijkheid is echter dat de componenten die in het wolkencompartiment gemodelleerd worden, niet persé gelijk zijn aan de in het luchtcompartiment gemodelleerde componenten. In de wolk worden b.v. de afzonderlijke ionen  $SO_4^{2-}$ ,  $NO_3^-$ ,  $NH_4^+$ , in het luchtcompartiment de samengestelde aerosolen,  $NH_4NO_3$ ,  $NH_4HSO_4$ ,  $(NH_4)_2SO_4$ , gemodelleerd. Regenwaterconcentraties moeten dus "vertaald" worden in luchtconcentraties. In dit vertaalproces zullen extra aannames gedaan moeten worden: uit vier concentraties  $H^+$ ,  $NO_3^-$ ,  $SO_4^{2-}$ ,  $NH_4^+$  kan niet op eenduidige wijze de luchtconcentraties van  $H_2SO_4$ ,  $HNO_3$ ,  $NH_4NO_3$ ,  $NH_4HSO_4$  en  $(NH_4)_2SO_4$  bepaald worden. Door Saxena et al. (1986) is een evenwichtsmodel ontwikkeld voor de schatting van massa en chemische samenstelling van sulfaat, nitraat, ammonium en water bevattende aerosolen. In een vereenvoudigde vorm is dit model wellicht toepasbaar om de ionconcentraties in de waterfase te relateren aan de aerosolconcentraties in de gasfase.

#### 5.4.2 Wash-out

In de lagen onder de wolkenbasis vindt verwijdering van verontreiniging plaats door scavenging van regendruppels. Het wash-out proces wordt beschreven door

$$\frac{dC_a}{dt} = - \Lambda C_a , \quad (5.23)$$

waarin  $\Lambda$  de scavengingcoëfficiënt is (in  $s^{-1}$ ).

De grootte van  $\Lambda$  is afhankelijk van het druppelgroottespectrum. Voor gasvormige componenten is tevens de oplosbaarheid van belang. Voor slecht oplosbare gassen, zoals NO en  $NO_2$ , is wash-out te verwaarlozen.

In de waterfase komt  $SO_2$  voor als opgelost  $SO_2$  ( $SO_2 \cdot H_2O$ ), bisulfiet ( $HSO_3^-$ ) en sulfiet ( $SO_3^{2-}$ ). Gezien de in wolken en regenwater heersende pH's is het sulfiet niet van belang. Rekening houdend met de (matige) oplosbaarheid

van  $\text{SO}_2$  en met het dissociatie-evenwicht tussen  $\text{SO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$  en  $\text{HSO}_3^-$  wordt de concentratieverhouding tussen lucht- en regenconcentraties gegeven door (Barrie, 1981)

$$W = \frac{C_l(\text{SO}_2)}{C_a(\text{SO}_2)} = \frac{530}{C_1(\text{H}^+)} \quad (5.24)$$

Aannemende dat in de bovenste laag de lucht- en regenwaterconcentraties van  $\text{SO}_2$  in evenwicht zijn volgens vergelijking (5.24), zal bij passage van de regendruppels door de daaronder liggende lagen een verdere opname van  $\text{SO}_2$  in de druppels plaatsvinden als de  $\text{SO}_2$ -concentratie in de laag groter is dan de in vergelijking (5.24) gegeven evenwichtsconcentratie. In de omgekeerde situatie kan  $\text{SO}_2$  uit de druppel verdampen. In het huidige model wordt de  $\text{SO}_2$ -opname echter irreversibel geacht, zodat het uitwassen van  $\text{SO}_2$  in een laag  $i$  beschreven wordt door

$$\begin{aligned} \frac{dC_i}{dt} &= 0 & C_i < \max(C_j) & \quad j = i+1, \dots, n \\ &= -\frac{WI}{H_i} \{C_i - \max(C_j)\} & C_i > \max(C_j) & \quad j = i+1, \dots, n \end{aligned} \quad (5.25)$$

waarin  $C_i$  de  $\text{SO}_2$ -concentratie in laag  $i$  is en  $j$  de boven laag  $i$  gelegen lagen aangeeft.

Levine en Schwartz (1982) berekenden voor verschillende regenintensiteiten de scavengingcoëfficiënt van  $\text{HNO}_3$ , daarbij gebruik makend van de Marshall-Palmer verdeling voor het druppelgroottespectrum. Grafische interpretatie van deze berekeningen levert als relatie tussen  $\Lambda(\text{HNO}_3)$  en de regenintensiteit (Asman, 1984)

$$\Lambda(\text{HNO}_3) = 1.81 I^{0.68} \quad (5.26)$$

Voor andere goed oplosbare gassen kan men soortgelijke functies vinden door rekening te houden met de afhankelijkheid van de massaoverdrachtscoëfficiënt van de gasdiffusieconstante (Asman, 1984), zie tabel 5.5. Door de goede oplosbaarheid zullen de druppels vrijwel altijd onverzadigd blijven. Er zal een continue flux optreden van gas- naar waterfase.

Volgens Scott (1978) wordt de accumulatiesnelheid van de sulfaatmassa in regen als gevolg van scavenging door regen gegeven door

$$\frac{dM}{dt} = 0.3 C_1 M m_a \quad (5.27)$$

- waarin  $M_S$  = de totale sulfaatmassa in hydrometeoren per  $m^3$  lucht  
 $C_1$  = een empirische constante ( $5.2 \cdot 10^{-3}$  voor regendruppels en  
 $3.7 \cdot 10^{-3}$  voor ijs-hydrometeoren)  
 $M$  = hydrometeoormassa per  $m^3$   
 $m_a$  = sulfaatconcentratie met diameter groter dan 1.0  $\mu m$ .

