

VERSPREIDINGSMODELLEN VOOR ROOKPLUIMEN
VAN KOLENGESTOOKTE INSTALLATIES
MET HET OOG OP OMZETTING EN
DROGE DEPOSITIE

door

P.J.H. Builtjes,
G.L.H. Beugeling
J. Vijge



postbus 342
7300 AH apeldoorn

bezoekadres
laan van westenenk 501

telex 36395 tnoap
telefoon 055 - 77 33 44

Ref.nr. : 85-01234
Dossier nr.: 8724-50055
Datum : januari 1985
P

Trefwoorden:
Verspreiding
Chemische omzetting
ST-code: G 1.2

Het onderzoek is uitgevoerd onder contract met het Bureau Energie Onderzoek Projecten van de Stichting Energieonderzoek Centrum Nederland, in het kader van de Nationaal Onderzoekprogramma Kolen, dat gefinancierd wordt door het Ministerie van Economische Zaken.

„Niets uit deze uitgave mag worden vermenigvuldigd en/of openbaar gemaakt door middel van druk, fotocopie, microfilm of op welke andere wijze dan ook, zonder voorafgaande toestemming van TNO.”

Indien dit rapport in opdracht werd uitgebracht, wordt voor de rechten en verplichtingen van opdrachtgever en opdrachtnemer verwezen naar de „Algemene Voorwaarden voor Onderzoeks- en Ontwikkelingsopdrachten aan TNO, 1979” dan wel de desbetreffende terzake tussen partijen gesloten overeenkomst.

<u>INHOUDSOPGAVE</u>	<u>Pag.</u>
SAMENVATTING	4
SUMMARY	5
1. INLEIDING	6
2. OVERZICHT LITERATUUR MET BETREKKING TOT CHEMISCH REACTIEVE PLUIMMODELLEN	7
2.1 Inleiding	7
2.2 Overzicht van de bestaande modellen	7
3. OVERZICHT LITERATUUR MET BETREKKING TOT MODELLERING VAN DROGE DEPOSITIE	11
3.1 Inleiding	11
3.2 Overzicht van de bestaande modellen	12
3.2.1 Gedeeltelijke reflectie ("partial reflection")	12
3.2.2 Bronsterktereductie ("source depletion")	13
3.2.3 "Surface depletion" methoden	14
3.2.4 Oplossingen diffusievergelijking	15
3.2.5 Reflectiemanipulatie met een lijnbron	15
3.3 Beoordeling van de droge depositiemodellen	16
3.4 Het gebruikte model van Horst (1982)	16
4. INVENTARISATIE VAN BUITENMETINGEN EN WINDTUNNELRESULTATEN	20
5. BESCHRIJVING VAN HET VOORGESTELDE CHEMISCH REACTIEVE PLUIMMODEL	25
5.1 Het voorgestelde model	25
5.2 Een zeer eenvoudig model	28
6. EVALUATIE VAN DE BEREKENINGEN	31
6.1 Invoergegevens	31
6.2 Resultaten	34

<u>INHOUDSOPGAVE</u> (vervolg)	<u>Pag.</u>
7. MODELBEREKENINGEN	38
7.1 Uitwerking voor een specifieke situatie	38
7.2 Gevoeligheidsanalyse van het model	38
8. CONCLUSIES	41
9. REFERENTIES	43
FIGUREN	

SAMENVATTING

Een chemisch reactief pluimmodel met betrekking tot de NO-NO_2 omzetting in pluimen afkomstig van hoge bronnen wordt besproken en vergeleken met metingen van schoorsteenpluimen van elektriciteitscentrales.

Het model voorspelt voor 74% van de metingen de NO/NO_x -verhouding binnen het betrouwbaarheidsinterval. Op korte afstand van de bron is de voorspelling afwisselend te hoog en te laag, op grote afstand te laag.

Het model wordt toegelicht en de gevonden afwijkingen verklaard.

Berekeningen tonen dat de invloed van droge depositie op de voor hoge bronnen berekende NO_x -concentratie verwaarloosd kan worden tot op afstanden van ca. 50 km.

Een zeer eenvoudig model dat slechts één aflopende reactie voor de NO-NO_2 omzetting in rekening brengt voorspelt de NO/NO_x -verhouding slecht en toont daarmee de verbetering van het voorgestelde model.

Plume dispersion models of coal-fired power plants with respect to chemical transformation and dry deposition.

SUMMARY

A chemical reactive plume model for tall stacks directed to NO-NO₂ conversion is discussed and its results are compared with measured of power-station plumes.

The model predicts the NO/NO_x ratio for 74% of the measurements within the reliability range. At short distance from the source the prediction is alternately too high and too low, at long distance too low.

The model is described and the found discrepancies are explained.

Calculations show that the influence of the dry deposition on calculated NO_x-concentrations for tall stacks can be neglected for distances up to about 50 km from the source.

A very simple model, accounting for only one terminating reaction for the NO-NO₂ conversion, predicts the NO/NO_x ratio poorly and shows the advantage of the proposed model.

1. INLEIDING

De herintroductie van kolen zal gevolgen hebben voor de luchtverontreinigingsniveaus van een groot aantal componenten. Teneinde deze gevolgen kwantitatief te kunnen bepalen is op 1 januari 1982 het programma "LUK" gestart. Daarbij is gedacht aan het verkrijgen van gegevens met betrekking tot uitworp van luchtverontreinigende componenten door kolengestookte elektriciteitscentrales en wervelbedketels, de verspreiding en de omzetting, de concentraties op leefniveau en de depositie.

Het doel van het in dit rapport beschreven onderzoek is het operationeel maken van geschikte modellen voor de beschrijving van chemische omzettingen in en droge depositie uit rookpluimen van kolengestookte installaties. Het onderzoek dient te leiden tot bruikbaar chemisch reactief pluimmodel, - gericht op de berekening voor NO en NO₂ (grond)concentraties, - in principe beschikbaar voor potentiële gebruikers.

In hoofdstuk II wordt een overzicht gegeven van relevante literatuur met betrekking tot chemisch reactieve pluimmodellen, hoofdstuk III geeft een literatuuroverzicht van de modellering van droge depositie. De verzamelde buitenmetingen en windtunnelresultaten zijn weergegeven in hoofdstuk IV. Hoofdstuk V geeft een beschrijving van het voorgestelde chemisch reactieve pluimmodel, in hoofdstuk VI gevolgd door een vergelijking van berekende modelresultaten met de in hoofdstuk IV weergegeven metingen. Hoofdstuk VII bevat een korte gevoeligheidsanalyse alsmede een voorbeeldberekening voor een specifieke situatie. Het rapport wordt afgesloten met hoofdstuk VIII, conclusies.

2. OVERZICHT LITERATUUR MET BETREKKING TOT CHEMISCH REACTIEVE PLUIM-MODELLEN

2.1 Inleiding

De NO_x -emissie van een verbrandingsproces zoals dit bijvoorbeeld ontstaat bij kolenstook bestaat voor het overgrote deel uit NO, ca. 95% en slechts voor een klein deel, 5% uit NO_2 .

Tijdens het verspreidingsproces van de schoorsteenpluim door de atmosfeer treedt omzetting van NO naar NO_2 op, onder invloed van met name O_3 en O_2 . Deze omzettingen zijn niet lineair, dat wil zeggen dat de omzettingssnelheid niet evenredig is met de concentratie van NO. Bovendien is de concentratie van O_3 en O_2 in het algemeen niet constant in de doorsnede van de pluim en als functie van de afstand tot de bron. Deze omzetting vindt plaats onder invloed van het turbulente mengproces in de pluim doordat de tijdschalen van menging en omzetting van dezelfde grootte-orde zijn. Bij de beschrijving van de tot nu toe ontwikkelde chemisch reactieve pluimmodellen komen dan ook veelvuldig de woorden "inhomogene menging", "instantane pluim", "concentratiefluctuatiecorrelatie" voor zonder dat tot nu toe een model is ontwikkeld dat op afdoende wijze deze drie sterk samenhangende en deels identieke processen beschrijft. Deze drie processen veroorzaken een vertraging in de omzetting van NO naar NO_2 zoals deze bepaald wordt uitgaande van homogene menging, waarbij dus deze drie processen worden verwaarloosd. Deze vertraging wordt bevestigd door buitenmetingen, zie bijvoorbeeld Elshout (1984).

2.2 Overzicht van de bestaande modellen

In een overzichtsartikel (Builtjes, 1981) wordt een onderscheid gemaakt in vijf typen chemisch reactieve pluimmodellen:

- De "doos" modellen.
- De "homogene" Gaussische pluimmodellen.
- De "onderverdeelde" Gaussische pluimmodellen.
- De "concentratiefluctuatiecorrelatie" pluimmodellen.
- De "hogere orde sluitings"(pluim)modellen.

De "doos"modellen gaan uit van één enkele goed gemengde doos die stroomafwaarts in grootte toeneemt via een Gaussische pluimverdunningsfactor. Deze modellen hebben hun zwaartepunt in de chemie en kunnen dan ook vrij uitgebreide niet-lineaire chemische reactiemechanismen bevatten, zie bijvoorbeeld Varey (1978), Schurath (1981). Deze modellen zijn niet in staat het genoemde vertragingproces te simuleren.

De "homogene" Gaussische pluimmodellen gaan uit van de verspreiding volgens het Gaussische pluimmodel voor meerdere inerte stoffen. Deze inerte stoffen kunnen bestaan uit de som van 2 reactieve stoffen. Vervolgens wordt een chemische berekening uitgevoerd op basis van lokaal chemisch evenwicht. Hoewel deze modellen duidelijk de voorkeur verdienen boven de doosmodellen doordat een concentratieprofiel wordt meegenomen, zijn ook deze modellen niet in staat de genoemde vertraging in rekening te brengen, zie bijvoorbeeld Peters (1977). Een speciaal geval van deze groep modellen is het Gaussisch pluimmodel waarbij een lineaire omzetting (eerste orde reactie) wordt meegenomen via een exponentiële afname van de bronterm (Heines & Peters, 1973). Ook deze modellen kunnen de genoemde vertraging niet beschrijven (Builtjes, 1981).

De "onderverdeelde" Gaussische pluimmodellen gaan ook uit van het Gaussische pluimmodelconcept. Om de chemische omzetting te beschrijven wordt in deze modellen het Gaussische pluimprofiel opgedeeld in bijvoorbeeld elliptische ringen. Op deze wijze kan in principe de inhomogene menging uit de omgevingslucht worden beschreven, waardoor ook het vertragingseffect kan worden meegenomen, zie Lusi (1978).

Lamb (1978) heeft een model ontwikkeld waarmee de concentratiefluctuatiecorrelatie in rekening kan worden gebracht. Ook dit model berekent een vertragingseffect. Het model bevat echter niet het inhomogene mengingproces zoals dit door Lusi wordt meegenomen, anderzijds, bevat het Lusi-model de concentratiefluctuatiecorrelatie niet.

In de discussie van het artikel van Builtjes (1981) oppert Liu (zie artikel Builtjes (1981)) de mogelijkheid dat de concentratie-

fluctuatiecorrelatie vooral van belang is op (zeer) korte afstand vanaf de schoorsteen, en dat de inhomogene menging eerder op wat grotere afstand een rol gaat spelen.

Wat betreft "hogere orde sluitingsmodellen" kan worden gesteld dat deze modellen zich nog grotendeels in de researchfase bevinden en dat nog geen operationeel pluimmodel voorhanden is (zie bijvoorbeeld Janicke, 1978).

Sinds genoemd overzichtsartikel uit 1981 zijn verscheidene pogingen gedaan tot het ontwikkelen van een chemische reactief pluimmodel. Een aantal van deze modellen valt in de categorie "homogene" Gaussische pluimmodellen. Opgemerkt dient te worden dat deze aanname van homogene menging juist is voor grotere afstanden vanaf het lozingspunt; de modellen gaan dan over in trajectory-modellen, zie bijvoorbeeld Cocks (1982), Kumaraswamy (1981). Persson (1983a, b) heeft een "homogeen" Gaussisch pluimmodel ontwikkeld en toegepast voor de bepaling van NO-NO₂ omzetting op korte afstanden, de genoemde vertraging ontbreekt uiteraard. Hov (1981) en Seigneur (1981) geven beiden een beschrijving van een chemisch reactief pluimmodel waarbij een onderverdeling is gemaakt in de dwarsrichting van de pluim, de pluim is wel homogeen gemengd in de verticale richting. De beide modellen zijn vooral bedoeld voor de wat grotere afstanden (> 10 km) maar zijn in principe wel geschikt om inhomogene menging te beschrijven.

Door Blanks (1980) en Eschenroeder (1982) wordt een "homogeen" Gaussisch pluimmodel beschreven dat sterk lijkt op de eerdere publikaties en ideeën van Peters (1977). Ook hier wordt uitgegaan van de verspreiding van inerte "effectieve" stoffen, waarbij na de verspreidingsberekening een chemische berekening plaatsvindt, gebaseerd op het foto-stationaire evenwicht; zie ook hoofdstuk 5.

$$\frac{[\text{NO}][\text{O}_3]}{[\text{NO}_2]} = K = \frac{k_1}{k} \quad (1)$$

In een groot aantal publikaties wordt er op gewezen dat op korte afstand vanaf het emissiepunt er geen sprake is van foto-stationair evenwicht, zie bijvoorbeeld Bilger (1978), Elshout (1983).

Deze gemeten afwijking van het foto-stationaire evenwicht wordt geweten aan het inhomogene mengproces, de concentratiefluctuatieve invloed, de invloed van O_2 -reacties en de middelingstijd van de meetapparatuur (zie ook hoofdstuk 5). Carmichael en Peters (1981) hebben, gebruik makend van reeds eerder ontwikkelde chemische modellen, een pluimmodel gemaakt waarmee de afwijking van het foto-stationaire evenwicht kan worden verklaard. Vergelijkbare verklaringen zijn opgesteld door Brubaker (1982) en Janssen (1984). Deze modellen en verklaringen zijn echter uitsluitend descriptief, en bevatten een aantal nader (empirisch) te bepalen parameters, zoals een verhouding van het gemengde/ongemengd deel van de pluim. Door Janssen (1984a, b) is een gemodificeerde vorm van het model van Carmichael en Peters ontwikkeld. Met dit model, en een geschikte keuze van de te fitten parameters, wordt een goede overeenstemming verkregen tussen berekende en gemeten concentraties. Dit model is, zoals gezegd, beschrijvend en niet voorspellend, en is daarmee niet geschikt om in voorkomende situaties NO/NO_2 -grondconcentraties te bepalen.

Idealiter zou een chemisch reactief pluimmodel voor $NO-NO_2$ omzetting op relatief korte afstand van het emissiepunt het inhomogene mengproces dienen te bevatten (bijvoorbeeld via "onderverdeling" van de pluimprofielen), rekening dienen te houden met concentratiefluctuaties (via turbulentie-theorieën) alsmede met instantane pluimafmetingen (via definiëring van instantane dispersiecoëfficiënten). Tevens zou het model ieder willekeurig niet-lineair chemisch reactiemechanisme moeten kunnen bevatten zodat in ieder geval naast de O_3 -omzetting de invloed van O_2 -omzetting kan worden bepaald. Uit het hierboven gegeven korte literatuuroverzicht mag duidelijk zijn dat er op dit moment nog geen praktisch toepasbaar model bestaat dat aan al deze eisen voldoet. Het in hoofdstuk 5 beschreven voorgestelde chemisch reactieve pluimmodel draagt dus noodzakelijkerwijs een compromiskarakter en dient derhalve als een - tijdelijke - tussenoplossing te worden gezien.

3. OVERZICHT LITERATUUR MET BETREKKING TOT MODELLERING VAN DROGE DEPOSITIE

3.1 Inleiding

Een rookpluim van een (kolengestookte) installatie bevat een mengsel van verschillende gassen. Dichtbij de pijp bestaat de pluim hoofdzakelijk uit NO en verder stroomafwaarts uit een mengsel van NO en NO₂, waarbij NO₂ ontstaan is uit chemische omzetting van NO. Wanneer nu een pluim de bodem raakt worden de gassen geabsorbeerd, zodat een concentratie grenslaag boven het oppervlak gevormd wordt. Deze absorptie door de bodem wordt droge depositie genoemd. Er zijn verschillende modellen ontwikkeld om de droge depositie in te passen in een Gaussisch pluimmodel. De theoretische grondslag voor de modellen is de diffusievergelijking.

Voor de verspreiding van gasvormige luchtverontreinigingen in de atmosferische grenslaag wordt de stationaire diffusievergelijking als volgt geschreven:

$$U \frac{\partial C}{\partial x} = \frac{\partial}{\partial y} \left(K_y \frac{\partial C}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(K_z \frac{\partial C}{\partial z} \right) \quad (3.1)$$

waarin K_y en K_z turbulente diffusiecoëfficiënten zijn. De droge depositie wordt in rekening gebracht door de volgende randvoorwaarde:

$$F_d = \left(K_z \frac{\partial C}{\partial z} \right)_{z = z_d} = V_d \cdot C(x, y, z_d) \quad (3.2)$$

De flux naar de bodem wordt benaderd door het produkt van een depositiesnelheid en de concentratie op een hoogte z_d . Zonder depositie is er een laag bij het oppervlak waarin de concentratie en dus ook de flux door deze laag, onafhankelijk is van de hoogte. z_d wordt in deze laag gekozen en de depositiesnelheid V_d dient op hoogte z_d bepaald (gemeten) te worden. Een gebruikelijke waarde voor z_d is 10 m.

De diffusievergelijking (3.1) met randvoorwaarde (3.2) kan zowel numeriek als analytisch opgelost worden. Analytische oplossingen zijn

alleen te verkrijgen op basis van verregaande vereenvoudigingen voor het verloop met de hoogte van windsnelheid en transportcoëfficiënten. Aangezien de formulering van het Gaussisch pluimmodel onder bepaalde voorwaarden is afgeleid uit de diffusievergelijking (3.1) wordt de droge depositie door een aantal auteurs in rekening gebracht met behulp van één of meerdere correctietermen op het Gaussisch pluimmodel, waarin de invloed van de bodem wordt gesimuleerd middels spiegelbronnen. Het principe van de spiegelbron is geïllustreerd in figuur 3.1A aan de hand van het standaard Gaussisch pluimmodel.

3.2 Overzicht van de bestaande modellen

In deze paragraaf wordt een kort overzicht gegeven van de verschillende gebruikte modellen voor het in rekening brengen van de invloed van depositie op de concentratie $C(x, y, z)$ van gasvormige luchtverontreinigingen.