Hierbij is uitgegaan van een vangstrendement van 0.3.

$M$  kan geparametriseerd worden door de volgende empirische relaties:

$$M = \frac{10^6 I}{V_d}$$

valsnelheid  $V_d = D_o^{1/2}$

druppeldiameter  $D_o = 2.13 \cdot 10^{-2} I^{0.21}$  . (5.28)

Indien  $m_a$  geschat wordt op 10% van de totale sulfaatconcentratie, dan wordt voor de scavengingcoëfficiënt voor sulfaat gevonden

$$\Lambda (SO_4) = 7.62 I^{0.89} . \quad (5.29)$$

Deze relatie wordt op alle aerosolcomponenten ( $H_2SO_4$ ,  $NH_4NO_3$ ,  $(NH_4)_2SO_4$ ,  $NH_4HSO_4$ ) toegepast, waarbij dus aangenomen is dat de deeltjesgrootteverdeling voor alle aerosolcomponenten gelijk is.

Ter illustratie zijn de scavengingcoëfficiënten bij een tweetal regenintensiteiten (1 en 10 mm/h) in tabel 5.5 gegeven.

Tabel 5.5 Scavengingcoëfficiënten ( $s^{-1}$ ).

component	$\Lambda$	$\Lambda(I=1\text{mm/h})$	$\Lambda(I=10\text{mm/h})$
$HNO_3$	$1.81 I^{0.68}$ a)	$6.3 \cdot 10^{-5}$	$3.0 \cdot 10^{-4}$
$NH_3$	$2.64 I^{0.68}$	$9.2 \cdot 10^{-5}$	$4.4 \cdot 10^{-4}$
$H_2O_2$	$2.45 I^{0.68}$	$8.5 \cdot 10^{-5}$	$4.1 \cdot 10^{-4}$
$H_2SO_4$ , aerosol	$7.62 I^{0.89}$	$1.1 \cdot 10^{-5}$	$8.6 \cdot 10^{-5}$
$SO_2$	$\frac{512 I}{[H^+]H_i}$	-	-

a)  $I$  in m/s

Mogelijk is wash-out van belang voor goed oplosbare en in water reactieve componenten zoals formaldehyde,  $\text{NO}_3$ -radicaal,  $\text{N}_2\text{O}_5$ . Nader onderzoek zal uit moeten wijzen of en, zo ja, hoe de natte verwijdering van deze componenten gemodelleerd moet worden.



## REFERENTIES

- Aalst, R.M. van, and H.S.M.A. Diederer, 1985: Removal and transformation processes in the atmosphere with respect to SO<sub>2</sub> and NO<sub>x</sub>. In: "Interregional air pollution modelling; the state of the art" (S. Zwerver en J. van Ham, eds), Vol 9, p. 83 , Plenum, New York.
- Asman, W.A.H., 1984: Depositieprocessen en hoeveelheid zure depositie. IMOU-rapport V84-5, IMOU-Utrecht.
- Barrie, L.A., 1981: The prediction of rain acidity and SO<sub>2</sub>-scavenging in Eastern North America. *Atmospheric Environment*, 15, 31-41.
- Bruin, H.A.R. de, and A.A.M. Holtslag, 1982: A simple parameterization of the surface fluxes of sensible and latent heat during daytime compared with the Penman-Monteith Concept, *J. Appl. Meteor.* 21, p. 1610-1621.
- Businger, J.A., 1973: Turbulent transfer in the atmospheric surface layer. Workshop on Micrometeorology (D.A. Hanger ed), Amer. Meteor. Soc., Boston.
- Businger, J.A., 1984: Equations and Concepts, in "Atmospheric Turbulence and Air Pollution Modelling", F.T.M. Nieuwstadt en H. van Dop (eds.) D. Reidel, Dordrecht, p. 1-36.
- Cats, G.J., 1985: A simple horizontal interpolation scheme for irregularly distributed data. KNMI Memorandum FM-85-27 (unpublished manuscript).
- Cats, G.J., J. Reiff, C.A. Engeldal, 1985: Procedures used in the boundary layer height and wind analysis for the PHOXA project. Technical Report TR-64, KNMI, De Bilt.
- Chock, D.P., 1985: A comparison of numerical methods for solving the advection equation - II, *Atmospheric Environment* 19, 571-580.
- Christensen, O., and L.P. Prahm, 1976: A pseudo spectral method for dispersion of atmospheric pollutants, *J. Appl. Meteor.* 15, 1284-1294.

- Cooley, J.W., and J.W. Tukey, 1965: An algorithm for the machine calculation of complex Fourier series, *Math. Comp.* 19, 297.
- Davenport, A.G., 1960: Rationale for determining design wind velocities, *J. Am. Soc. Civ. Eng.*, st-86, 39-68.
- Dodge, M.C., 1977: Combined use of modeling techniques and smog chamber data to derive ozone-precursor relationships. U.S. Environmental Protection Agency Report, EPA-600/3-77-001a, p. 881-889.
- Dolske, D.A., and D.F. Gatz, 1985: A field intercomparison of methods for the measurements of particle and gas dry deposition. *J. Geophys. Res.*, 90, D1, 2076-2084.
- Dop, H. van, 1983: Terrain classification and derived meteorological parameters for interregional transport models, *Atmospheric Environment*, 17, 1099-1105.
- Dop, H. van, B.J. de Haan and C.A. Engeldal, The KNMI mesoscale air pollution model. *Wetensch. rapp. WR 82-6*. Royal Neth. Meteor. Inst. (1982).
- Egan, B.A., and J.R. Mahoney, 1971: Numerical modelling of advection and diffusion of urban area source pollutants, *J. Appl. Meteor.* 11, 312.
- Fiedler, F. and H.A. Panofsky, 1972: The geostrophic drag coefficient and the effective roughness length, *Quart. J. R. Meteorol. Soc.*, 98, 213-220.
- Forester, C.K., 1977: Higher order monotonic convective difference schemes, *J. Comp. Phys.*, 23, 1-22.
- Gear, C.W., 1971: The automatic integration of ordinary differential equations. *Comm. A. C. M.*, 14, 176-179.
- Gear, C.W., 1971: *Numerical Initial Value Problems in Ordinary Differential Equations*, Prentice Hall, UK.
- Gottlieb, D., and S.A. Orszag, 1979: *Numerical Analysis of Spectral Methods*, SIAM, Philadelphia.