3.2.1 Gedeeltelijke reflectie ("partial reflection")

De "partial reflection" modellen gebruiken het spiegelbronconcept. De bronsterkte van de spiegelbron is een functie van de afstand tot de bron (zie figuur 3.1B), dat wil zeggen:

$$C(x, y, z) = C(x, y, z)_{\text{bron}} + \alpha(x) C(x, y, z)_{\text{spiegelbron}} \quad (3.3)$$

Voor de depositieflux wordt geschreven:

$$F_d = V_d \cdot C(x, y, 0) \quad (3.4)$$

De massabalans (bronsterke = integratie over de pluim in plaats x minus de totale depositie tot aan x) wordt vervolgens gebruikt om de factor $\alpha(x)$ te berekenen. Er zijn vele varianten op deze methode.

Overcamp (1976) geeft een methode om $\alpha(x)$ te bepalen Yanicke (1983; figuur 3.1C) volgt de aanpak van Overcamp maar geeft de pluimen van bron en spiegelbron een neerwaarts gerichte snelheid gelijk aan de depositiesnelheid. De pluimas loopt evenwijdig aan

de resultante van windsnelheid en depositiesnelheid. De pluim van de spiegelbron bereikt de bodem dan op een afstand x_2 die groter is dan de afstand x_1 waarop de pluim van de bron de bodem raakt. De bronsterkte van de spiegelbron is een functie van de afstand x . Dit model is vooral bedoeld om de depositie van vaste stoffen, waarvan de depositiesnelheid veel groter is dan van gasvormige stoffen, te beschrijven.

Tadmor et al. (1977) passen reflectiemanipulaties toe en dit geeft voor gassen hetzelfde resultaat als gevonden door Overcamp.

3.2.2 Bronsterktereductie ("source depletion")

Bronsterkte-reductiemethoden brengen de invloed van depositie in rekening door de bronsterkte van zowel de werkelijke als de spiegelbron te laten afnemen met toenemende afstand tot de bron. De afname van de bronsterkte wordt bepaald door te berekenen hoeveel materiaal er uit de pluim door droge depositie is verwijderd. De droge depositie wordt hierbij berekend door de depositiesnelheid V_d te vermenigvuldigen met de werkelijke grondconcentratie, dat wil zeggen de concentratie in de pluim waarbij depositie is opgetreden.

Deze methoden hebben als bezwaar dat de reductie van de concentratie ten gevolge van de depositie op de lokatie x over de gehele pluim in gelijke mate optreedt. In werkelijkheid is de concentratie het meest afgenomen daar waar ook de depositie optreedt, dat wil zeggen bij de bodem.

De hiervoor geïntroduceerde fout wordt kleiner naarmate de pluimhoogte en pluimafmetingen kleiner zijn.

De bronsterkte-reductiemethode is uitgewerkt voor toepassing in het Gaussisch pluimmodel door onder andere Van der Hoven (1968), Tadmor (1971) en Moore (1979).

Binnen de klasse van bronsterkte-reductiemethoden zijn subklassen te onderscheiden:

A. Bronsterktereductie

Deze "source depletion" methoden bepalen de depositie door invoering van een bronsterkte-reductiefactor $Q(x)/Q$ die stroomafwaarts afneemt.

B. Correctie volgens Horst (1982)

Horst (1982) ontwikkelt een variant op de bronsterkte reductiemethode waarbij twee modificaties op het Gaussisch Pluimmodel worden toegepast.

De volgens het Gaussisch pluimmodel berekende concentratie wordt vermenigvuldigd met de bronsterkte reductiefactor $Q(x)/Q$ (analoog aan methode A) en met een profielcorrectiefactor $P(x,z)$. Deze profielcorrectiefactor houdt rekening met het feit dat bij de bodem depletie optreedt en corrigeert daarmee de vorm van het verticale profiel (figuur 3.1D).

3.2.3 "Surface depletion" methoden

Geconstateerd is dat bij de bronsterkte reductiemethode het door depositie opgetreden materiaalverlies direct over de gehele pluim verdeeld wordt; alsof het materiaalverlies bij de bron opgetreden is.

Omdat het materiaalverlies in werkelijkheid aan de bodem optreedt is door Horst (1977) de "surface depletion" methode ontwikkeld. Centraal hierbij is dat de depositie in het punt $(\xi, \eta, 0)$ de concentraties op een windafwaarts gelegen punt (x, y, z) beïnvloedt.

Deze beïnvloeding wordt gemodelleerd door aan te nemen dat het op punt $(\xi, \eta, 0)$ opgetreden materiaalverlies als "materiaal deficit" verspreidt. De bodem wordt derhalve belegd met puntbronnen (putten) voor materiaalverlies waarvan de bronsterkte een functie van x en y is (figuur 3.1E).

Concentraties kunnen alleen berekend worden door middel van iteratieve integraties die in het algemeen alleen numeriek uit te voeren zijn. Berekeningen met het "surface depletion" model zijn daarmee een orde complexer dan bijvoorbeeld met het "source depletion" model. De rekenkosten liggen een factor 20 tot 30 hoger (Horst (1977), Yamartino (1981)).

Door Yamartino (1981) wordt gewerkt aan modelvarianten waarbij de iteratieve numerieke integratie vervangen kan worden door één

enkele integratie. De door Yamartino (1981) gegeven relaties zijn echter vooralsnog alleen geldig voor een exponentiële groei van σ_z met x .

Toepassing van het "surface depletion" model verdient de voorkeur boven het "source depletion" model. Desondanks heeft Corbett (1981) laten zien dat het "source depletion" model onder bepaalde voorwaarden voldoende betrouwbaar is.

3.2.4 Oplossingen diffusievergelijking

Analytische oplossingen van de diffusievergelijking zijn door verschillende auteurs gegeven voor verschillende combinaties van beperkende voorwaarden. De meest universele oplossing geeft Ermak (1977). Zijn oplossing kan in dezelfde vorm geschreven worden als het Gaussisch pluimmodel en er kan bovendien van de beschikbare empirische informatie over de standaarddeviaties σ_y en σ_z gebruik gemaakt worden.

Llewelyn (1983) volgt in grote lijnen dezelfde aanpak als Ermak (1977) maar gaat uit van een meer complete vorm van de diffusievergelijking. Zijn complete oplossing houdt ook rekening met "along wind diffusion" (van belang bij lage windsnelheden) en met eerste orde chemische omzettingen.

Rao (1982) heeft aan analytische oplossingen van de diffusievergelijking voor stofdeeltjes gewerkt, vergelijkbaar met die van Ermak (1977). De oplossing is geschreven in de vorm van het Gaussisch Pluimmodel en depositie- en zwaartekrachteffecten zijn afzonderlijk gemodelleerd. Voor gassen moet de valsnelheid gelijk nul genomen worden en speelt slechts de depositiesnelheid een rol.

3.2.5 Reflectie manipulatie met een lijnbron

Door Davis en Metz (1978) is een methode voorgesteld waarbij de primaire pluim gecombineerd wordt met een secundaire lijnbron evenwijdig aan de pluimas op de hoogte $z = z_d$ waar de depositie "plaatsvindt". De bronsterkte van de secundaire lijnbron is een functie van de afstand tot de bron en dient zodanig te variëren dat voor elke x de depositie correct is en beschreven wordt door

de vergelijking:

$$F_d = V_d \cdot C(x, y, z_d) \quad (3.5)$$

De formulering van het model is echter bijzonder complex hetgeen ten dele veroorzaakt wordt doordat de lijnbron niet op $z = 0$ maar op $z = z_d$ gesitueerd is.

3.3 Beoordeling van de droge depositiemodellen

De beoordeling van de in paragraaf 3.2 beschreven droge depositiemodellen kan slechts plaatsvinden met behulp van criteria die voor ieder specifiek probleem geformuleerd dienen te worden. In dit geval zijn de eisen aan het model te stellen:

1. Het model dient aan te sluiten bij het voor de dispersie gebruikte Gaussisch pluimmodel (zie hoofdstuk 5).
2. Het model moet geschikt zijn voor gasvormige depositie dat wil zeggen dat een depositiesnelheid invoergrootte van het model is.
3. Het model dient eenvoudig te zijn met betrekking tot computerprogramming.

Kwalitatief gezien geeft de "surface depletion" methode de droge depositie het meest realistisch weer. Het model voldoet echter niet aan de derde eis. Het model van Horst (1982) voldoet aan alle gestelde eisen en is een zeer goede benadering van de "surface depletion" methode en is daarom voor het chemisch reactieve pluimmodel gebruikt. De methode wordt besproken in paragraaf 3.4. Een goed alternatief zijn de modelvarianten van Yamartino (1981) maar deze zijn vooralsnog niet beschikbaar voor gebruik met een Gaussisch pluimmodel.

3.4 Het gebruikte model van Horst (1982)

Horst (1982) geeft twee aanpassingen op het Gaussisch pluimmodel:

$$C_d(x, y, z) = \frac{Q(x)}{Q} P(x, z) \cdot C(x, y, z) \quad (3.6)$$

De bronsterkte wordt gereduceerd met toenemende afstand tot de bron om het materiaalverlies van de pluim door droge depositie te compenseren. Het Gaussische concentratieprofiel wordt aangepast met een profielfunctie $P(x, z)$ om de verandering in verticale verdeling, veroorzaakt door het materiaalverlies aan het oppervlak, in rekening te brengen. Aangenomen is dat droge depositie geen invloed heeft op de horizontale (y -richting) verdeling.

Er moet dus gelden (continuïteit):

$$\frac{d Q(x)}{dx} = - V_d \cdot C_d(x, y, z_d) \quad (3.7)$$

Waarbij de depositieflux is weergegeven als het produkt van een depositiesnelheid en de concentratie op een hoogte z_d dicht bij de wand. Uit (3.6) en (3.7) volgt:

$$\frac{Q(x)}{Q} = \exp \left\{ - \int_0^x V_d \cdot P(x, z_d) \cdot C(x, y, z_d) dx \right\} \quad (3.8)$$

Het Gaussische pluimmodel voor een puntbron met bronsterkte Q op hoogte H is:

$$C(x, y, z; H) = \frac{Qe^{-\frac{1}{2} \left(\frac{y}{\sigma_y}\right)^2}}{2\pi U \sigma_y \sigma_z} \left\{ \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{H-z}{\sigma_z}\right)^2 \right] + \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{H+z}{\sigma_z}\right)^2 \right] \right\} \quad (3.9)$$

Met de aanname dat de emissiehoogte $H \gg z_d$ en vergelijking (3.9) wordt de bronsterktereductie $Q(x)/Q$:

$$\frac{Q(x)}{Q} = \exp \left\{ - \frac{V_d}{U} \sqrt{\frac{2}{\pi}} x \int_0^{\frac{z_d}{\sigma_z}} \frac{P(x, z_d)}{\sigma_z} \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{H}{\sigma_z}\right)^2 \right] dx \right\} \quad (3.10)$$

Voor de profielcorrectie wordt het concentratieprofiel gerelateerd aan de depositieflux die in de wandlaag onafhankelijk van de hoogte verondersteld is:

$$V_d C_d(x, z_d) = K(z) \frac{\partial C_d(x, z)}{\partial z} \quad (3.11)$$

$K(z)$ is een turbulente diffusiecoëfficiënt.

Integratie van (3.11) met randvoorwaarde:

$$C_d(x, z) = C_d(x, z_d) \text{ voor } z = z_d \quad (3.11a)$$

levert:

$$C_d(x, z) = C_d(x, z_d) \left\{ 1 + V_d R(z, z_d) \right\} \quad (3.12)$$

waarin $R(z, z_d)$ de atmosferische weerstand tegen verticaal transport is volgens:

$$R(z, z_d) = \int_{z_d}^z \frac{dz}{K(z)} \quad (3.12a)$$

Substitutie van (3.6) in (3.12) geeft:

$$P(x, z) \cdot C(x, y, z) = P(x, z_d) \cdot C(x, y, z_d) \left\{ 1 + V_d R(z, z_d) \right\} \quad (3.13)$$

Met de aanname dat $(C(x, y, z))_{\text{wand}} = C(x, y, z_d)$ volgt:

$$P(x, z) = P(x, z_d) \left\{ 1 + V_d R(z, z_d) \right\} \quad (3.14)$$

De profielcorrectie heeft geen invloed op de continuïteitsvergelijking, zodat moet gelden:

$$\int_0^{\sim} \int_{\sim} U C(x, y, z) P(x, z) dy dz = 1 \quad (3.15)$$

Substitutie van (3.14) in (3.15) levert:

$$P(x, z_d) = \frac{1}{1 + V_d \int_0^{\sim} \int_{\sim} U C(x, y, z, H) R(z, z_d) dy dz} \quad (3.16)$$

Wanneer $R(z, z_d)$ kan worden bepaald, is met (3.9), (3.14) en (3.16) de profielcorrectie bekend.

Voor een passieve contaminant en neutrale atmosferische stabiliteit is de turbulente diffusiecoëfficiënt $K(z)$ evenredig met de hoogte z , zodat vergelijking (3.12a) overgaat in:

$$R(z, z_d) \sim \int_{z_d}^z \frac{dz}{z_d} = \ln z/z_d \quad (3.17)$$

Uit praktische overweging wordt $K(z)$ als functie van σ_z geschreven. Dit is mogelijk door de oplossing van de advektie-diffusie-vergelijking voor een constante diffusiecoëfficiënt te beschouwen. De oplossing voor een puntbron is een Gaussische pluim met:

$$\sigma_z \frac{d\sigma_z}{dx} = \frac{K}{U} \quad (3.18)$$

Met (3.12a) en $\sigma_z = ax^n$ levert dit de profielcorrectie en daarmee ook de bronsterktereductie.

$$P(x, z_d) = \left\{ 1 + \frac{V_d}{U} \sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{1}{a(1-n)} \left(\sqrt{\frac{\pi}{2}} \frac{1}{a} \right)^m \left[\frac{(\sqrt{2} \sigma_z)^m}{\sqrt{\pi}} \Gamma\left(\frac{1}{2n}\right) - z_d^m \right] \right\}^{-1} \quad (3.19)$$

4. INVENTARISATIE VAN BUITENMETINGEN EN WINDTUNNELRESULTATEN

Een inventarisatie van de in de literatuur beschreven metingen naar de oxidatie van NO in rookpluimen is uitgevoerd met het oog op het testen van chemische reactieve pluimmodellen (Vermeulen, 1983).

Pluimen kunnen afkomstig zijn van verschillende bronnen zoals bijvoorbeeld compressorstations, steden, bosbranden en verkeerswegen. De toch wel complexe emissies van de genoemde voorbeelden zijn echter niet beschouwd vanwege de afwijkende modellering ten opzichte van pluimen afkomstig uit een hoge schoorsteen van met name elektriciteitscentrales. De inventarisatie is dan ook beperkt tot deze laatste categorie. Een tweede beperking is de beschikbaarheid van instituutsverslagen en "data reports" behorende bij de vaak veel beknoptere publikaties in de open literatuur.

Na een uitgebreide literatuurstudie zijn rookpluimmetingen bij 19 centrales gevonden (tabel 4.1). Voor de beoordeling van de geschiktheid van een meetcampagne om te dienen als toetsingsmateriaal voor een chemische reactief pluimmodel zijn de volgende criteria gehanteerd:

- Volledigheid van de documentatie

Essentieel zijn windsnelheid, ozonconcentratie van de omgevingslucht en de dispersiecondities. Grootheden om reactieconstanten te bepalen, zoals bijvoorbeeld temperatuur en lichtintensiteit dienen in ieder geval bij benadering bekend te zijn.

- Bruikbaarheid van de meetgegevens

Aangezien de evaluatie van de modellen gebaseerd is op gemiddelde concentraties zijn slechts metingen die over meerdere traversen per meetdoorsnede van de pluim gemiddeld zijn toepasbaar.

- Geen chemische complexe omgevingslucht

Chemisch complexe situaties, bijvoorbeeld interactie van de schoorsteenpluim met een stadspluim, komen niet in aanmerking.

- Stationair zijn van de meteorologische condities

Bijzondere meteorologische condities (zoals instationaire verschijnselen bijvoorbeeld fronten) zijn alleen toelaatbaar als de gevolgen afgeschat kunnen worden door de toepassing van afwijkende dispersieparameters. De pluimafmetingen dienen dan bekend te zijn.

Op grond van bovenstaande criteria zijn een aantal meetcampagnes geselecteerd die in principe in aanmerking komen als toetsingsmateriaal voor een chemisch reactief pluimmodel. Tabel 4.2 geeft een overzicht van deze metingen. Het aantal afzonderlijke pluimmetingen bedraagt ongeveer 60. Een verdere selectie heeft plaatsgevonden op grond van gedetailleerde beschouwing van de metingen. De "beste" metingen (op grond van verschillende criteria voor iedere meting) zijn geselecteerd. Om een zo breed mogelijke range van parameters (stabiliteit, windsnelheid, ozonconcentratie) te verkrijgen is het aantal geschikte metingen verder teruggebracht tot 27. Uit deze 27 metingen zijn 8 "test cases" voor het model gekozen. Een negende "test case" vormt één van de door MT-TNO (Bultjes, 1981) uitgevoerde windtunnelproeven met chemisch reactieve pluim.

De resulterende 9 test cases die gebruikt worden om het chemisch reactieve pluimmodel te testen zijn in tabel 4.3 bijeengezet. De exactie invoergegevens voor het model worden besproken in hoofdstuk 6 en zijn te vinden in tabel 6.1.

Tabel 4.1 Centrales waar pluimmetingen zijn uitgevoerd.

Naam centrale	Lokatie	Uitvoerder/ project
Centralia	USA	EPRI
Claus	Nederland	KEMA
Colbert	Pride, USA	TVA
Cunningham	Hobbs, USA	EPRI
Flevo	Nederland	KEMA
Four Corners	Farmington, USA	EPRI
Labadie	USA	EPA/MISTT
Maasvlakte	Nederland	KEMA
Morgantown	USA	
Nanticoke	Canada	Ontario-Hydro
Navajo	Page, USA	EPA/VISTTA
Northport	USA	BNL
Oak Creek	USA	DOE/MAP3S
Staudinger	Duitsland	UBA
Turbigo	Italië	
Waalhaven	Nederland	KEMA
Widows Creek	Stevenson, USA	TVA
Wilhelmshafen	Duitsland	KEMA
Wilkes	Jefferson, USA	EPRI

Tabel 4.2 Metingen die in aanmerking komen als "test-case".