- Heikes, B.G., and A.M. Thompson, 1983: Effects of heterogeneous processes on  $\text{NO}_3$ , HONO and  $\text{HNO}_3$  chemistry in troposphere. J. Geophys. Res., 88, C15, 10883-10895.
- Hov, O., 1983: Numerical solution of a simplified form of the diffusion equation for chemically reactive atmospheric species. Atmospheric Environment, 17, 551-562.
- Huebert, B.J., and C.H. Robert, 1985: The dry deposition of nitric acid to grass. J. Geophys. Res., 90, D1, 2085-2090.
- Hundsdofer, W.H., 1984: Numerical solutions of non-linear stiff initial value problems: an analysis of one step methods. Thesis, Leiden.
- Kan, J. van, N. Praagman en A. Segal, 1983: Numerieke Analyse CII/BIII, (Collegediktaten dl I+II) TH Delft.
- Karamchandani, P., and L.K. Peters, 1983: Analysis of the error associated with grid representation of point sources, Atmospheric Environment 17, 927-933.
- Killus, J.P., and G.Z. Whitten, 1983: A new Carbon-Bond Mechanism for air quality simulation modelling. 81245, System Application Inc., San Rafael, Ca.
- Leeuw, F.A.A.M. de, H. Kesseboom en N.D. van Egmond, 1985: Numerieke verspreidingsmodellen voor de interpretatie van de meetresultaten van het Nationaal Meetnet voor Luchtverontreiniging; ontwikkeling 1982-1985. RIVM-rapport 842017002, Bilthoven.
- Leeuw, F.A.A.M. de, H. Kesseboom, H.J. van Rheineck Leyssius en M.P. Scheele, 1986: Europees verspreidingsmodel ter bepaling van concentraties en deposities van verzurende componenten. RIVM-rapport 842017003, Bilthoven.

- Leeuw, F.A.A.M. de, H.J. van Rheineck Leyssius, K.D. van den Hout, H.S.M.A. Diederer, M. Berens en W.A.H. Asman, 1988: Een lagrangiaans lange-afstand transportmodel met niet-lineaire atmosferische chemie: MPA-model. RIVM-rapport 228471004, Bilthoven.
- Levine, S.Z., and S.E. Schwartz, 1982: In-cloud and below-cloud scavenging of nitric acid vapor. *Atmospheric Environment*, 16, 1725-1734.
- Long, P.E., and D.W. Pepper, 1981: An examination of some simple numerical schemes for calculating scalar advection, *J. Appl. Meteor.* 20, 146.
- Marchuk, G.I., 1975: *Methods of Numerical Mathematics*, Springer, New York etc.
- McMahon, T.A., and P.J. Denison, 1979: "Empirical atmospheric deposition parameters - a survey", *Atmospheric Environment*, 13, pp. 571-585.
- McRae, G.J., W.R. Goodin, and J.H. Seinfeld, 1982: Numerical solution of the atmospheric diffusion equation for chemically reacting flows, *J. Comp. Phys.* 45, 1-42.
- Meteorologische codes, Kon. Ned. Met. Inst. (1982) Meteorologische codes (KNMI-publ. 133g) Staatsuitg. 's Gravenhage.
- Möller, D., 1980: Kinetic model of atmospheric SO<sub>2</sub>-oxidation based on published data. *Atmospheric Environment*, 14, 1067-1076.
- National Centre for Atmospheric Research, 1985: The NCAR Eulerian Regional Acid Deposition Model, NCAR Technical note 256+str., Boulder Colorado USA.
- Onderdelinden, D., J.A. van Jaarsveld en N.D. van Egmond, 1984: Bepaling van de depositie van zwavelverbindingen in Nederland. Rapport 842017001, RIVM, Bilthoven.
- Pasquill, F., and F.B. Smith, 1983: *Atmospheric Diffusion*, John Wiley, New York, 1983.

- Pedersen, L.B., and L.P. Prahm, 1974: A method for numerical solution of the advection equation, *Tellus* 26, pp. 594.
- Peters, L.K., 1983: Gases and their precipitation scavenging in the marine atmosphere. In: "Air-sea exchange of gases and particles" (P.S. Liss and W.G.N. Slinn, eds), pp. 173-240.
- Peyret, R., and T.D. Taylor, 1983: *Computational Methods for Fluid Flow*, Springer, New York.
- Praagman, N., 1986: TRASIL, A Numerical Simulation Model for the Transport of Silt, Internal Report, Svasek B.V., Rotterdam.
- Richtmyer, R.D., and K.W. Morton, 1967: *Difference Methods for Initial-Value Problems*, Interscience Publishers, New York.
- Roache, P.J., 1976: *Computational Fluid Dynamics*, Hermosa, Albuquerque.
- Saxena, P., A.B. Hudischewskyj, C. Seigneuz and J.H. Seinfeld, 1986: A comparative study of equilibrium approaches to the chemical characterization of secondary aerosols, *Atmospheric Environment*, 20, 1471-1483.
- Schneider, H.R., 1984: A numerical transport scheme which avoids negative mixing ratios. *Mon. Wea. Rev.*, 112, 1206-1217.
- Scott, B.C., 1978: Parametrization of sulphate removal by precipitation. *J. Appl. Meteor.*, 17, 1375-1389.
- Sehmel, G.A., 1980: Particle and dry deposition : A review. *Atmospheric Environment*, 14, pp. 983-1011.
- Sheih, C.M., M.L. Wesely, and B.B. Hicks, 1979: Estimated dry deposition velocities of sulphur over the eastern United States and surrounding regions, *Atmospheric Environment*, 13, pp. 1361-1368.