Centrale	O ₃ achter- grond ppb	Stabiliteit	Afstanden	Opmerkingen
Flevo	35 - 55	≅ D	tot 20 km	
Four-Corners	30 - 60	variabel (A - D)	tot enkele tientallen km	Complexe meteorologische situatie, echter goed gedocumenteerd.
Maasvlakte	15 - 125	B - D	tot 4.4 km	
Nanticoke	60 - 110	bijzonder stabiel	tot 93 km	Bijzondere situatie (pluim boven meer), pluimafmetingen bekend.
Navajo	31 - 44	E - D	tot 31 km	Complexe meteorologische situatie, echter goed gedocumenteerd.
Widows Creek	60 - 80	A - B	tot 3.3 km of tot 70 km	Complexe topografie.
Wilhelmshafen	35 - 40	≅ C	tot 8.5 km	

Tabel 4.3 Test cases voor het chemisch reactief pluimmodel.

Test case	Centrale	Datum	
I	Flevo	27- 4-1982	
II	Flevo	28- 4-1982	
III	Maasvlakte	17- 8-1976	
IV	Wilhelmshafen	4- 7-1979	
V	Maasvlakte	30- 8-1978	
VI	Flevo	23- 4-1980	
VII A	Nanticoke	18-11-1975	ochtend
VII B	"	18-11-1975	middag
VIII A	Nanticoke	19-11-1975	ochtend
VIII B	"	19-11-1975	middag
IX	TNO-windtunnel	1981	

5. BESCHRIJVING VAN HET VOORGESTELDE CHEMISCH REACTIEVE PLUIMMODEL

5.1 Het voorgestelde model

Het voorgestelde chemisch reactieve pluimmodel is schematisch weergegeven in figuur 5.1. Het model is een koppeling van een dispersie-, droge depositie- en chemiemodel.

Het Gaussisch pluimmodel is gebruikt als basis-dispersiemodel. Het berekent de verspreiding van een inert gas (hier NO_x) en neemt de volgende invloedsfactoren in de berekening mee:

- de bronsterkte Q (kg/s);
- de effectieve bronhoogte H (m);
- de windsnelheid U op hoogte H (m/s);
- de dikte L van de menglaag van de atmosferische grenslaag (m);
- de atmosferische stabiliteit;
- de lokale situatie (bodemruwheid).

Er wordt een stationaire homogene turbulente atmosferische grenslaag en een continue bron verondersteld. Hiermee wordt afgeleid dat de concentratieverdeling in de pluim loodrecht op zijn lengteas Gaussisch is. De gemiddelde concentratie in een willekeurig punt stroomafwaarts van de bron is dan eenvoudig te berekenen.

Met dit Gaussisch pluimmodel (GPM) is dus de gemiddelde NO_x -concentratieverdeling van een bron die NO_x uitstoot te bepalen. Echter in tegenstelling tot NO_x zijn NO en NO_2 niet inert. Bovendien is de depositiesnelheid verschillend. Het beschreven model van Horst (paragraaf 3.3) voor droge depositie heeft de depositiesnelheid als invoergrootte, zodat het probleem wat voor depositiesnelheid NO_x heeft zich aandient. De voor de hand liggende en eenvoudigste oplossing om deze evenredig met de gemiddelde verhouding NO_2/NO te kiezen is gebruikt. De met behulp van het Gaussisch pluimmodel berekende NO_x -concentratie wordt hiermee voor droge depositie gecorrigeerd en dient vervolgens als invoergrootte voor het chemiemodel.

De belangrijkste reacties van NO_x zijn:



De reactiesnelheid van reactie (5.3) is evenredig met het kwadraat van de NO-concentratie. De evenredigheidsconstante is zodanig dat de bijdrage van deze reactie aan de NO_2 -produktie slechts van belang is bij hoge NO-concentraties, dus op zeer geringe afstand tot de bron ($x < 1$ km). Deze reactie is dan ook niet in het chemie-model vervat. Slechts indien ook inhomogene menging wordt beschouwd kan de uit metingen bepaalde relatief grote invloed van O_2 (ca. 5-20%) worden verklaard (zie Elshout (1984), Janssen (1984)). Het model beschouwt de reacties (5.1) en (5.2) waarin k en k_1 de reactieconstanten zijn, te bepalen uit:

$$k = 1400 \exp(-1200/T) \quad [\text{ppm}^{-1} \text{ min}^{-1}] \quad (5.4)$$

met T: omgevingstemperatuur [K]

$$k_1 = 0,004 I \quad [\text{min}^{-1}] \quad (5.5)$$

met I: UV-lichtintensiteit [W/m^2]

Als er evenwicht tussen de reacties (5.1) en (5.2) is geldt de evenwichtsvoorwaarde (fotostationaire toestand; Leighton, 1961):

$$\frac{[\text{NO}] [\text{O}_3]}{[\text{NO}_2]} = \frac{k_1}{k} = K \quad (5.6)$$

Bovendien gelden altijd de continuïteitsvoorwaarden voor N en O, mits slechts de relaties (5.1) en (5.2) beschouwd worden, in ieder punt:

$$[\text{NO}_x] = [\text{NO}] + [\text{NO}_2] = \text{constant} \quad (5.7)$$

$$\text{Ox} = [\text{NO}_2] + [\text{O}_3] = \text{constant} \quad (5.8)$$

Waarin Ox staat voor oxidantniveau. Met behulp van de laatste 3

vergelijkingen zijn in ieder punt nu de $[NO]$, $[NO_2]$ en $[O_3]$ concentratie bekend:

$$[NO_2] = \frac{1}{2} \left\{ B \pm \sqrt{(B^2 - 4 \cdot O_x \cdot [NO_x])} \right\}_{\min.} \quad (5.9)a$$

$$\text{met } B = [NO_x] + O_x + K$$

$$[NO] = [NO_x] - [NO_2] \quad (5.9)b$$

$$[O_3] = O_x - [NO_2] \quad (5.9)c$$

Stikstofoxiden afkomstig van grote installaties bestaan voor 95-98% uit NO, zodat zich in de pluim direct geloosd NO_2 bevindt. Dit draagt bij tot een verhoging van het oxidantniveau met een fractie p van de NO_x -concentratie bepaald met het Gaussisch pluimmodel. Voor berekeningen is het oxidantniveau (5.8):

$$O_x = ([NO_2] + [O_3])_{\text{omgeving}} + p \cdot [NO_x]_{\text{GPM}} \quad (5.10)$$

Het model gaat uit van lokaal evenwicht in ieder punt van de pluim en gebruikt als invoergrootheden het oxidantniveau O_x , $[NO_x]$ en de verhouding $K = k_1/k$.

Er van uitgaande dat het GPM de $[NO_x]$ goed voorspelt behoeven het oxidantniveau en de fotostationaire toestand nadere toelichting. Beide zijn afhankelijk van de turbulente diffusie van ozon in de pluim. De vergelijkingen (5.6) en (5.10) zijn exact als volledige menging optreedt en de beide chemische reacties oneindig snel verlopen. Dit is niet het geval en de ozonconcentratie wordt door de omgevingsconcentratie in (5.10) te nemen te hoog geschat. De $[NO_2]_{\text{omgeving}}$ in (5.10) daarentegen te laag, omdat deze bij alle berekeningen verwaarloosd is.

Het reactieevenwicht (5.6) is geldig als de tijdschaal van de reacties veel kleiner is dan de tijdschaal van de turbulente diffusie. De interactie van een volume-elementje met zijn omgeving is dan verwaarloosbaar. Aangezien in een pluim NO en O_3 niet homogeen verdeeld zijn maar zich in verschillende grote "lobben" bevinden, wordt de invloed van de turbulentie op de samenstelling van het volume-elementje bepaald door de grote wervels. Dus

$$\tau_{\text{chemisch}} < \tau_{\text{turbulentie}} \quad (5.11)$$

Een maat voor deze grote wervels is de standaardafwijking σ_z loodrecht op de stromingsrichting en loodrecht op het oppervlak. Een karakteristieke maat voor de snelheidsfluctuaties is ongeveer $1/30$ van de gemiddelde windsnelheid (Tennekes & Lumley, 1972), zodat:

$$\tau_{\text{turbulentie}} \sim \frac{2\sigma_z}{\bar{U}/30} \sim 0 \text{ (1 } \div \text{ 30 min)} \quad (5.12)a)$$

Een schatting voor de chemische tijdschaal volgt uit de reacties (5.1) en (5.2):

$$\tau_{\text{NO}} \sim \frac{1}{k [\text{O}_3]} \sim 0 \text{ (1 min.)} \quad (5.12)b)$$

$$\tau_{\text{NO}_2} \sim \frac{1}{k_1} \sim 0 \text{ (2}\frac{1}{2} \text{ min.)} \quad (5.12)c)$$

Dus op korte afstand tot de bron (kleine σ_z) zal aan voorwaarde (5.11) niet voldaan worden. Er stelt zich geen chemisch evenwicht in en de voorspelde NO_2 -concentratie zal te hoog zijn.

Uit de beschrijving van het chemisch reactieve pluimmodel blijkt dat er gebruik gemaakt is van een depositiesnelheid voor NO_x in plaats van afzonderlijke modellering met betrekking tot droge depositie van NO en NO_2 . Deze werkwijze is gekozen om juiste invoer van de NO_x -concentratie voor het chemiemodel te bewerkstelligen. Afzonderlijke correctie voor droge depositie van NO en NO_2 is slechts mogelijk na het doorlopen van het chemiemodel, zodat daar gerekend zou worden met een te hoge NO_x -concentratie als invoergrootheid. De bepaling van een depositiesnelheid voor NO_x wordt besproken in paragraaf 6.1.

5.2 Een zeer eenvoudig model

Een zeer eenvoudig chemiemodel kan opgesteld worden als slechts reactie (5.1) wordt beschouwd. Dit levert ten gevolge van de chemische reactie de volgende vergelijkingen:

$$\frac{d [\text{NO}_2]}{dt} = - \frac{d [\text{NO}]}{dt} = k [\text{NO}] [\text{O}_3] \quad (5.13)a)$$

$$\frac{d [\text{NO}_x]}{dt} = 0 \quad (5.13)b)$$

Vergelijking (5.13) heeft als oplossingen, met invoering van de chemische tijdschaal $\tau_c = 1/k [O_3]$:

$$[NO] = [NO]_{t=0} e^{-t/\tau_c} \quad (5.14)a)$$

$$[NO_x] = \text{constant} \quad (5.14)b)$$

Vergelijking (5.14) geldt voor de aflopende reactie in een afgesloten goed gemengde ruimte. In een pluim echter nemen alle concentraties af met voortschrijdende tijd. De NO-concentratie neemt dus af ten gevolge van (5.14)a en pluimdispersie, de NO_x -concentratie slechts ten gevolge van de pluimdispersie. Voor de verhouding $[NO]/[NO_x]$ geldt:

$$\frac{d}{dt} \frac{[NO]}{[NO_x]} = \frac{1}{[NO_x]} \frac{d[NO]}{dt} - \frac{[NO]}{[NO_x]^2} \frac{d[NO_x]}{dt} \quad (5.15)$$

Met de aanname dat de concentratiegradiënt ten gevolge van de pluimdispersie hetzelfde is voor NO als voor NO_x :

$$\left(\frac{d}{dt} \frac{[NO]}{[NO_x]}\right)_d = \left(\frac{d}{dt} \frac{[NO_x]}{[NO_x]}\right)_d \quad (5.16)$$

en invoering van een tijdschaal voor de pluimdispersie τ_d volgens:

$$\frac{1}{\tau_d} = - \frac{1}{[NO_x]} \frac{d[NO_x]}{dt} \quad (5.17)$$

Met behulp van (5.13), (5.16), (5.17) kan (5.15) geschreven worden als:

$$\frac{d}{dt} \frac{[NO]}{[NO_x]} = - \left\{ \left(\frac{1}{\tau_c} - \frac{1}{\tau_d} \right) \cdot \frac{[NO]}{[NO_x]} + \frac{1}{\tau_d} \right\} \quad (5.18)$$

Indien gesteld wordt $\frac{\tau_c}{\tau_d} \ll \frac{[NO]}{[NO_x]}$ is een eenvoudige oplossing voor (5.18):

$$\frac{[NO]}{[NO_x]} = \frac{[NO]}{[NO_x]_{t=0}} e^{-t/\tau_c} \quad (5.19)$$

Het eenvoudige model (5.19) is geldig voor een snelle reactie, snel ten opzichte van de dispersie. Dicht bij de bron in τ_d klein zodat het model daar slecht zal voorspellen. Voor $t \rightarrow \infty$ voorspelt (5.19) goed, ondanks dat aan de voorwaarde niet voldaan wordt. De omzetting van NO naar NO₂ is dan volledig.

Omdat slechts reactie (5.1) in dit eenvoudige model beschouwd is zullen de resultaten van dit model weinig overeenkomst laten zien met de buitenmetingen. De NO/NO_x-verhouding op pluimhoogte zoals berekend met dit eenvoudige model is voor alle buitenmetingen kleiner dan 0,1 op 2 km van de bron. Slechts het windtunnelexperiment (test-case IX), waar door de afwezigheid van uv-licht reactie (5.2) inderdaad geen rol heeft gespeeld, is geschikt voor model-evaluatie. In tabel 6.3 en figuur 6.12 zijn de resultaten weergegeven. Het resultaat wordt besproken in paragraaf 6.2.

6. EVALUATIE VAN DE BEREKENINGEN

6.1 Invoergegevens

Gegevens van de in hoofdstuk 4 beschreven geselecteerde meetcampages zijn niet zonder meer geschikt om als invoer voor het model te dienen. De schoorsteenhoogte is van alle centrales bekend evenals de gemiddelde windsnelheid en ozonconcentratie tijdens de metingen. De effectieve bronhoogte (= schoorsteenhoogte + pluimstijging) en NO_x -bronsterkte echter niet. Waar nodig zijn deze geschat uit de gegevens over het geleverde elektrisch vermogen. De pluimdispersie, uitgedrukt in de standaardafwijkingen σ_y en σ_z , is afhankelijk van de atmosferische stabiliteit. De stabiliteit tijdens de metingen is voor de verschillende metingen gegeven volgens de Pasquill-klasse-aanduiding of in de vorm van de temperatuurgradiënt $\frac{dT}{dz}$. De dispersie in z-richting wordt bovendien beïnvloed door de dikte L van de menglaag. Globaal verloopt L sinusvormig met de tijd waarbij de toppen samenvallen met het midden van de dag. Bovendien is L afhankelijk van de atmosferische stabiliteit. Bij die metingen waar de menghoogte geen rol in de verticale verspreiding van de pluim heeft gespeeld is L groot (2 km) gekozen.

De reactieconstanten k en k_1 zijn geschat met behulp van de vergelijking (5.4) en (5.5).

De p-factor, zie vergelijking (5.10) geeft de hoeveelheid direct geloosd NO_2 aan als fractie van de totale NO_x uitstoot. p is op 5% gesteld.

De invoergegevens van de Nanticoke centrale vormen een geval op zich. De metingen zijn uitgevoerd naar aanleiding van vele klachten over een vieze, soms bruine, laaghangende pluim ("usually trapped in a stable layer aloft") afkomstig van de enorme kolengestookte centrale (max. 8 x 500 MW). Afgezien van de menghoogte en pluimstijging zijn de metingen bijzonder goed gedocumenteerd. De typische laaghangende pluim is waarschijnlijk het gevolg van een stabiele atmosfeer (Pasquill-klasse D-E) en dus een geringe verticale menging zodat L klein geschat is.

De NO_x -depositiesnelheid is voor alle gevallen met behulp van (6.1) geschat op 0,2 cm/s, waarbij uitgegaan is van een gemiddelde ver-

houding $[\text{NO}_2]/[\text{NO}] \simeq 2$ in de pluim met depositiesnelheden voor NO en NO_2 van respectievelijk 0 en 0,3 cm/s.

$$V_d (\text{NO}_x) = \frac{[\text{NO}_2] \cdot V_d (\text{NO}_2) + [\text{NO}] \cdot V_d (\text{NO})}{[\text{NO}_2] + [\text{NO}]} \quad (6.1)$$

De windtunnelmeting (test-case IX) is niet met het voorgestelde model doorgerekend. Aangezien de meting in het donker uitgevoerd is ($k_1 = 0$) speelt slechts reactie (5.1) een rol. Verondersteld chemisch evenwicht legt dan overal in de pluim de voorwaarde $[\text{NO}] = 0$ op, zodat ook de NO/NO_x -verhouding overal in de pluim gelijk 0 is. Op de windtunnelmeting is slechts het zeer eenvoudige model van paragraaf 5.2 van toepassing.

De resulterende invoergegevens voor het chemisch reactieve pluim-model zijn in tabel 6.1 te vinden. De invloed van een slechte schatting van de invoergegevens op de NO/NO_x -verhouding wordt besproken in de gevoeligheidsanalyse (hoofdstuk 7).

Tabel 6.1 Invoergegevens chemisch reactieve pluimmodel.

Meting [Centrale]	Waarnemers- hoogte = bronhoogte [m]	NO _x -bron- sterkte [kg/s]	meng- hoogte [m]	wind- snelheid [m/s]	σ_y [m]	σ_z [m]	k- factor [ppm ⁻¹ s ⁻¹]	k ₁ [s ⁻¹]	Oxidant niveau [ppm]	p- fractie [-]
1) Flevo 27-4-'82 (vlucht 137)	300	0,2	2000	10	0,2 x ^{0,907}	0,2x ^{0,76}	0,33	0,0066	0,05	0,05
2) Flevo 28-4-'82 (vlucht 138)	400	0,14	2000	10	"	"	0,34	0,0066	0,05	0,03
3) Maasvlakte 17-8-'76 (vlucht 25)	500	0,11	2000	7,5	0,33x ^{0,897}	0,22x ^{0,80}	0,33	0,0066	0,055	0,05
4) Wilhelmshafen 4-7-'79 (vlucht 79)	675	0,5	2000	10	0,2x ^{0,907}	0,2x ^{0,76}	0,34	0,0063	0,038	0,05
5) Maasvlakte 30-8-'78 (vlucht 48)	500	0,28	2000	10	0,2x ^{0,907}	0,2x ^{0,76}	0,34	0,006	0,03	0,05
6) Flevo 23-4-'80 (vlucht 88)	550	0,44	2000	7,5	"	0,21x ^{0,78}	0,31	0,006	0,055	0,05
7A) Nanticoke 18-11-'75 (ochtend)	300	1,5	400	6,3	0,275x ^{0,75}	0,044x ^{0,75}	0,38	0,005	0,063	0,05
7B) Nanticoke 18-11-'75 (middag)	300	1,5	400	8,1	"	"	"	0,0028	0,072	0,05
8A) Nanticoke 19-11-'75 (ochtend)	300	1,5	350	7,3	"	"	"	0,005	0,09	0,05
8B) Nanticoke 19-11-'75 (middag)	300	1,5	350	8,6	"	"	"	0,0043	0,114	0,05
9) TNO-windtunnel 1981	70	0,002	2000	5	0,2x ^{0,907}	0,2x ^{0,76}	0,39	0	0,01	0

6.2 Resultaten

De resultaten van de modelberekeningen met de in paragraaf 6.1 beschreven invoergegevens zijn in tabel 6.2 en in de figuren 6.1 t/m 6.10 weergegeven.