- Smith, F.B. and D.J. Carson, 1977: Some thoughts on the specification of the Boundary-layer relevant for numerical modelling, *Bound. Layer Meteor.*, 12, 307-330.
- Smolarkiewicz, P.K., 1984: A fully multidimensional positive definite advection transport algorithm with small implicit diffusion, *J. Comput. Phys.*, 54, 325.
- Stijn, Th. L. van, J. van Eijkeren and N. Praagman, 1987: A comparison of Numerical Methods for Air-Quality Models. KNMI scientific report WR 87-6; RIVM report 958702007, Roy. Neth. Meteor. Inst. De Bilt.
- Strang, G., and G.J. Fix, 1973: *An Analysis of the Finite Element Method* Prentice-Hall, Engelwood Cliffs.
- Tennekes, H., 1973: The logarithmic wind profile, *J. Atmos. Sci.*, 30, 234-238.
- Ulden, A.P. van, and A.A.M. Holtslag, 1985: Estimation of atmospheric boundary layer parameters for diffusion applications. *Journal of climate and applied meteorology*, 24, p. 1196-1207.
- United States Environmental Protection Agency, 1984: Proceedings of the EPA-OECD international conference on long range transport models for photochemical oxidants and their precursors, Epa-600/9-84-006.
- Voldner, E.C., L.A. Barrie, and A. Sirios, 1986: A literature review of dry deposition of oxides of sulphur and nitrogen with emphasis on long-range transport modelling in North America, *Atmospheric Environment*, 20, 2101-2123.
- Wesely, M.L., and B.B. Hicks, 1977: Some factors that affect the deposition rate of sulfur dioxide and similar gases on vegetation. *J. Air. Poll. Contr. Ass.*, 27, 1110-1116.
- Wesely, M.L., D.R. Cook, R.L. Hart and R.E. Speer, 1985: Measurements and parametrization of particulate sulfur dry deposition over grass, *J. Geophys. Res.*, 90, D1, 2131-2143.

- Wesely, M.L. and B.B. Hicks, 1977: Some factors that affect the deposition rates of sulphur dioxide and similar gases on vegetation, *J. Air Poll. Contr. Ass.*, 27, 1110-1116.
- Wieringa, J., 1981: Estimation of mesoscale and local-scale roughness for atmospheric transport modelling, in: "Air pollution modelling and its application" (ed. C. de Wispelaere) New York, pp. 279-295.
- Wieringa, J., en P.J. Rijkoort, 1983: Windklimaat van Nederland, Staatsuitgeverij, Den Haag.
- Wieringa, J., 1986: Roughness-dependent geographical interpolation of surface wind speed averages, *Quart. J. Roy Meteor. Soc.*, 112, no 473, 867-889.
- Wilson, M.F. and A. Henderson-Sellers, 1985: A global archive of land-cover and soil data for use in general circulation climate models, *J. of Climatology*, 5, 119-143.
- Yanenko, N.N., 1971: *The Method of Fractional Steps*, Springer, New York.





Appendix A EEN PROCEDURE VOOR DE BEREKENING VAN LANGE TERMIJN GEMIDDELDE  
CONCENTRATIE EN DEPOSITIE

De in dit rapport beschreven modellen simuleren de verspreiding en transformatie van luchtverontreiniging over periodes van enkele dagen. In principe zijn er geen bezwaren om berekeningen uit te voeren over perioden van langere duur (maand of seizoen), zij het dat de kosten en rekentijd dan navenant stijgen. In de praktijk zal dit de operationele, slagvaardige inzetbaarheid sterk doen afnemen, een reden om naar alternatieven uit te kijken.

De hier uiteengezette mogelijkheid is gebaseerd op het feit dat "het weer" (i.e. de meteorologische omstandigheden) zich bij benadering herhaalt. Hiervan uitgaande is het mogelijk om de dagelijkse meteorologische situatie in een bepaald gebied in te delen in een willekeurig doch eindig aantal "patronen". Dit gedaan hebbende is het mogelijk om over een langere periode een classificatie van het dagelijkse weer te maken, die representatief geacht kan worden voor het heersende klimaat en dat gebied (> 10 jaar). Hiermee is dan de frequentie van optreden van een aantal vaste patronen bepaald.

Een voorbeeld van een indeling in weerpatronen is de "Gross Wetter Lage" classificatie van Hess en Brezowski. Zij delen het weer in volgens 30 circulatietypen, waarbij de cyclonaliteit van de stroming een belangrijke rol speelt. In fig. C1 zijn de belangrijkste circulatiepatronen weergegeven.

Een andere indeling, in 27 circulatietypen, is gemaakt door Kruizinga (fig. C2). Een eigenschap van deze classificatie is dat de frequentie van voorkomen van elk circulatietype gelijk is (= 1/27).

We kunnen nu als volgt tot de berekening van een lange termijn gemiddelde depositiepatroon komen.

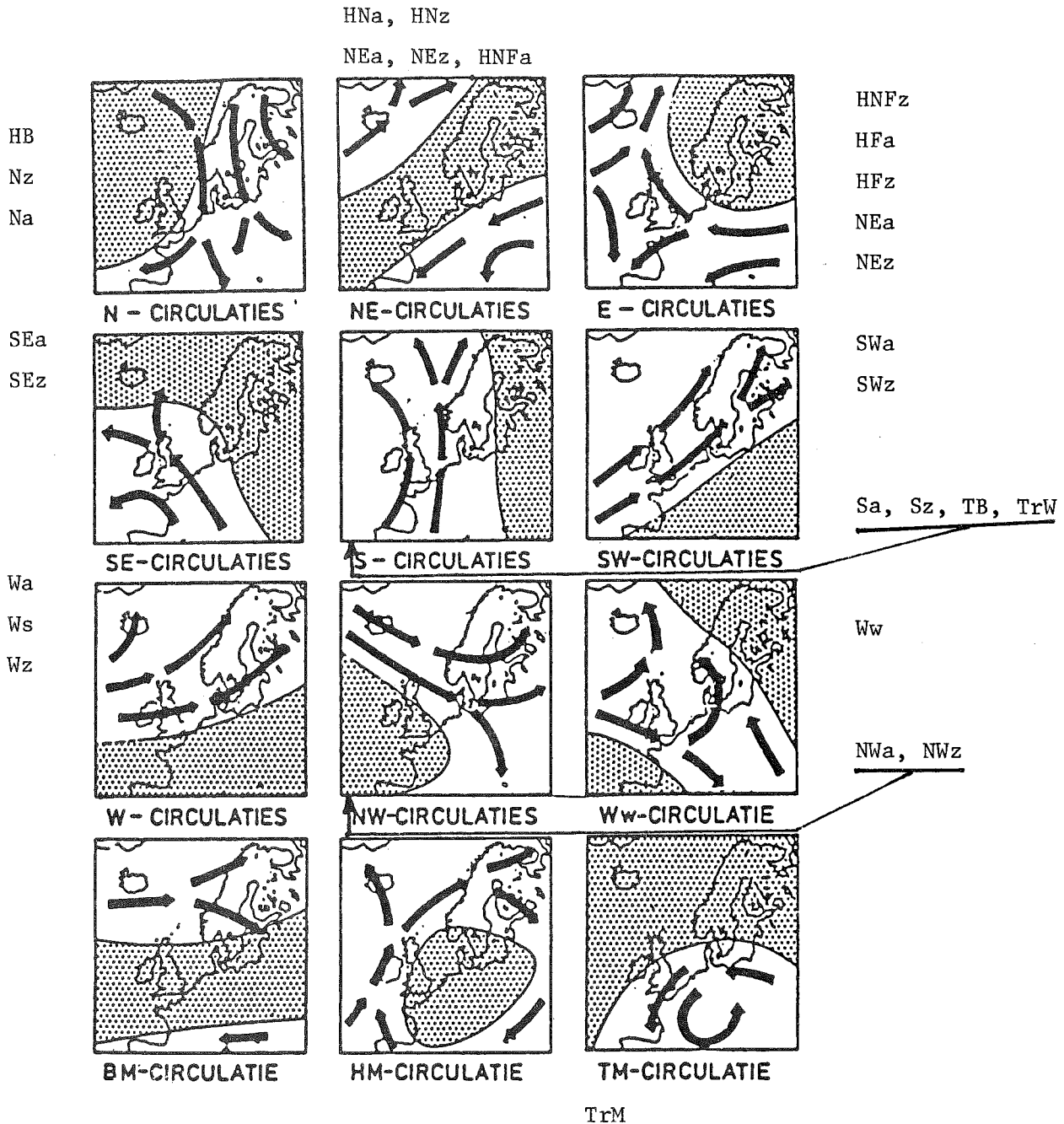
1. Kies een aantal dagen uit dat minimaal gelijk is aan het aantal circulatietypen, zó dat ieder circulatietype minstens eenmaal is vertegenwoordigd.
2. Neem het depositiepatroon behorende bij circulatietype  $i$ ,  $D_i$ , of als in deze klasse meerdere dagen zijn vertegenwoordigd  $\overline{D}_i$ , het gemiddelde depositiepatroon.
3. Als de frequentie van voorkomen van circulatietype  $i$ ,  $w_i$  is en het totaal aantal circulatietypen  $n$  dan wordt het lange termijn gemiddelde depositiepatroon  $D_c$  gegeven door

$$D_c = \sum_{i=1}^n w_i \overline{D}_i .$$

Op deze manier is het mogelijk om met een berekening voor minimaal  $n$  dagen ( $n \sim 30$ ) tot een lange termijn gemiddelde schatting van de depositie te komen.

In tabel CI is een selectie gemaakt van een aantal dagen uit het verleden waarvoor mogelijk een berekening gemaakt zou kunnen worden. In tabel CII is aangegeven tot welke circulatietypen deze dagen behoren volgens beide bovengenoemde weerclassificaties. Op basis hiervan kan een bestand van ongeveer 40 dagen worden geselecteerd die regelmatig over de meeste circulatietypen zijn verdeeld. Hierbij kan nog worden opgemerkt dat het aanbeveling verdient om van met name de "natte circulatietypes" niet met 1 sample te volstaan, gezien de ruimtelijke variabiliteit van het neerslagpatroon, dat ook binnen ieder afzonderlijk circulatietype aanwezig is.

Een belangrijk verschil met de classificatie van Hess en Brezowski is dat de methode Kruizinga gebaseerd is op het circulatiepatroon van het 500 mbar vlak. Op deze hoogte (ca 5 km) is het transport vrijwel altijd westelijk. Voor toepassing in de verspreiding van luchtverontreiniging is deze methode dan ook minder geschikt omdat die zich voornamelijk in de onderste drie km van de atmosfeer afspeelt.