Vergelijking van berekening met meting laat zowel te hoge als te lage NO/NO_x verhoudingen op korte afstand tot de bron zien. Wel blijkt dat op grotere afstand de verhouding te laag berekend is. Berekening van de NO/NO_x verhouding voor de metingen zonder droge depositieberekening levert geen verschil op met de waarden van tabel 6.2. Dit lag in de lijn der verwachtingen omdat het effect van droge depositie vooral merkbaar is dicht bij het oppervlak en op grote afstand van de bron.

Van de 27 berekeningen vallen 7 punten buiten het betrouwbaarheidsinterval van de metingen (waar niet gegeven is $\pm 15\%$ aangehouden), oftewel 74% van de berekende punten is in goede overeenstemming met de metingen.

Tabel 6.2 Meetresultaten en berekeningen van de geselecteerde meetcampages

Meting	x [km]	$\frac{NO}{NO_x}$	$\frac{NO}{NO_x}$ model
I	2,0	$0,66 \pm 0,16$	0,65
	4,3	$0,49 \pm 0,12$	0,40
	6,5	$0,22 \pm 0,02$	0,34
II	2,0	$0,87 \pm 0,04$	0,58
	5,0	$0,60 \pm 0,08$	0,34
III	0,5	$0,86 \pm 0,09$	0,83
	0,8	$0,85 \pm 0,16$	0,73
	1,8	$0,69 \pm 0,12$	0,42
IV	0,5	$0,92 \pm 0,05$	0,94
	4,0	$0,73 \pm 0,14$	0,67
	8,5	$0,54 \pm 0,22$	0,44
V	0,6	$0,87 \pm 0,13$	0,93
	2,4	$0,76 \pm 0,09$	0,76
	3,4	$0,71 \pm 0,14$	0,66
	5,8	$0,66 \pm 0,18$	0,52
VI	3	$0,51 \pm 0,09$	0,66
	11,5	$0,37 \pm 0,06$	0,31
	21	$0,31 \pm 0,06$	0,28
VIIA	2,7	0,92	0,94
	8	0,80	0,92
B	2,7	0,95	0,94
	26	0,76	0,72
	53	0,48	0,43
VIII A	2,7	0,92	0,94
	40	0,77	0,59
B	2,7	0,87	0,94
	40	0,64	0,44

Tabel 3 Resultaten van de berekeningen voor test-case IX met het eenvoudige model van paragraaf 5.2

x [km]	$\frac{NO}{NO_x}$ meting	$\frac{NO}{NO_x}$ model
0,25	1,0	0,82
0,5	1,0	0,68
0,75	0,72	0,56
1,0	0,70	0,46
1,5	0,54	0,31
2,0	0,40	0,21
2,5	0,45	0,14

Het resultaat van de berekening van de NO/NO_x -verhouding met het zeer eenvoudige model zoals beschreven in paragraaf 5.2 voor test-case IX is in tabel 6.3 en figuur 6.11 weergegeven. De modelvoorwaarde $\tau_c/\tau_d \ll \frac{NO}{NO_x}$ komt voor deze test-case overeen met $\frac{NO}{NO_x} \cdot x \gg 2$ km.

Aan deze voorwaarde wordt nergens in de pluim voldaan. De metingen worden dan ook slecht voorspeld. Figuur 6.12 toont een vertraging van de $NO-NO_2$ -omzetting tijdens de meting ten opzichte van de modelberekening.

De verklaring is dat het model uitgaat van een geringe pluimdispersie, waarbij wel een homogene O_3 -concentratie in de pluim verondersteld is. De tijdschaal van de chemische reactie blijft constant en is omgekeerd evenredig met de O_3 -concentratie, zodat het model een te snelle reactie dicht bij de bron veronderstelt. In werkelijkheid wordt ozon vanaf de buitenkant van de pluim ingemengd. Op de pluimas neemt met toenemende afstand van de bron de ozonconcentratie toe van nul tot de omgevingsconcentratie en de tijdschaal van de reactie neemt dus evenredig af. Dichtbij de bron is de reactie dus trager dan het model veronderstelt en dit vertragingseffect is in figuur 6.12 te zien.

Duidelijk is dat het voorgestelde model met foto-stationair evenwicht een veel betere overeenstemming met metingen laat zien dan

het zeer eenvoudige model dat alleen uitgaat van de reactie met O_3 . Wel geeft het voorgestelde model te lage NO/NO_x -verhoudingen op grotere afstanden. Deze verhouding is vooral afhankelijk van de reactieconstanten en het achtergrond-oxidantniveau. Een systematisch te lage voorspelling van de NO/NO_x -verhouding op grote afstand moet dan ook in de schatting van de reactieconstanten en meting van het oxidantniveau gezocht worden. Te lage NO/NO_x voorspelling op grote afstand van de bron is het gevolg van een te hoog achtergrond-oxidantniveau en/of een te lage evenwichtsconstante K , dus te lage k_1 (te lage uv-lichtintensiteit) en/of te hoge k (te hoge pluimtemperatuur) als invoer voor het rekenmodel. Er van uitgaande dat het model op grote afstand van de bron realistische voorspellingen doet, omdat daar het fotostationair evenwicht geldt en een nagenoeg homogene ozonconcentratie in de pluim aanwezig is, kan de te laag voorspelde NO/NO_x -verhouding op grote afstand van de bron het gevolg zijn van nitraatvorming volgens de reactie:



met reactieconstante $k_2 \simeq 0,048 \text{ ppm}^{-1} \text{ min}^{-1}$

De voorwaarde voor chemisch evenwicht verandert dan in:

$$\frac{[NO] [O_3]}{[NO_2]} = K + \frac{k_2}{k} [O_3] \quad (6.3)$$

De K -waarde wordt door de nitraatvorming met ongeveer 1% verhoogd en zoals gesteld levert een hogere K -waarde een hogere NO/NO_x -verhouding op grote afstand van de bron op.

Opgemerkt moet worden dat reactie (6.2) de continuïteitsvergelijkingen (5.7) en (5.8) ongeldig maakt en dus niet zonder meer in het model opgenomen mag worden.

7. MODELBEREKENINGEN

7.1 Uitwerking voor een specifieke situatie

Met het chemisch reactief pluimmodel is de situatie van de Flevo-centrale (meetcampagne I) nader uitgewerkt. Concentraties op grondniveau zijn uitgerekend met en zonder in rekening brengen van droge depositie. Dwarsconcentratieprofielen (loodrecht op de pluimas evenwijdig aan de bodem) voor NO en NO_2 op $x = 9$ en 15 km zijn getekend in figuur 7.1. Figuur 7.2 toont het verloop in de windrichting van NO en NO_2 berekend op grondniveau. Beide figuren zijn berekend met in rekening brengen van droge depositie. Zonder droge depositieberekening wijken de figuren in het geheel niet af van de getekende. Met andere woorden voor deze situatie kan droge depositie in ieder geval t/m 50 km stroomafwaarts van de bron verwaarloosd worden.

De invloed van de depositiesnelheid V_d op de NO_x -concentratie op grondniveau is uitgewerkt in figuur 7.3, waarin voor verschillende afstanden tot de bron het dimensieloos gemaakte verschil met/zonder droge depositie is uitgezet tegen de depositiesnelheid V_d .

Een criterium of droge depositie wel dan niet verwaarloosd mag worden zou bijvoorbeeld kunnen zijn dat het effect op grondconcentraties op $x = 25$ km kleiner of gelijk 10% moet zijn. Voor deze situatie (Flevo I) betekent dit dat de depositiesnelheid voor NO_x kleiner dan $2,5$ cm/s dient te zijn.

Een voorbeeldberekening voor een situatie waarbij de invloed van droge depositie op de grondconcentratie zeker niet verwaarloosd mag worden is uitgevoerd. Een zeer extreme situatie is gekozen (figuur 7.4): een lage schoorsteen (10 m) met hoge uitstoot ($0,2$ kg/s) bij extreem stabiele atmosferische omstandigheden (F) met lage windsnelheid (5 m/s) en hoge NO_x -depositiesnelheid (1 cm/s). Bij verwaarlozing van droge depositie blijkt dan op 25 km afstand van de bron een $2,4$ x te hoge NO_x -grondconcentratie gevonden te worden.

7.2 Gevoeligheidsanalyse van het model

Om een indruk te geven wat de invloed is van de verschillende invoerparameters van het chemisch reactieve pluimmodel op de verhouding NO/NO_x (op pluimhoogte) als functie van de afstand tot de bron

is een parameterstudie uitgevoerd. Alle berekeningen hiervoor zijn variaties van één invoergrootte rond de waarde zoals gebruikt voor de modelberekening van de geselecteerde meetcampagne I (Flevo-centrale, zie tabel 6.1).

Van invloed op het verspreidingsmodel zijn de bronsterkte Q , de windsnelheid $\bar{U}$, de atmosferische stabiliteit en de pluimhoogte H . Variatie van de bronsterkte Q heeft hetzelfde effect op de verhouding NO/NO_x als (tegengestelde) variatie van de windsnelheid $\bar{U}$. Het resultaat is weergegeven in figuur 7.5. Verhoging van de bronsterkte Q (of verlaging van $\bar{U}$) heeft op grote afstand tot de bron geen invloed op de NO/NO_x -verhouding. Op korte afstand is de NO/NO_x -verhouding hoger, zoals te verwachten was omdat de beschikbare hoeveelheid ozon gelijk blijft.

De invloed van de atmosferische stabiliteit is weergegeven in figuur 7.6. De atmosferische stabiliteit wordt gemodelleerd door de dispersiecoëfficiënten σ_y en σ_z . De volgende waarden zijn gebruikt:

	Pasquill- klasse	σ_y	σ_z
onstabiel	A/B	1,5 x 0,87	0,25 x 0,9
neutraal	C/D	0,2 x 0,907	0,2 x 0,76
stabiel	E/F	0,2 x 0,9	0,12 x 0,67

Het in figuur 7.6 geschetste beeld voldoet aan de verwachtingen: in de onstabiele situatie is de menging van pluim met omgevingslucht bijzonder goed zodat een snelle omzetting van NO naar NO_2 optreedt, dus een snelle afname van de NO/NO_x -verhouding.

Variatie van de effectieve pluimhoogte H blijkt geen effect te hebben op de NO/NO_x -verhouding. Op de verschillende absolute concentraties uiteraard wel: de maximale grondconcentratie wordt lager en verschuift naar grotere afstand tot de bron met toenemende effectieve pluimhoogte (= schoorsteenhoogte + pluimstijging).

Van invloed op het chemiemodel zijn het oxidantniveau van de omgeving van de pluim, de verhouding van de reactieconstanten K en de fractie direct geloosd NO_2 (p-factor).

Figuur 7.7 toont het effect van een verdubbeling respectievelijk halvering van het achtergrond-oxidantniveau: de op grote afstand tot de bron bereikte evenwichtsverhouding NO/NO_x schuift naar een lagere respectievelijk hogere waarde. Beschouwing van de foto-stationaire toestand leert dat verandering (verhoging) van de verhouding van de reactieconstanten K dezelfde invloed heeft op de NO/NO_x -verhouding als verandering (verlaging) van het omgevings-oxidantniveau. Verlaging van k heeft uiteraard hetzelfde effect als verhoging van k_1 . Verandering van de p -factor (een veranderd percentage direct geloosd NO_2) is slechts van invloed op korte afstand tot de bron. Op grote afstand blijkt de invloed op de NO/NO_x -verhouding nihil.

De invloed van een verandering van de depositiesnelheid van NO_x is reeds besproken in de vorige paragraaf. Door het verschil in depositiesnelheid van NO en NO_2 ($V_d(\text{NO}_2) \gg V_d(\text{NO})$) heeft een verhoging van de depositiesnelheid van NO_x een geringe verhoging van de verhouding NO/NO_x tot gevolg.

Een onjuiste voorspelling van de NO_x -concentratie ten gevolge van onjuiste invoergegevens of onnauwkeurigheden in het normale Gaussische pluimmodel kunnen ook leiden tot een verkeerde NO/NO_x -verhouding.

Een te hoge NO_x -concentratie als invoer voor het chemiemodel levert een te hoge NO/NO_x -verhouding op. Dit is eenvoudig in te zien daar een te hoge NO_x -concentratie gesimuleerd kan worden door een hogere emissie Q te gebruiken. In formulevorm:

$$\frac{d(\text{NO}/\text{NO}_x)}{d(\text{NO}_x)} > 0 \quad (7.1)$$

Zoals reeds vermeld heeft een verandering van Q nauwelijks invloed op de NO/NO_x -verhouding op grote afstand van de bron.

Wel zouden de ten opzichte van de metingen dan eens te laag, dan eens te hoog berekende NO/NO_x -verhoudingen deels te wijten kunnen zijn aan een onjuiste voorspelling van de NO_x -concentratie. Opgemerkt dient te worden dat geen directe vergelijking van gemeten en berekende NO_x -concentraties heeft plaatsgevonden, maar dat gebruik is gemaakt van het Gaussisch pluimmodel en de bij de metingen verstrekte informatie omtrent dispersieparameters en/of stabiliteitsklasse.

8. CONCLUSIES

- Een relatief eenvoudig chemisch reactief pluimmodel is opgesteld gebaseerd op het Gaussisch pluimmodel en fotostationair evenwicht.
- Een vergelijking tussen berekende en gemeten NO/NO_x -verhoudingen voor 8 buitenmetingen laat zien dat in 74% van de gevallen de berekende resultaten binnen het betrouwbaarheidsinterval van de metingen vallen.
- De modelresultaten tenderen naar overschatting zowel als onderschatting van de NO/NO_x -verhouding op korte afstand tot de bron in vergelijking met metingen, en een onderschatting voor grotere afstanden.
- Gezien de verwaarlozing in het voorgestelde model van een aantal van belang zijnde processen als inhomogene menging, concentratie-fluctuatie, en instantane pluimafmetingen draagt het model een compromiskarakter en dient gezien te worden als een voorlopig model.
- Berekeningen laten zien dat in de situatie van de Flevo-centrale droge depositie van NO_x methode geen merkbare invloed heeft op grondconcentraties tot afstanden van ca. 50 km vanaf de bron.
- Gevoeligheidsanalyses met het model laten een grote invloed zien van de hoeveelheid emissie en van de reactieconstanten op de NO/NO_x -verhouding dicht bij de bron, en een grote invloed van atmosferische stabiliteit en omgevings-ozon concentratie voor situaties dichtbij, zowel als op grotere afstanden vanaf de bron.
- Een zeer eenvoudig model dat slechts de aflopende reactie $\text{NO} + \text{O}_3 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{O}_2$ in rekening brengt en van geringe pluimdispersie uitgaat, voorspelt de NO/NO_x -verhouding op pluimhoogte slecht. Ook de test-case waarbij slechts deze reactie van belang

is wordt slecht voorspeld. Het vertragingseffect ten gevolge van inhomogene menging wordt niet voorspeld hetgeen resulteert in te lage NO/NO_x -verhouding van de modelberekening.

9. REFERENCES

- [1] Bilger, R.W.
The effect of admixing fresh emissions on the photostationary state relationship in photochemical smog.
Atm. Env. 12, 1109, (1978).
- [2] Blanks, e.a.
Investigation of NO_2/NO_x ratios in point source plumes.
EPA-600/7-80-036 (Feb. 1980).
- [3] Brubaker, K. e.a.
Impact of aircraft emissions on air quality progress on nitrogen oxides and hydrocarbons.
Argonn. Nat. Lab. Interim Rep. (1982).
- [4] Builtjes, P.J.H.
A comparison between chemically reacting plumes and wind tunnel experiments.
12th Internationaal Technical Meeting on Air Pollution Modelling and its Application, Palo Alto, USA (1981a).
- [5] Builtjes, P.J.H.
Chemically reacting plume experiments in the wind tunnel,
TNO (81-013563) Data-report, 1981b.
- [6] Carmichael, G. & L. Peters
Application of the mixing reaction in series model to $\text{NO}_x\text{-O}_3$ plume chemistry.
Atm. Env. 15, 1069, (1981).
- [7] Cocks, A & I. Fletcher
Possible effects of dispersion on the gasphase chemistry of power plant effluents.
Atm. Env. 16, 667 (1982).

- [8] Corbett, J.O.
The validity of Source-Depletion and Alternative Approximation
Methods for a Gaussian Plume Subject to Dry Deposition.
Atmospheric Environment, Vol. 15, Bo. 1/pp 1207-1213, 1981.
- [9] Davis, W. & D. Metz
A New Technique for Treatment of Surface Boundary Conditions
Arising from Particulate Plume Dispersion
Journal of Applied Meteorology, Vol. 17, Nov. 1978.
- [10] Elshout, A.J. & S. Beilke
Oxidation of NO to NO₂ in flue gas plumes of power stations.
3rd European Symp. on "Physio-chemical behaviour of atmospheric
pollutants.
Ispra (1984).
- [11] Eschenroeder, A.
Atmospheric dynamics of NO_x-emission controls.
Proc. of the 15th Int. Col. Paris, France (May 1982).
- [12] Heines, T.S. & L.K. Peters
An analytical investigation of the effect of a first
order chemical reaction on the dispersion of pollutants
in the atmosphere.
Atm. Env. 7, 153-162, (1973).
- [13] Horst, T.W.
A surface Depletion Model for Deposition from a Gaussian
Plume.
Atmospheric Environment Vol. 11, pp 41-46 (1977).
- [14] Horst, T.W.
A correction to the Gaussian source depletion model
4e Conf, Prec. Scav. Dry Dep., Resusp.
November 29 - December 3, Los Angeles, 1982.