**Figuur C1** Schematische voorstelling van de voornaamste circulatietypen boven West-Europa. In de gestippelde gebieden ligt het centrum van het sturende hogedrukgebied. De pijlen geven de trekrichting van de depressies aan en tevens de gemiddelde richting van de wind in de hogere luchtlagen. De letters duiden in het algemeen op de richting van de circulatie (b.v. SE = zuidoosten).  
 Ws = ombuigende westelijke circulatie  
 BM = hogedrukzone oceaán - Midden-Europa  
 HB = hogedruk boven Midden-Europa  
 TM = lagedruk boven Midden-Europa  
 Bij de figuren staan de circulatietypen volgens Hess en Brezowski geschreven.

Tabel CI Een selectie van episoden ten behoeve van verspreidingsmodel-  
studies. Tussen haakjes staan de circulatietypen (KNMI) vermeld.

	aantal dagen	windrichting in De Bilt
<u>A. Episoden met hoge SO<sub>2</sub>- en NO<sub>x</sub>-concentraties</u> (daggemiddelde over Nederland SO <sub>2</sub> > 75 ug/m <sup>3</sup> , NO <sub>x</sub> > 50 ppb)		
1. 10 t/m 20 jan. 1980	11	oost (23,22,19,19,11,21,20,19,23,25,26)
2. 17 t/m 24 dec. 1981	8	no-oost (2,12,3,14,14,15,18,18)
3. 12 t/m 21 jan. 1982	10	zo (11,10,13,13,25,17,25,25,26,26)
4. 25 en 26 feb. 1982	2	zo (14,4)
5. 16 t/m 20 feb. 1984	5	var en oost (22,22,22,25,20)
6. 10 t/m 21 jan. 1985*	12	zw, no en zo (20,20,19,19,21,21,24,26, 23,11,11,14)
7. 12 t/m 16 feb. 1985	5	var en oost (11,11,11,11,10)
<u>B. Episoden met hoge O<sub>x</sub>-concentraties</u> (daggemiddelde over Nederland > 60 ppb)		
1. 13 t/m 16 apr. 1980	4	zo (25,25,22,22)
2. 8 t/m 10 jul. 1981	3	oost-zo (16,25,26)
3. 15 t/m 17 mei 1982	3	var (22,22,25)
4. 1 t/m 8 jun. 1982*	8	zuid en var (25,25,25,25,25,22,19,19) PHOXA-CEC 29/5 t/m 2/6 en PHOXA-OECD 3/6 t/m 7/6)
5. 2 t/m 8 aug. 1982	7	oost en var (22,22,26,23,23,13)
6. 6 t/m 8 jul. 1983	3	var (16,25,22)
7. 20 t/m 22 apr. 1984	3	var (4,13,13)
8. 22 t/m 24 aug. 1984	3	zo (22,23,23)
<u>C. Perioden met westenwind en verhoogde SO<sub>2</sub>-concentraties in het westen van het land</u>		
1. 2 t/m 5 maart 1980*	4	(1,11,10,1)
2. 22 t/m 26 jan. 1984	5	(8,8,6,6,17)
<u>D. Perioden met NO-wind en verhoogde SO<sub>2</sub>-concentraties in Noord-Nederland</u>		
1. 14 t/m 24 dec. 1981*	11	(3,3,2,2,1,2,3,14,14,15,18,18) (zie ook A)
2. 22 t/m 24 maart 1984	3	(16,16,26)
3. 12 t/m 14 feb. 1985*	3	(11,11,11) (zie ook A)

De met \* gemerkte periode genieten de voorkeur!

Tabel CII Verdeling van de dagen uit de episoden van tabel CI over de circulatietypen. De letters corresponderen met de rubrieken A-D uit tabel CI.

---

Circulatie type		Circulatie type		Circulatie type	
1	2C	10	2A, C	19	5A, 2B
2	A, 2D	11	8A, C, 3D	20	4A
3	A, 3D	12	A, D	21	3A
4	A, B	13	3A, 3B	22	4A, 9B
5	-	14	4A, 2D	23	2A, 5B
6	2C	15	A, D	24	A
7	-	16	2B, 2D	25	5A, 10B
8	2C	17	A, C	26	4A, 2B, D
9	-	18	2A, 2D	27	-