- [15] Hoven, I. van der
Deposition of Particles and Gases.
Meteorology and Atomic Energy - 1968, TID-24190
USAEC Report.
- [16] Hov, O. & I.S.A. Isaksen
Generation of secondary pollutants in a power plant plume-
a model study.
Atm. Env. 15, 11, 2367-2376 (1981).
- [17] Janicke, J. & Kollman, W.
Ein rechenmodell für reagierende turbulente Scherströmungen
in chemischen Nichtgleichgewicht.
Wärme-und Stoffübertragung 11, 157-174 (1978).
- [18] Janssen, L.H.J.M.
Een reactief mengmodel voor bestudering van oxidatie-
processen van NO in de atmosfeer.
KEMA Rap. 84-11, MO-Luvo, februari 1984.
- [19] Janssen, L.H.J.M.
Aanpassingen aan een reactief mengmodel voor bestudering
van oxidatie van NO in de atmosfeer.
KEMA Rap. 84-40, MO-Luvo, mei 1984.
- [20] Janssen, L.H.J.M.
Mengprocessen van een pluim met omgevingslucht en de invloed
daarvan op oxidatie van NO.
KEMA-memo, 84-01, MO-Luvo, januari 1984.
- [21] Kumaraswamy, G.
Mathematical modeling of oxidant production in plumes.
Ph.D.-thesis, Washington State Univ. (1981).
- [22] Lamb, R.G. & R.W. Shu
A model for second-order chemical reactions in turbulent
fluid, Part 1: Formulation & Validation.
Atm. Env. 12, 1685-1694, (1978).

- [23] Leighton, P.A.
Photochemistry of air pollution
Acad. Press, New York/Londen, (1961).
- [24] Llewelyn, R.P.
An analytical model for the transport, research and
elimination of air pollutants emitted from a point source.
Sec Victoria Report SO/82/44, April 1983.
- [25] Lusi, M.
Mathematical modelling of dispersion and chemical reactions in
a plume-oxidation of NO to NO₂ in the plume of a power plant.
Atm. Env. 12, 1231-1234 (1978).
- [26] Moore, R.E.
Calculation of the Depletion of Airborne Pollutant
Plumes Through Dry Deposition Processes.
Environment International, Vol. 3, pp 3-10, 1979.
- [27] Overcamp, J.
A General Gaussian Diffusion-Deposition Model for
Elevated Point Sources.
Journal of Applied Meteorology. Vol. 15 (1976).
- [28] Peters, L.K. and L.W. Richards
Extension of atmospheric dispersion models to incorporate
fast reversible reactions.
Atm. Env. 11, 101-108 (1977).
- [29] Persson, C.
Plume model for nitrogen oxides
14e I.T.M. on Air Pollution Modelling and its
Application, Copenhagen (1983).
- [30] Persson, C. & L. Funkquist
Plume model for nitrogen oxides.
The Swedish Met. and Hydrol.
Inst. Rep. 74 (1983) (in Swedish).

- [31] Rao, K.S.
Analytical Solutions of a Gradient-Transfer Model for
Plume Deposition and Sedimentation.
EPA IAG-AD-13-F-0177-0 (April 1982).
- [32] Schurath, U & K. Ruffing
Die Oxidation von NO durch Sauerstoff und Ozon
in Abgasfahnen.
Staub, Reinh. d. Luft 41, 277-281 (1981).
- [33] Seigneur, C. & R.F. Wyzga
Mathematical Modelling of chemically reactive plumes
in an urban environment.
12th I.T.M. on Air Pollution Modelling and its Application,
Palo Alto, USA (1981).
- [34] Tadmor, J.
Consideration of Deposition of Pollutants in the Design
of Stackheight.
Atmospheric Environment, Vol. 5, pp 573-482 (1971).
- [35] Tadmor, J., M. Rindsberger, I. Zur
Deposition and Resuspension of Pollutants from and into
the Atmosphere.
4th Int. Clean Air Congress, Tokyo, Japan, May 16-20, 1977.
- [36] Tennekes, H., J.L. Lumley
A first course in turbulence,
1972, The MIT Press.
- [37] Valey, R.H. e.a.
The oxidation of nitric oxide in power station plumes.
CERL Lab. Note RD/L/N 184/78 (1978).
- [38] P.E.J. Vermeulen
Inventarisatie van metingen naar oxidatie van stikstof-
monoxide in schoorsteenpluimen.
TNO-rapport 83-01620, april 1983.

[39] P.E.J. Vermeulen

Inventarisatie en beoordeling van de internationale stand van zaken betreffende "verspreiding" en "verspreidingsmodellen" voor opwaaiend kolenstof.

TNO-rapport 84-06399, mei 1984.

[40] Yamartino, J.

Solutions to the Equation for Surface Depletion of a Gaussian Plume.

Proc. 12th Int. Techn. Meeting on Air Pollution Modelling and its Applications 1981.

[41] Yanicke.

Particle Simulation of Dust Transport and Deposition and Comparison with Conventional Models.

Proc. 14th Int. Techn. Meeting Air Poll. Mod. and Appl., Copenhagen, 27-30 September, 1983.

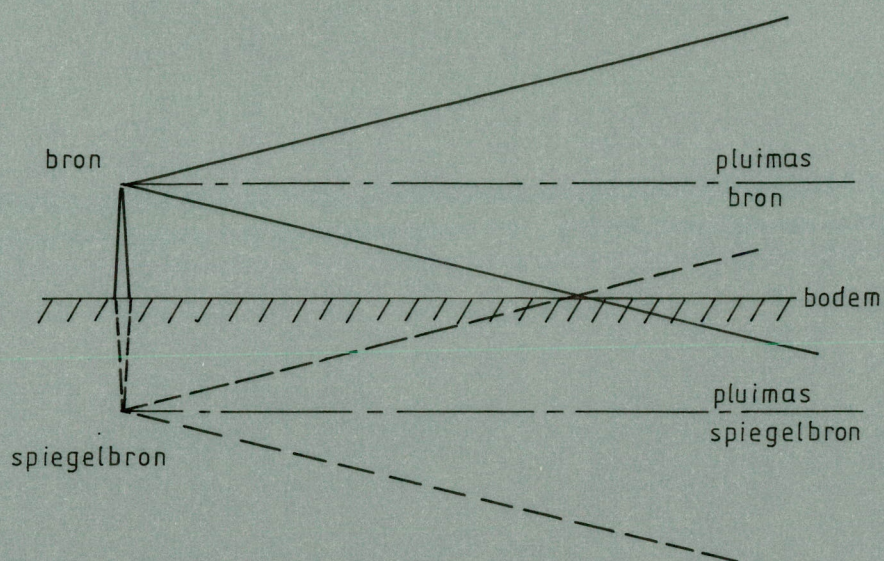


Fig. 3.1A Het principe van de spiegelbron zoals gehanteerd in het Gaussisch pluimmodel

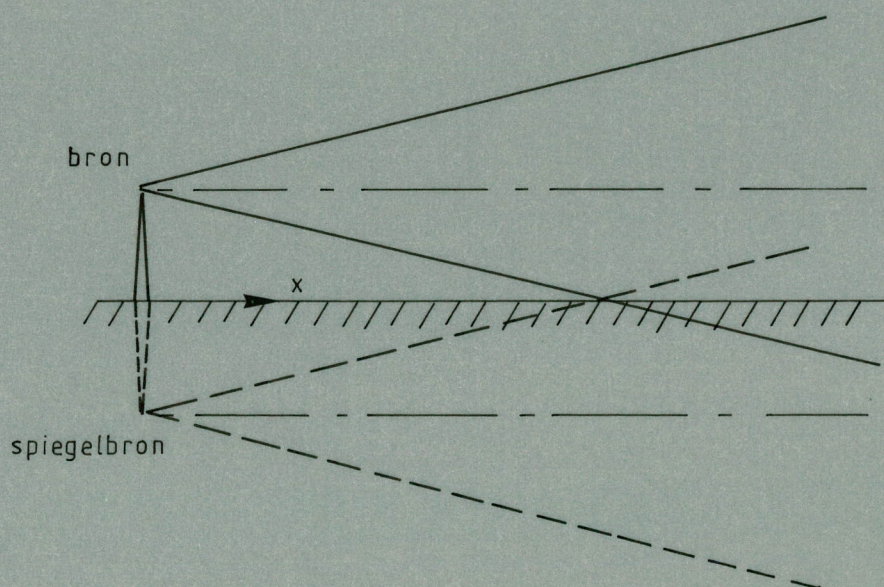


Fig. 3.1B Gedeeltelijke reflectie. De bronsterkte van de spiegelbron is een functie van de afstand x

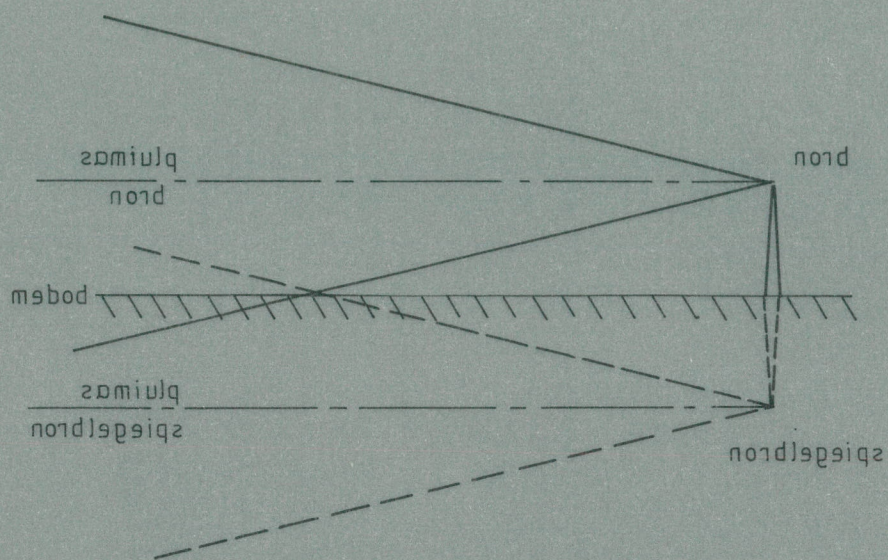


Fig. 3.1A Het principe van de spiegelbron zoals gehanteerd in het Gaussisch pluimmodel

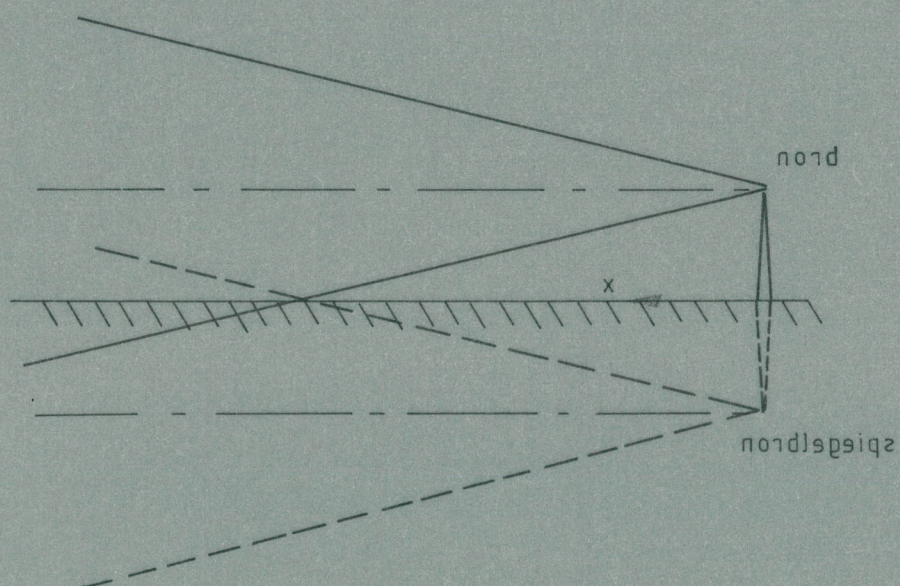


Fig. 3.1B Gedeeltelijke reflectie. De bronsterkte van de spiegelbron is een functie van de afstand x

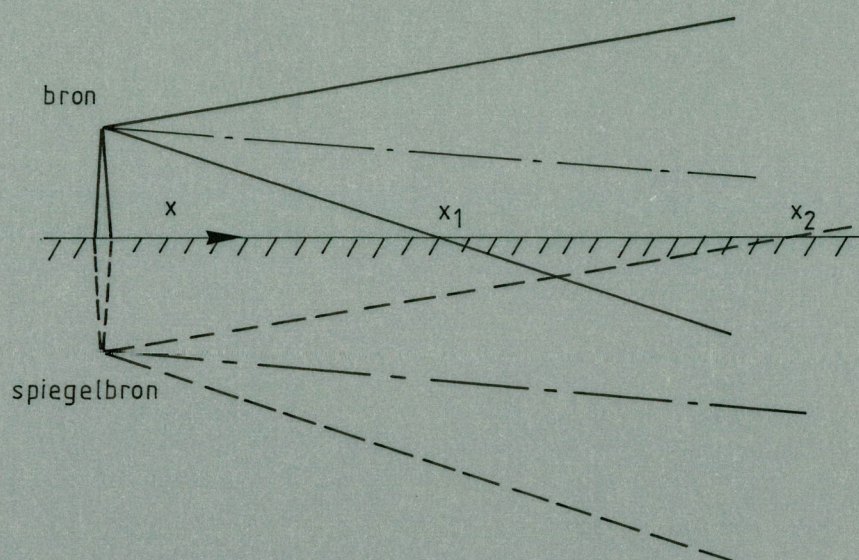


Fig. 3.1C Gedeeltelijke reflectie. De pluimen van bron en spiegelbron hebben een neerwaartse snelheid ($x_2 > x_1$)

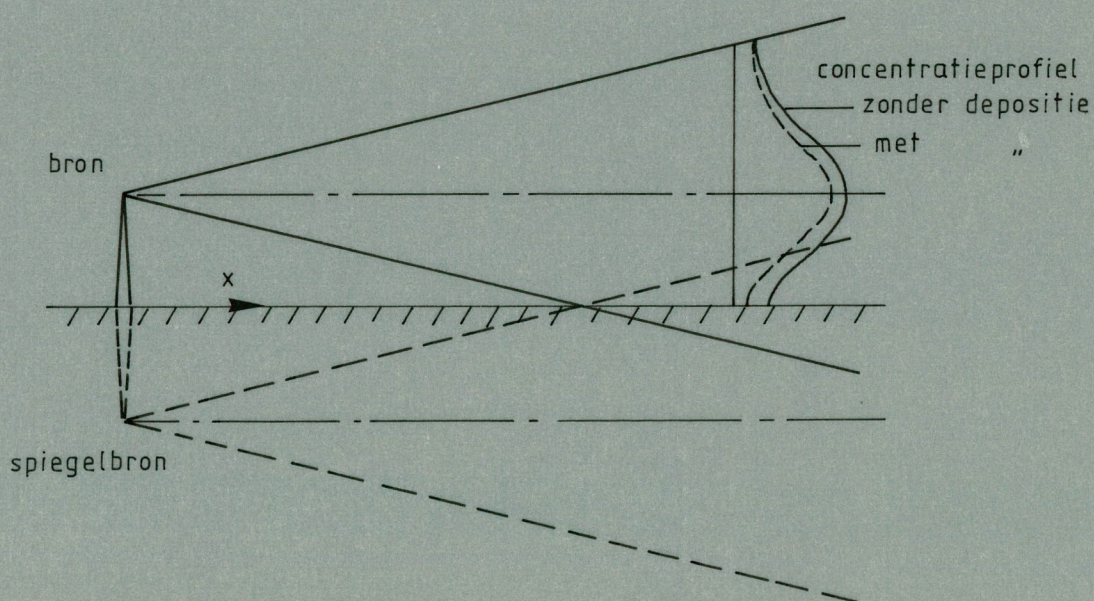


Fig. 3.1D Korrektie volgens Horst. De bronsterkte van bron en spiegelbron is een functie van de afstand x en het concentratieprofiel wordt gecorrigeerd

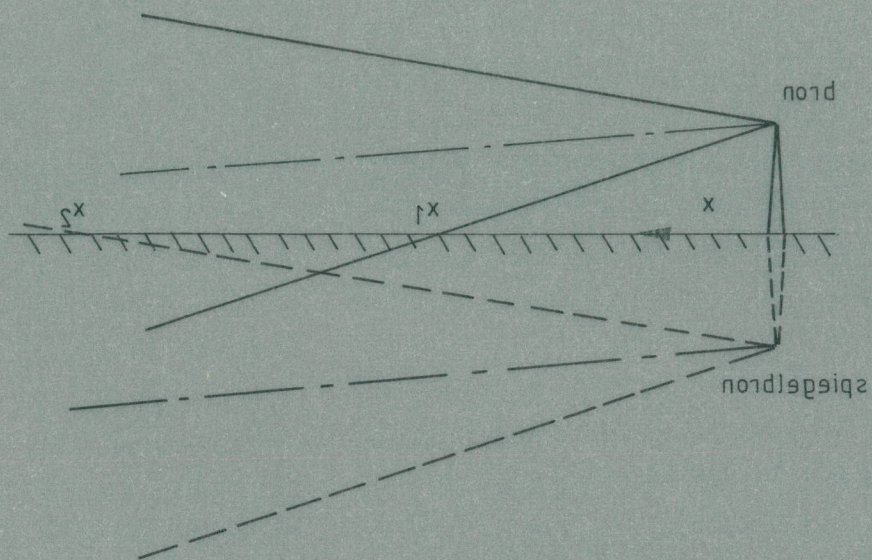


Fig. 3.1C Gedeeltelijke reflectie. De pluimen van bron en spiegelbron hebben een naarwaarts snelheid ($x_2 > x_1$)

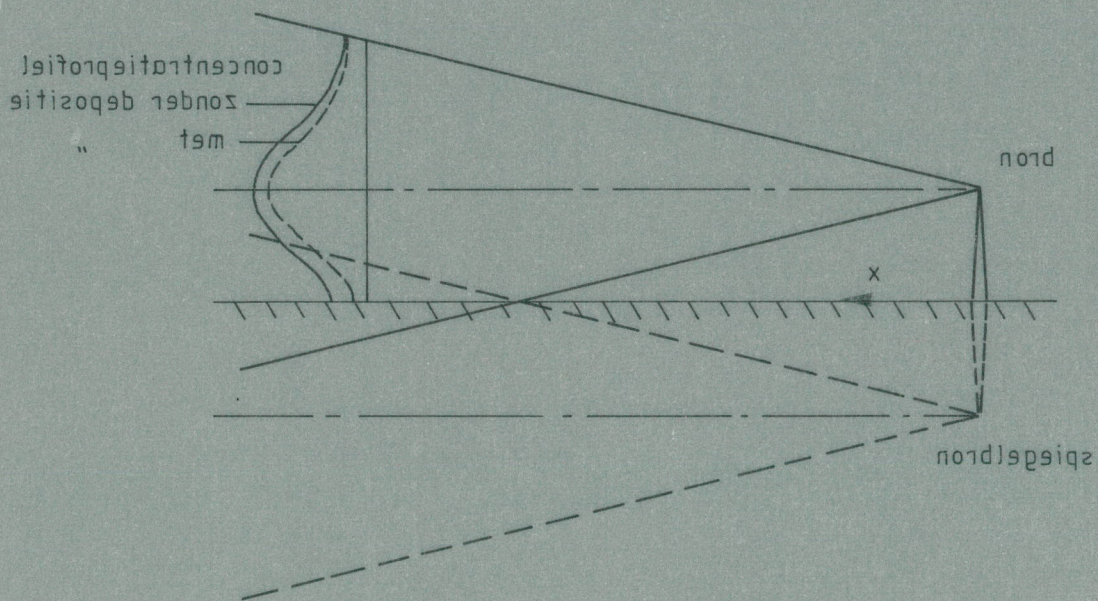


Fig. 3.1D Correctie volgens Horst. De bronsterkte van bron en spiegelbron is een functie van de afstand x en het concentratieprofiel wordt gecorrigeerd

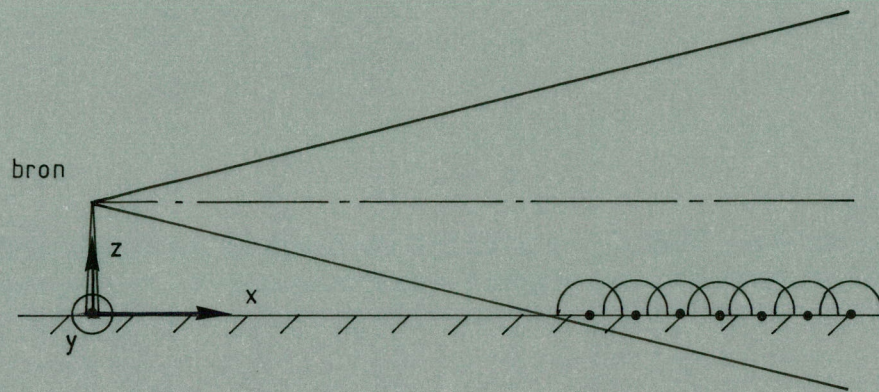


Fig. 3.1E Surface depletion. De bodem is belegd met puntbronnen waarvan de bronsterkte een functie van x en y is.

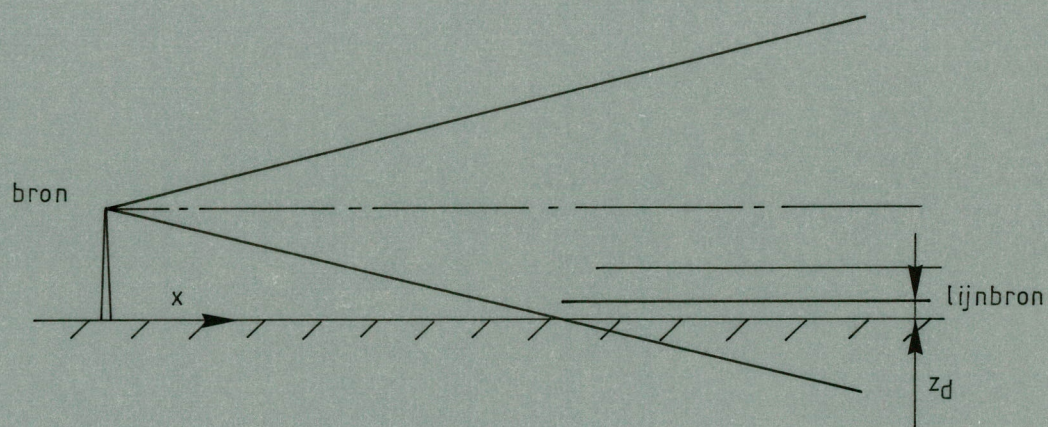


Fig. 3.1F Reflektiemanipulatie met een lijnbron. De lijnbronsterkte is een functie van de afstand x

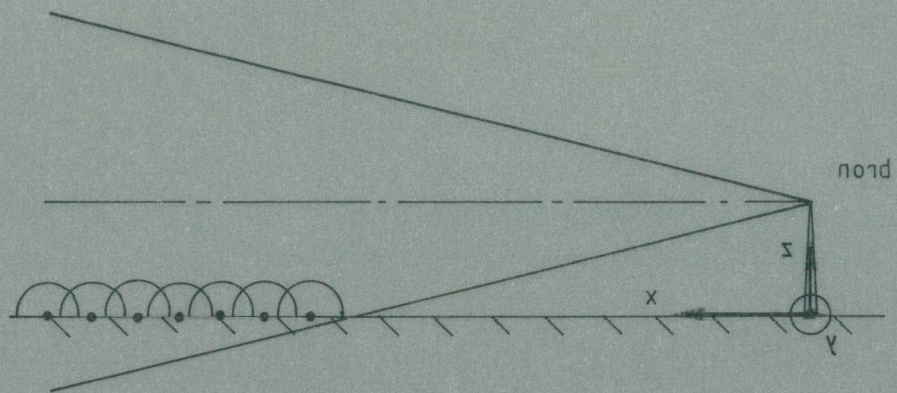


Fig. 3.1E Surface depletion. De bodem is bedekt met puntbronnen waarvan de bronsterkte een functie van x en y is.

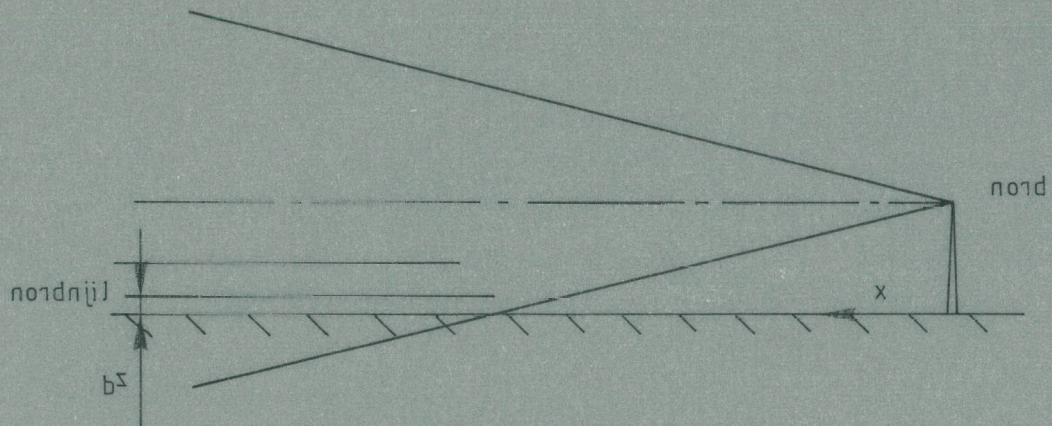
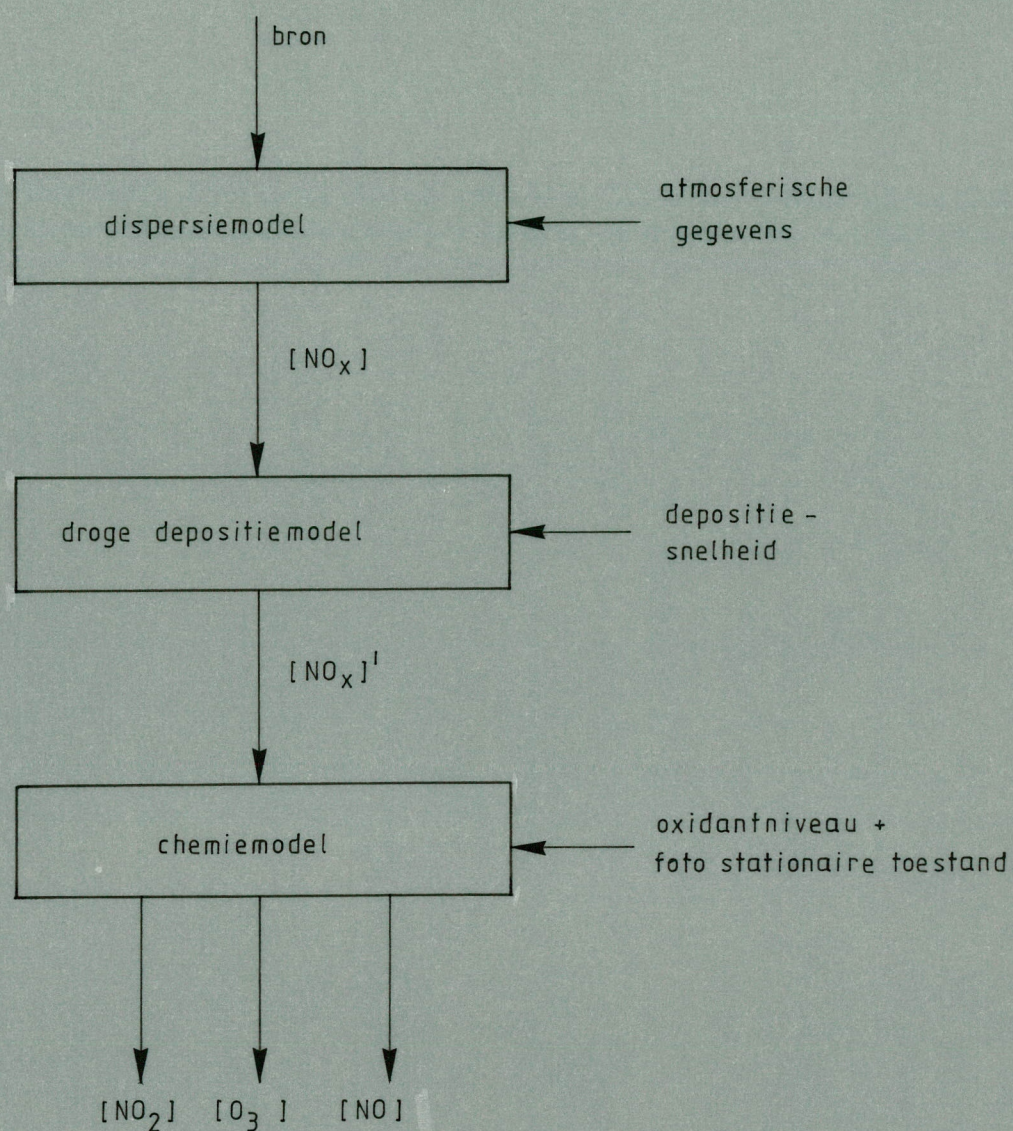
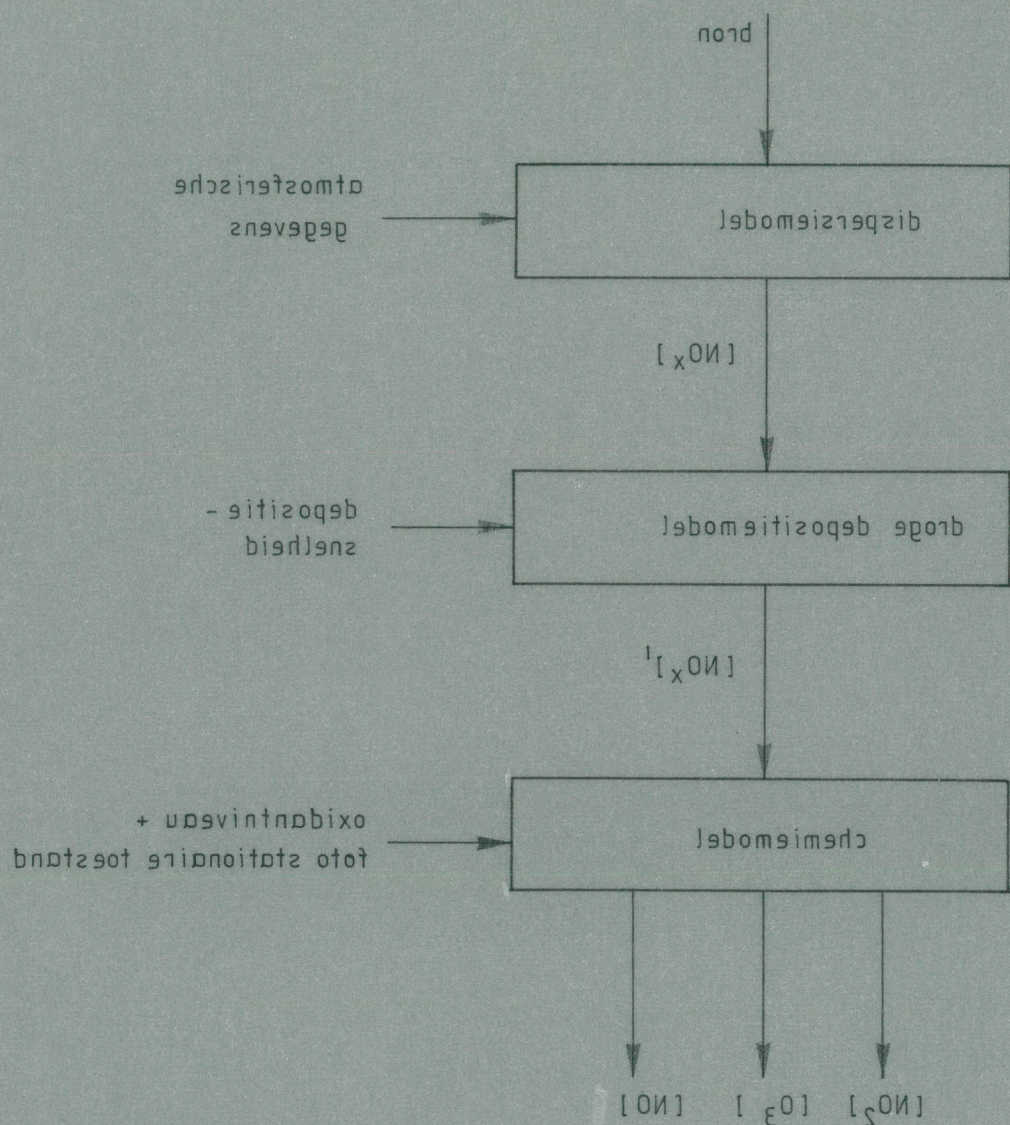
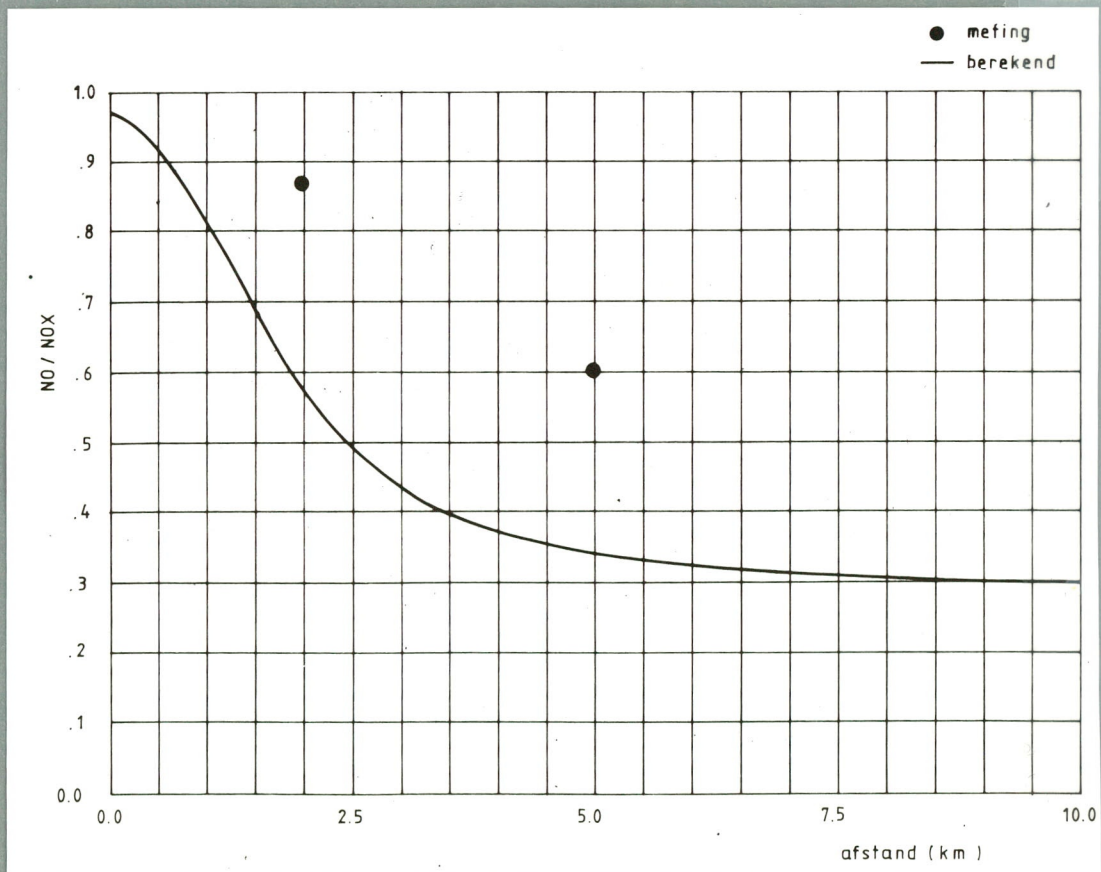
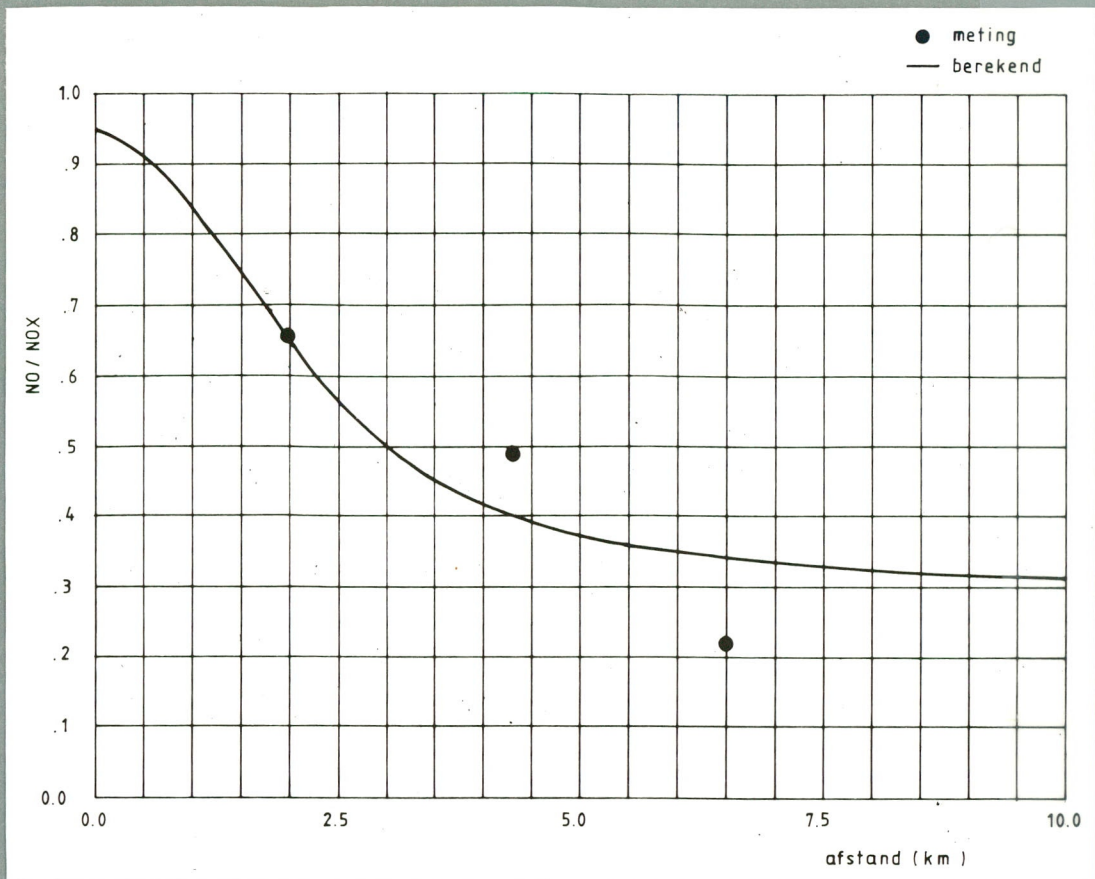


Fig. 3.1F Reflektiemaniplulatie met een lijnbron. De lijnbronsterkte is een functie van de afstand x .