---

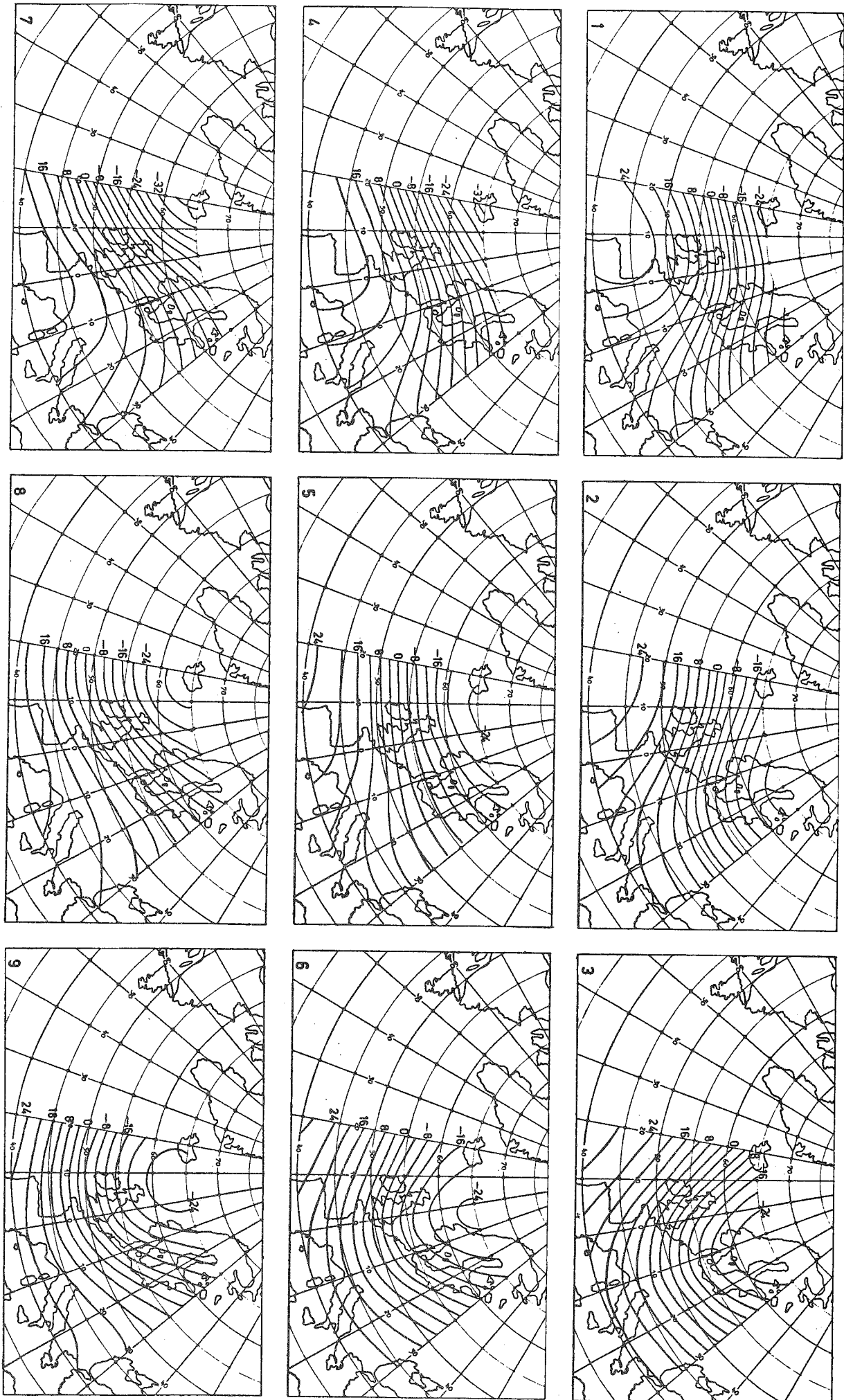


Fig. C2 Weertype indeling volgens 27 circulatiepatronen (KNMI)

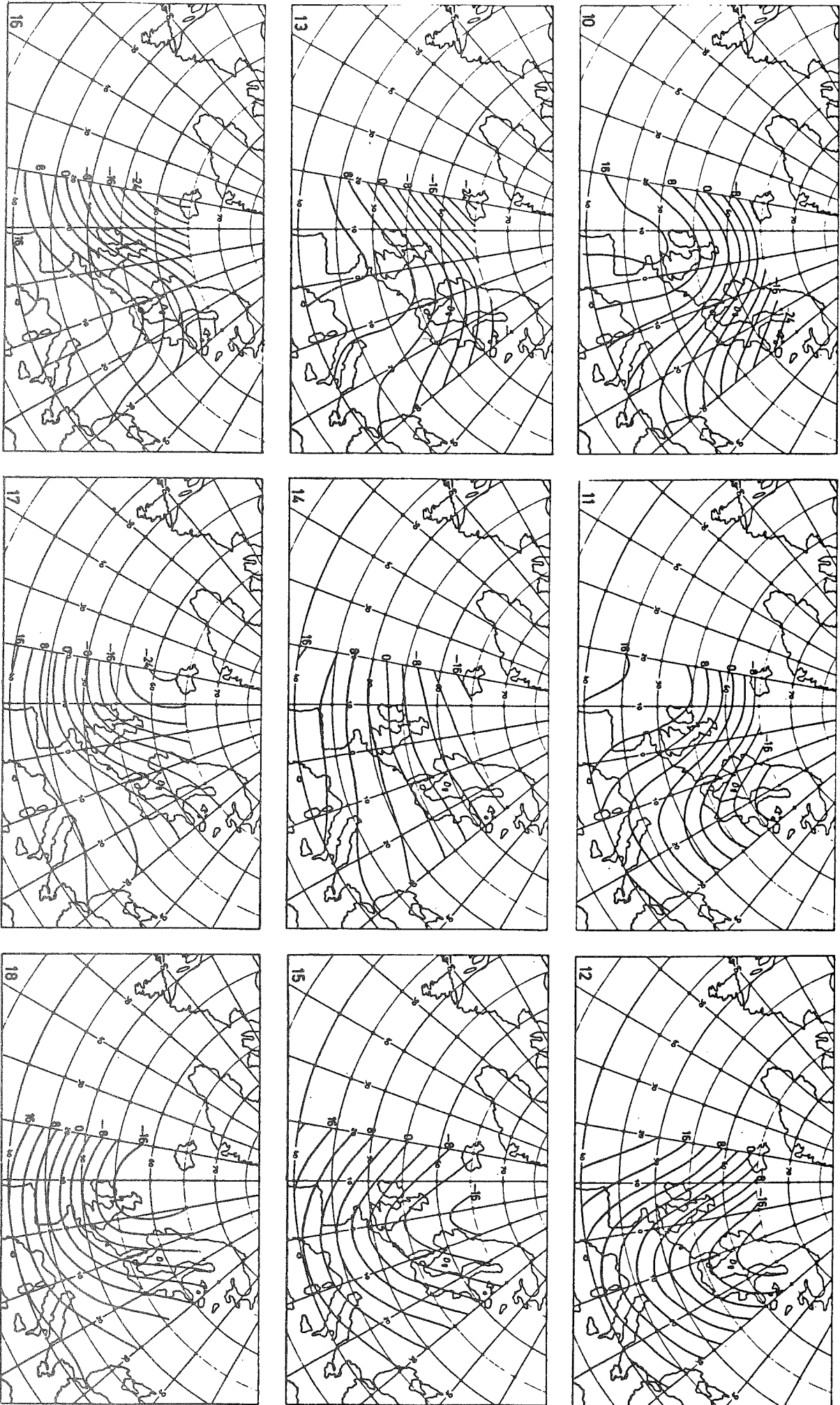


Fig. C2

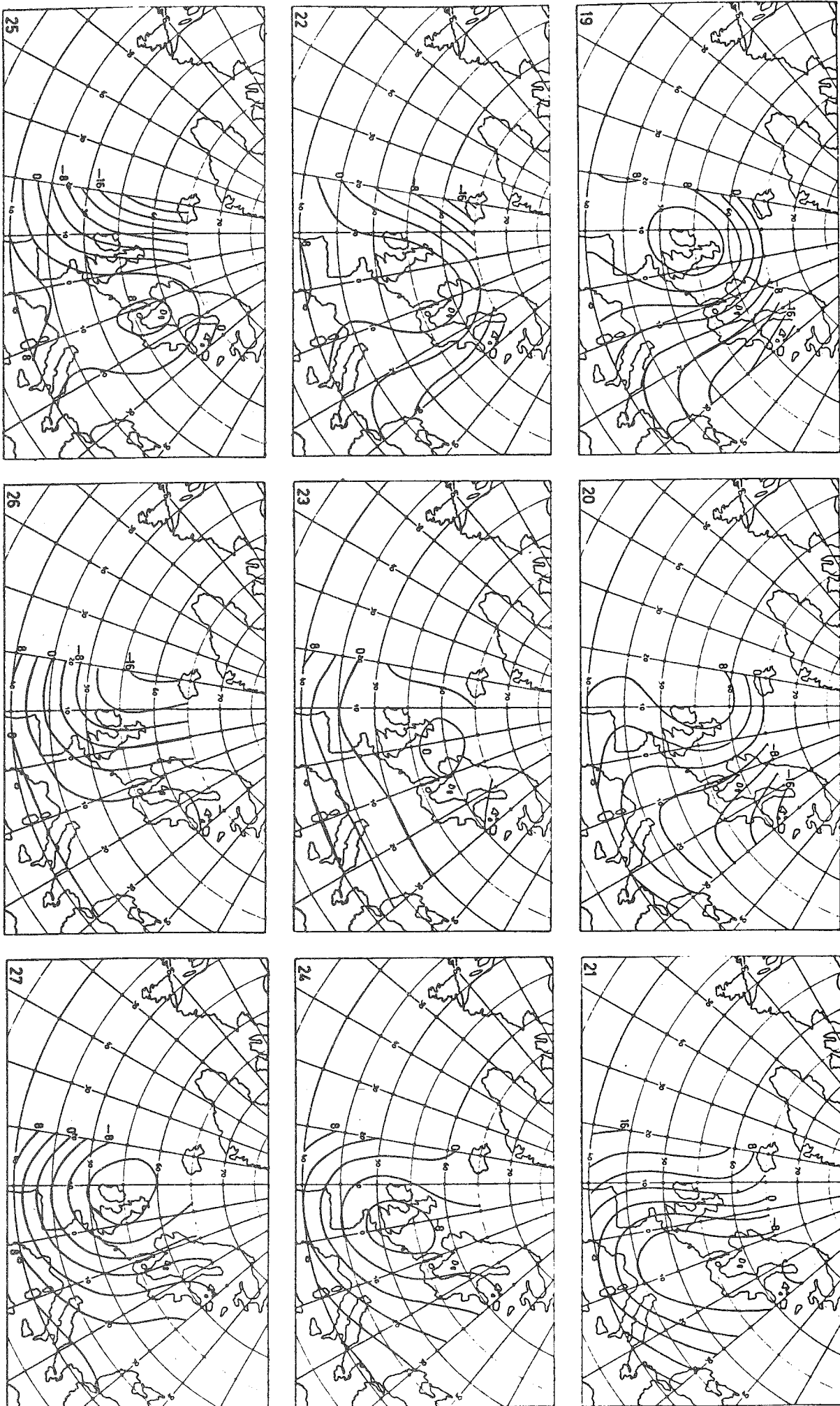


Fig. C2



Appendix B ADRESLIJST RIVM/KNMI/IMOU-MODELLENSAMENWERKING

W.A.H. Asman (RIVM)  
 H. van Dop (KNMI)  
 J.C.H. van Eykeren (RIVM)  
 F.A.A.M. de Leeuw (RIVM)  
 D. Onderdelinden (RIVM)  
 J. van Rheineck Leyssius (RIVM)  
 M.P. Scheele (KNMI)  
 P. de Valk (IMOU)  
 G.H.L. Verver (KNMI)  
 J. Warmenhoven (KNMI)\*

Agendaleden:

P.J.H. Bultjes (TNO)  
 A.P. van Ulden (KNMI)  
 J.F. den Tonkelaar, Prof. Dr. Eyckmanweg 1, 3731 KT DE BILT  
 R.M. van Aalst (RIVM)

RIVM	TNO-Apeldoorn
Postbus 1	Postbus 342
3720 BA BILTHOVEN	7300 AH APELDOORN
030 - 74 91 11	055 - 77 33 44

KNMI	IMOU
Postbus 201	Princetonplein 5
3730 AE DE BILT	3584 CC UTRECHT
030 - 76 69 11	030 - 53 32 75

---

\* per 1-2-1988 MT-TNO