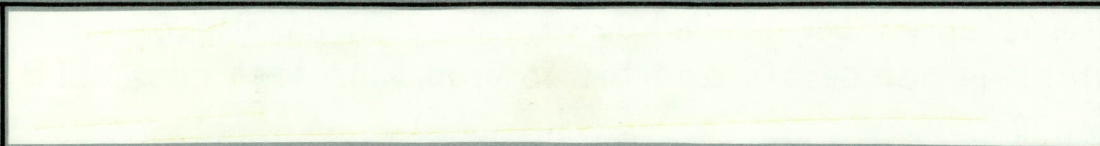


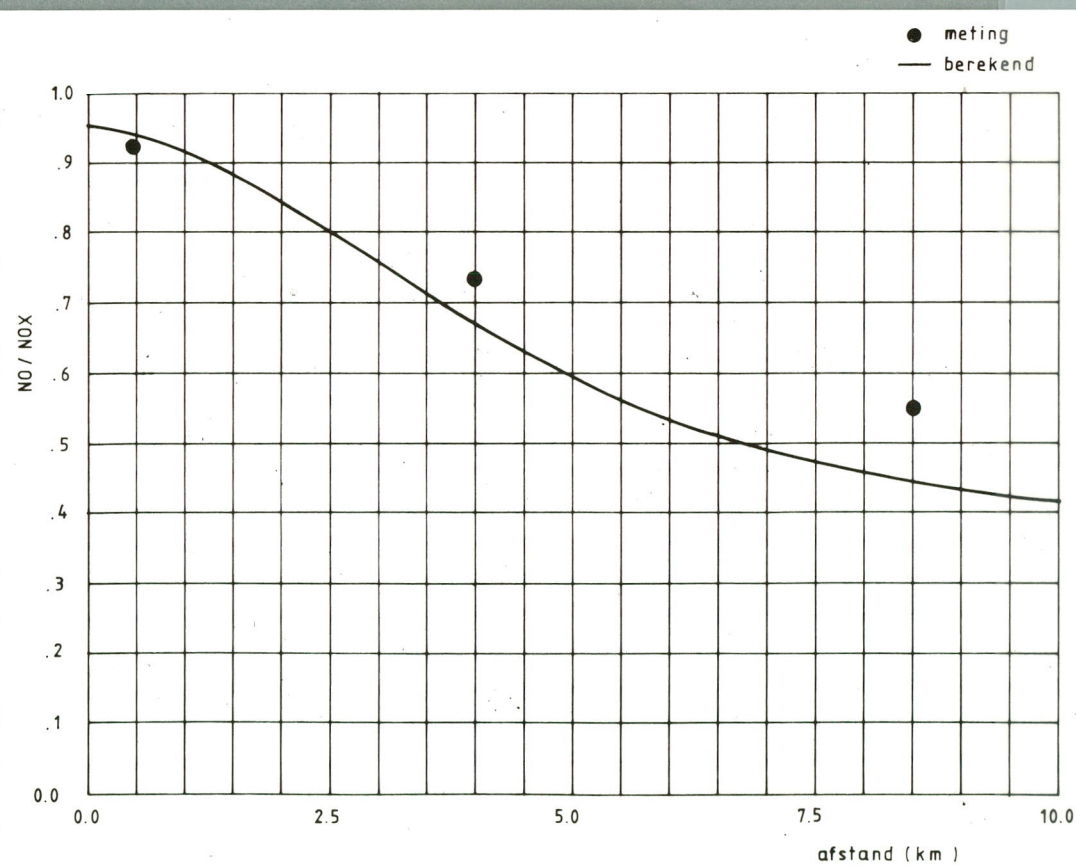
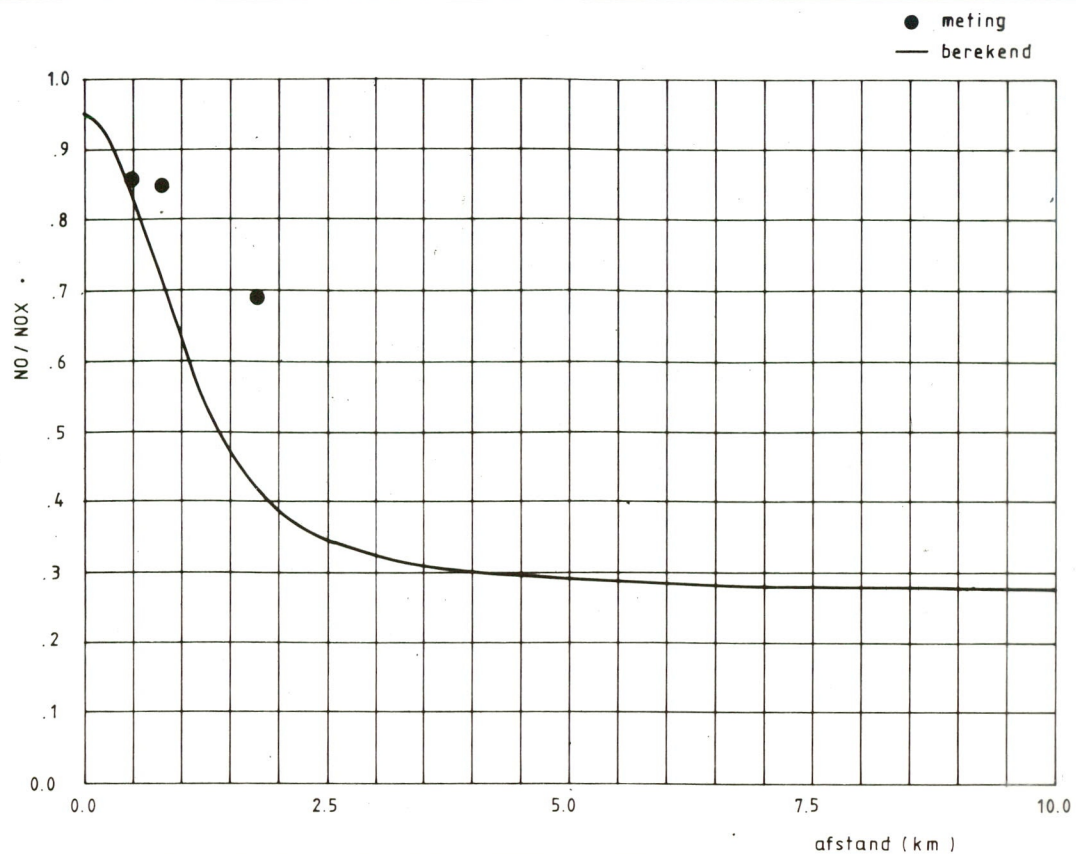
Gemeten en berekende NO/NO_x op pluimhoogte als
functie van de afstand tot de bron voor test case I
en II

MT-TNO
50055
Fig.6.1 + 6.2



MT-TNO
2002
Fig. 6.1 + 6.2





Gemeten en berekende NO/NO_x op pluimhoogte als
functie van de afstand tot de bron voor test case III
en IV

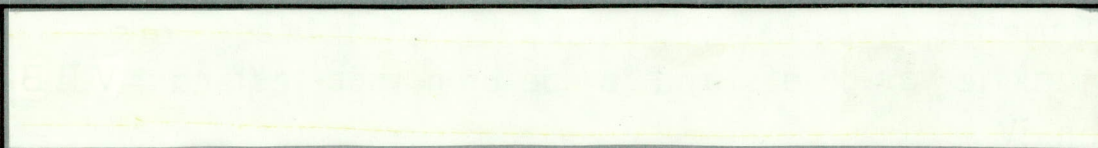
MT—TNO

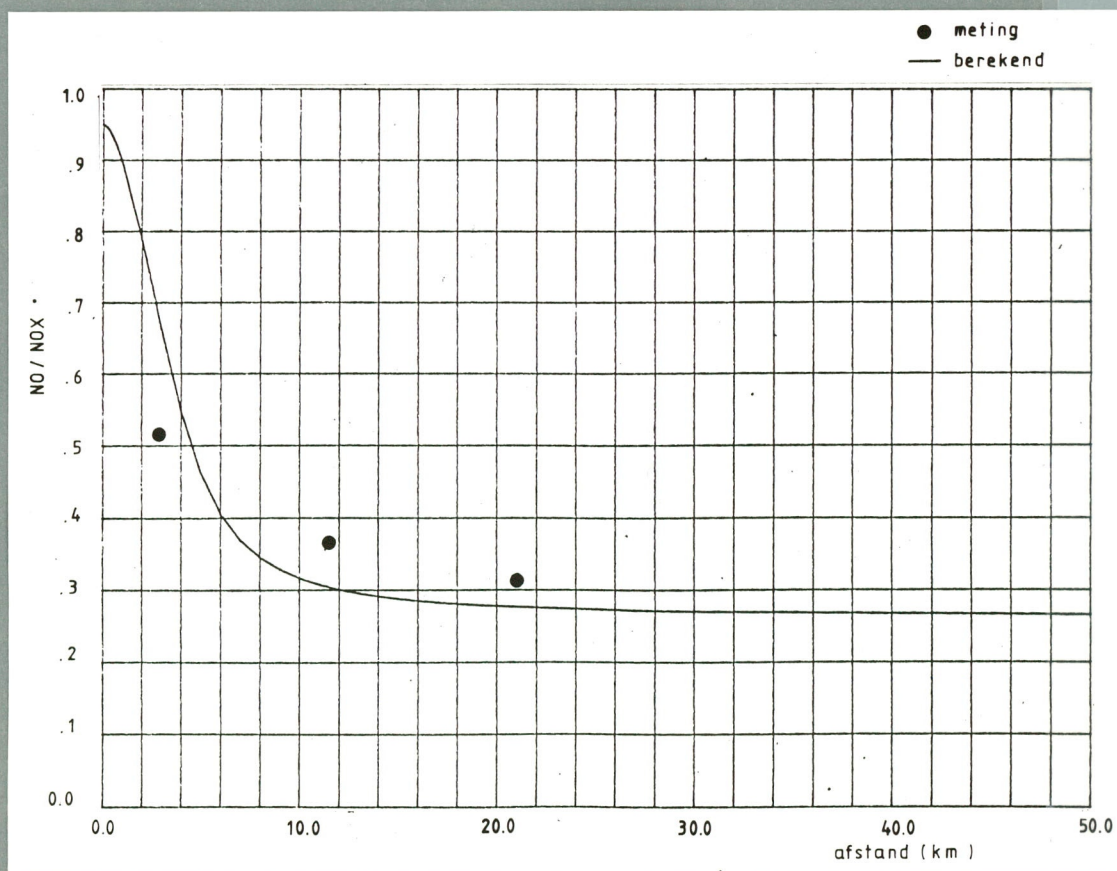
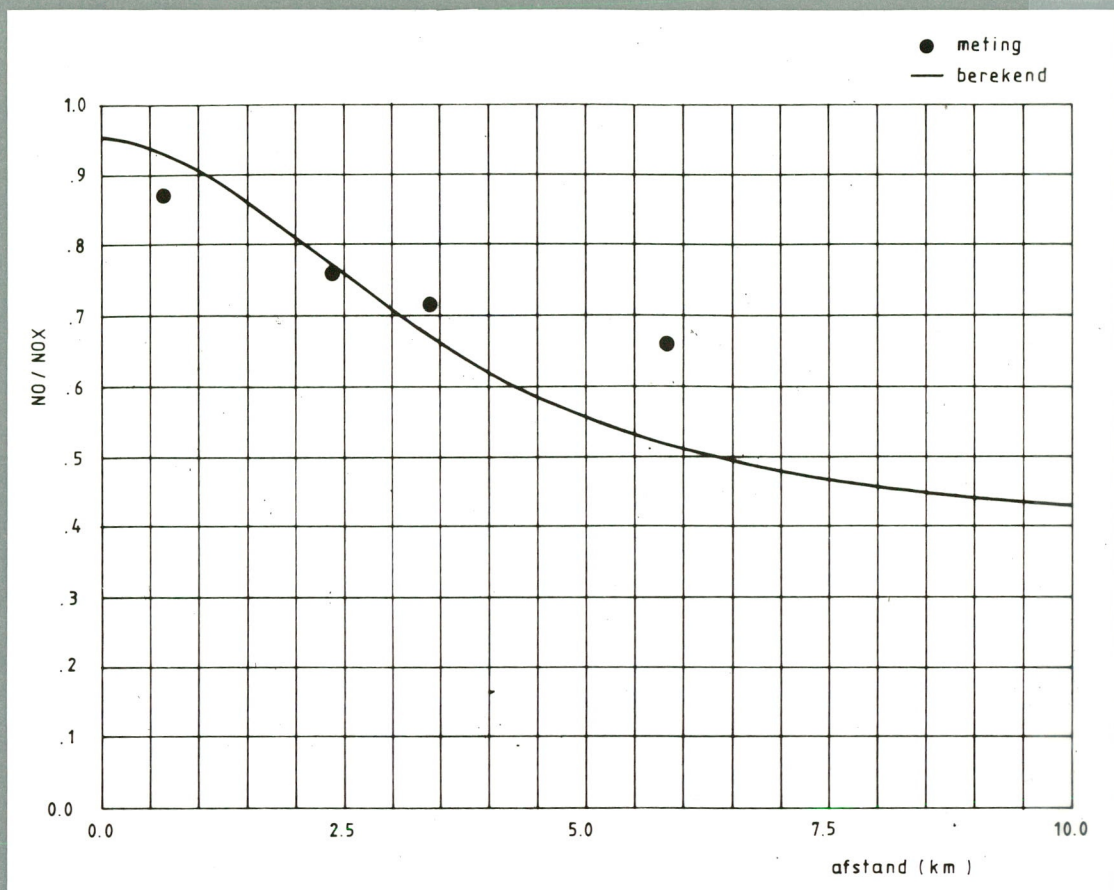
50055

Fig. 6.3 + 6.4



MT-TNO
20022
Fig. 6.3 + 6.4





Gemeten en berekende NO/NO_x op pluimhoogte als
functie van de afstand tot de bron voor test case V
en VI

MT — TNO
50055
Fig. 6.5+ 6.6

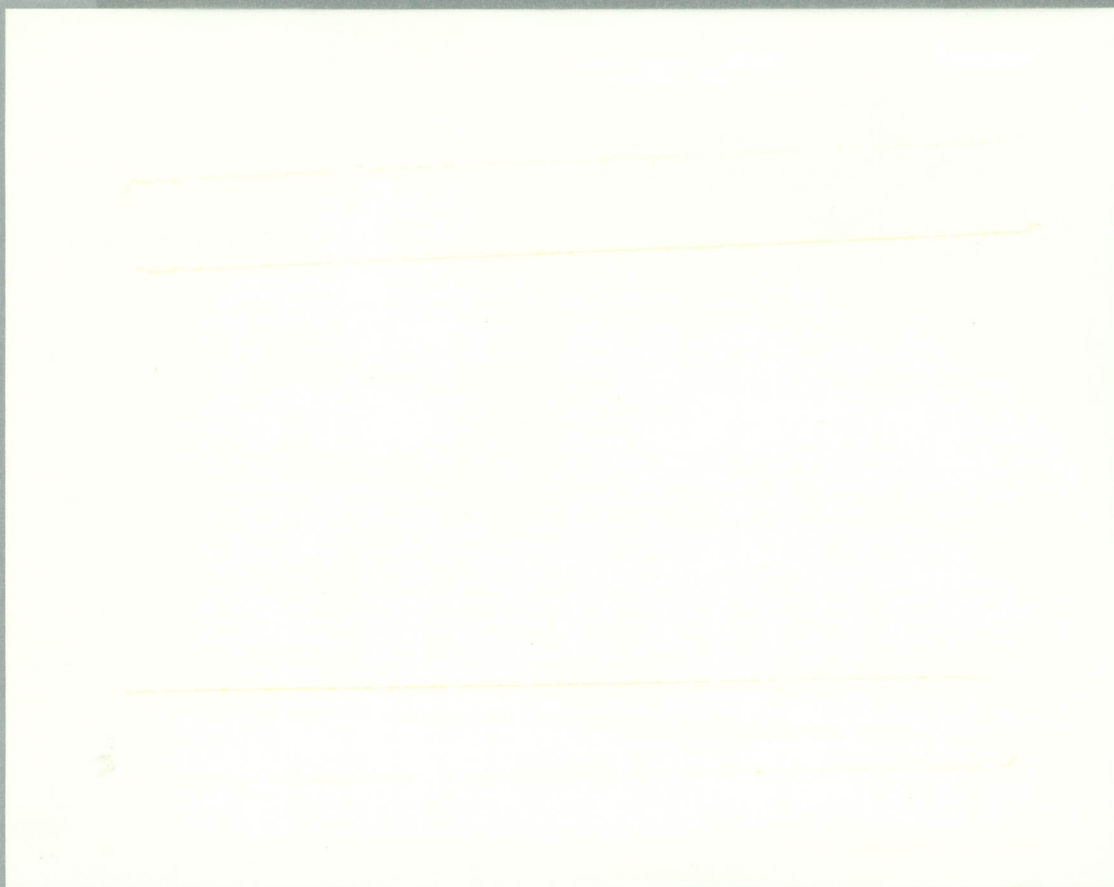
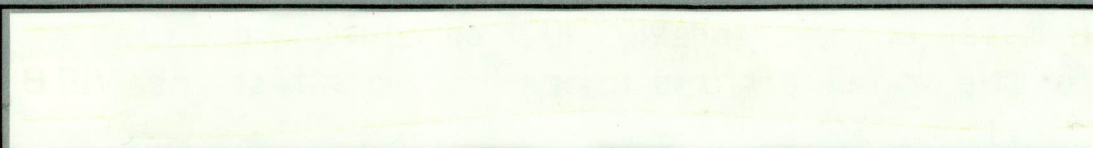
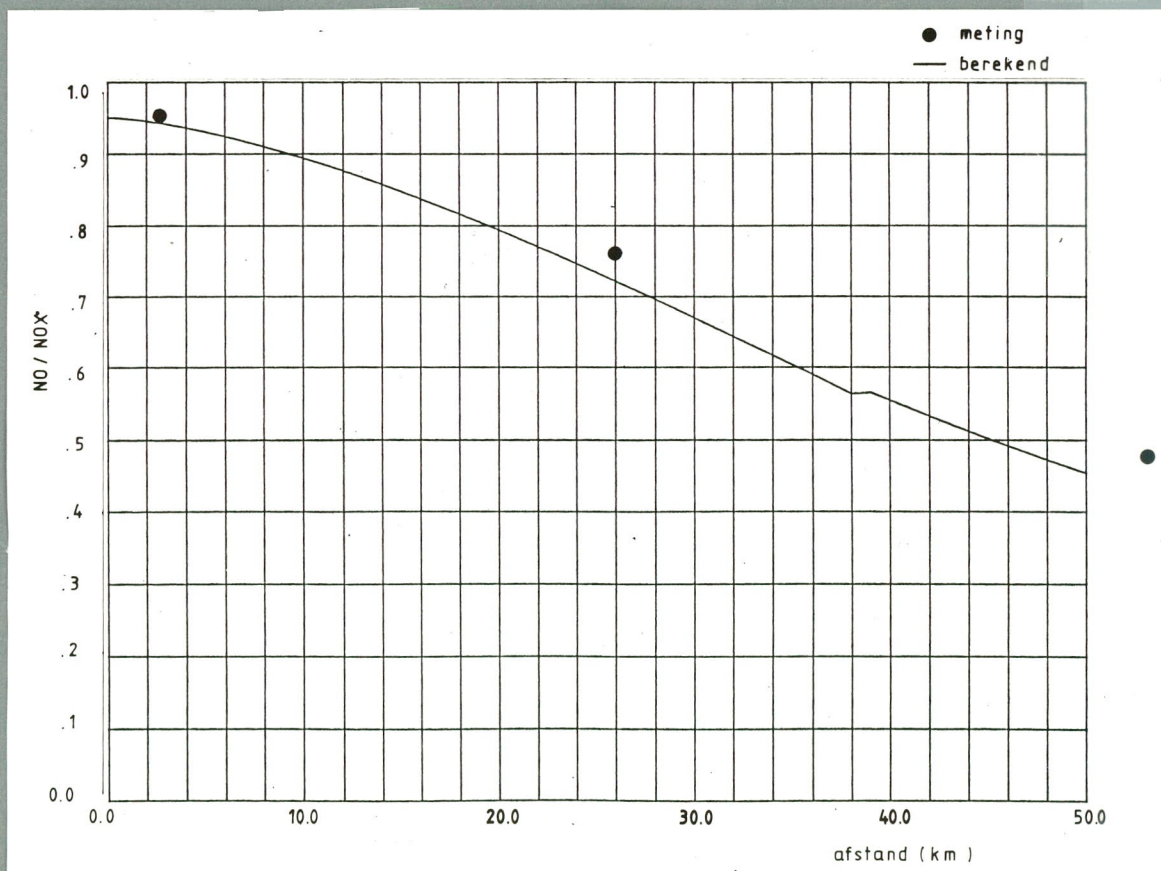
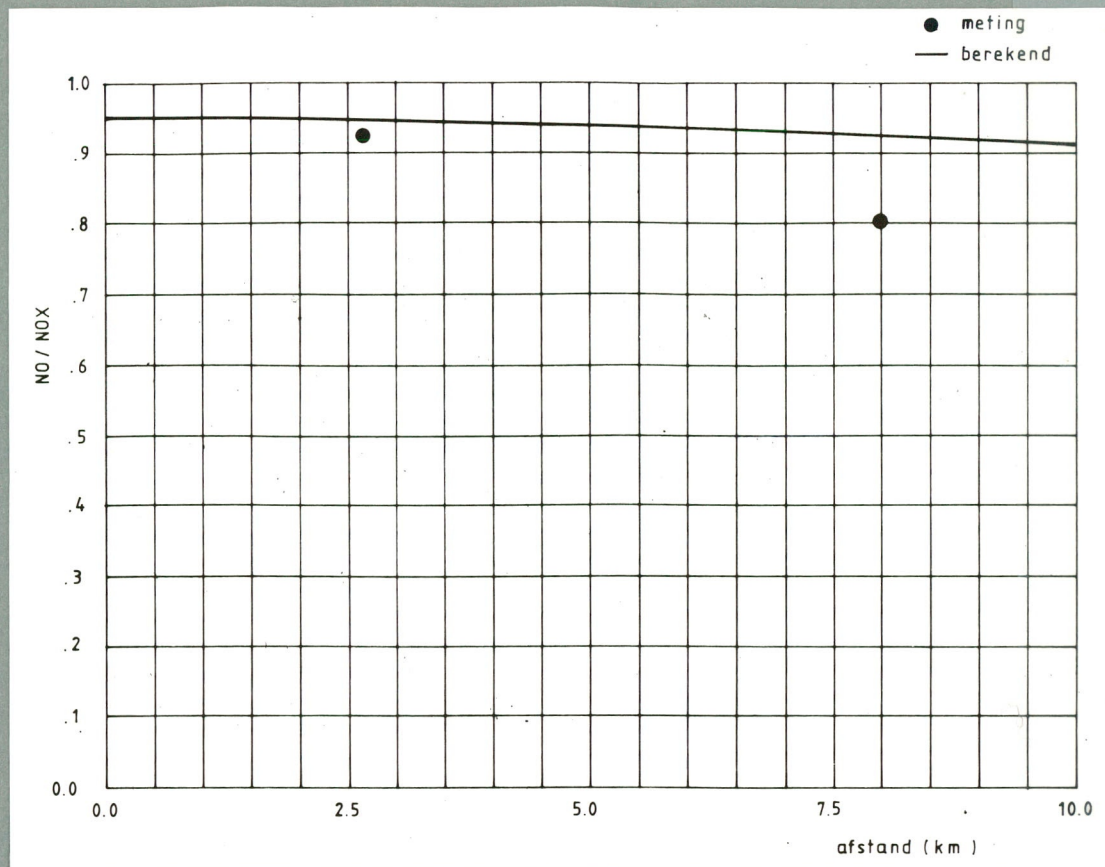


Fig. 6.2 + 6.6
50052
MT - TNO



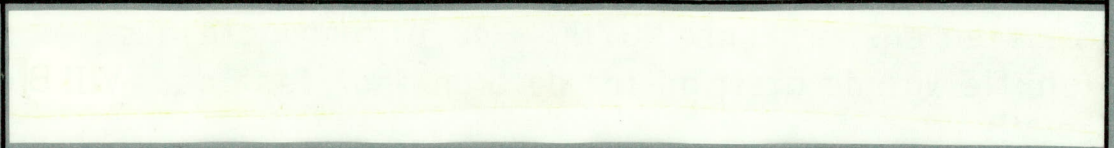


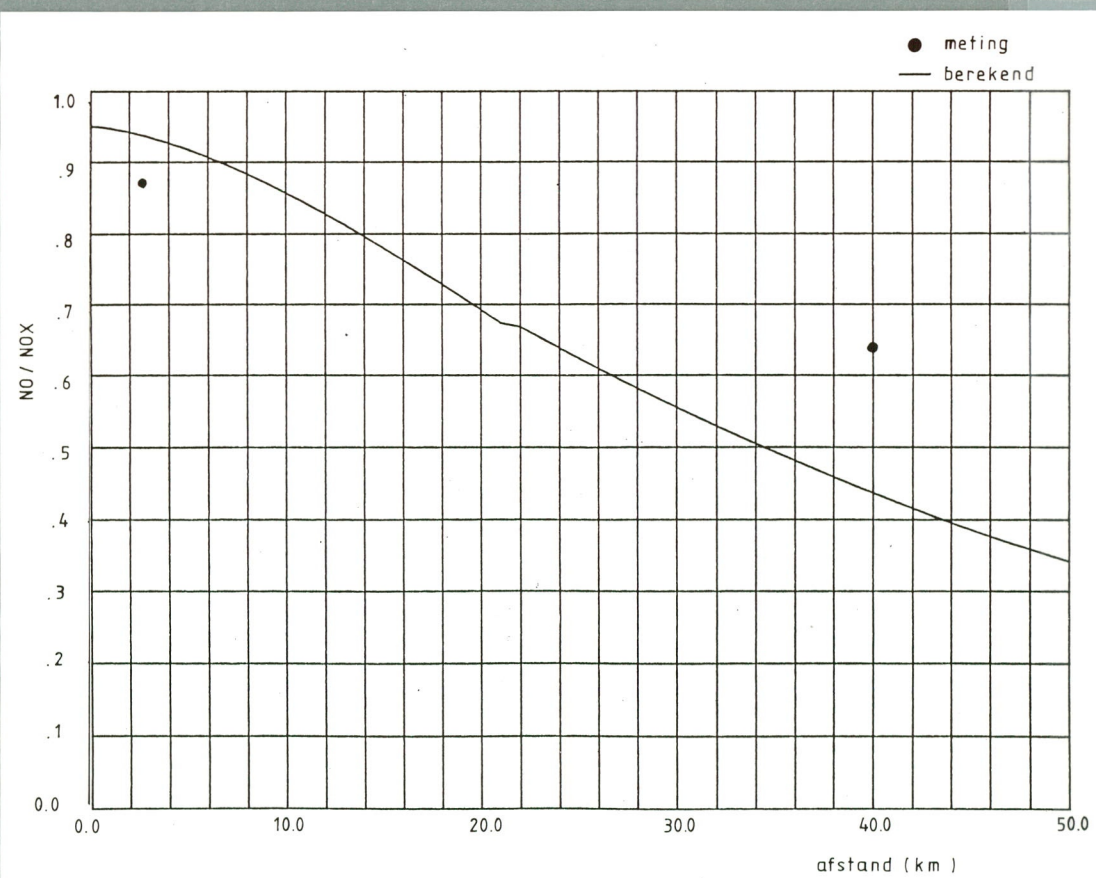
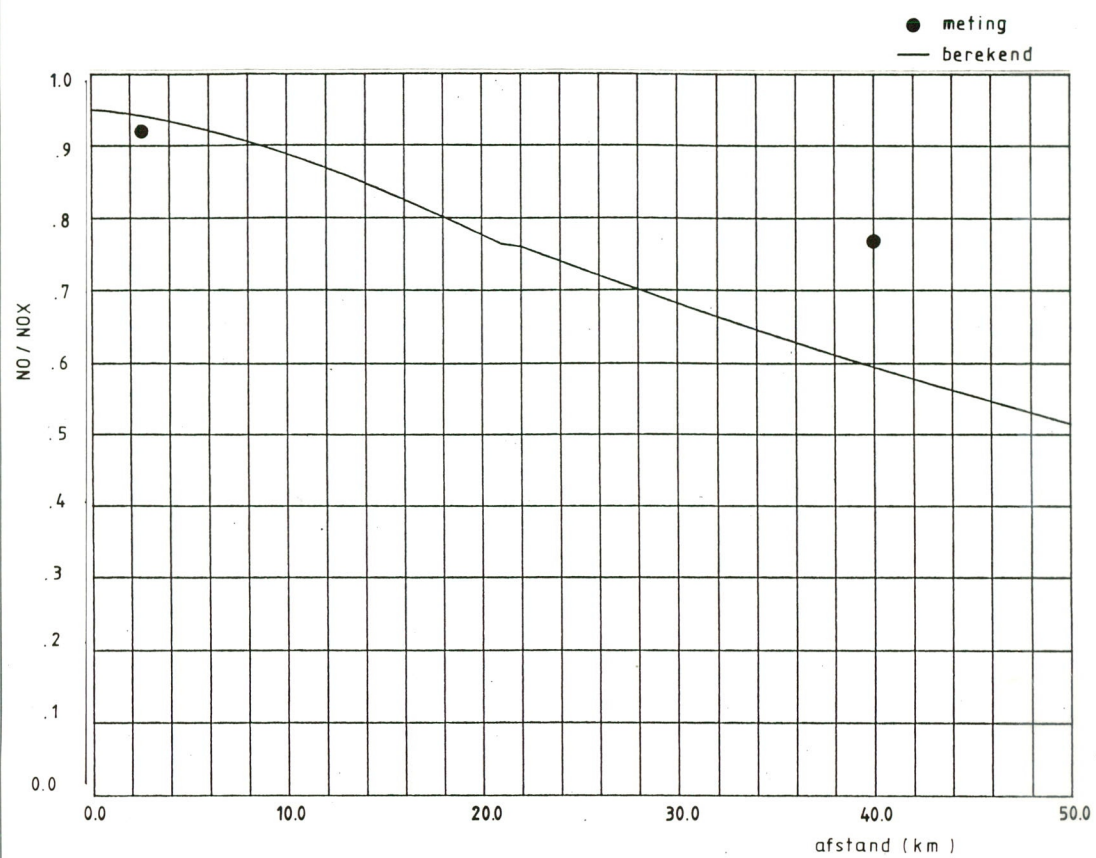
Gemeten en berekende NO/NO_x op pluimhoogte als
functie van de afstand tot de bron voor test case VIIA
en VII

MT — TNO
50055
Fig. 6.7+ 6.8



MT - TNO
50052
Fig. 6.7+6.8





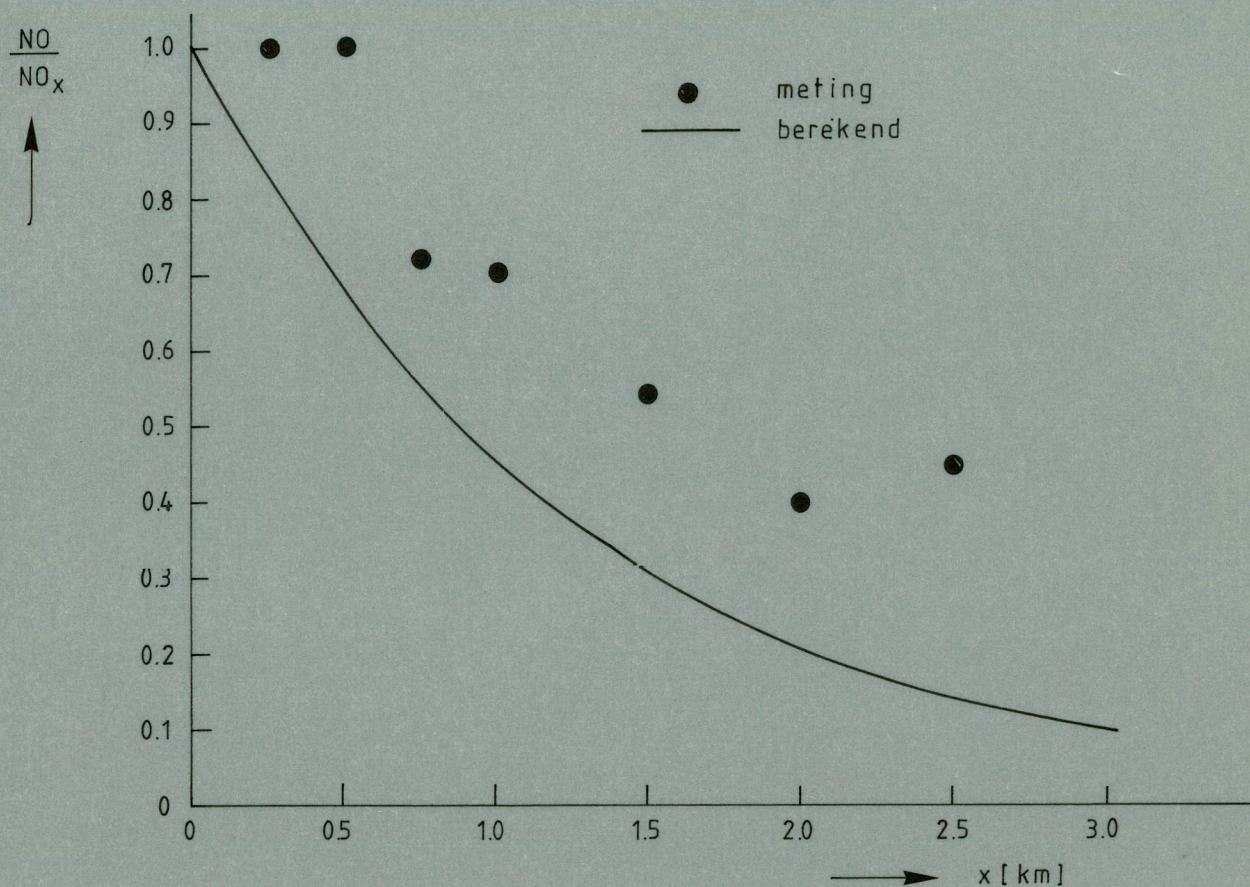
Gemeten en berekende NO/NO_x op pluimhoogte als
functie van de afstand tot de bron voor test case VIII A
en VIII B

MT — TNO
50055

Fig. 6.9+ 6.10

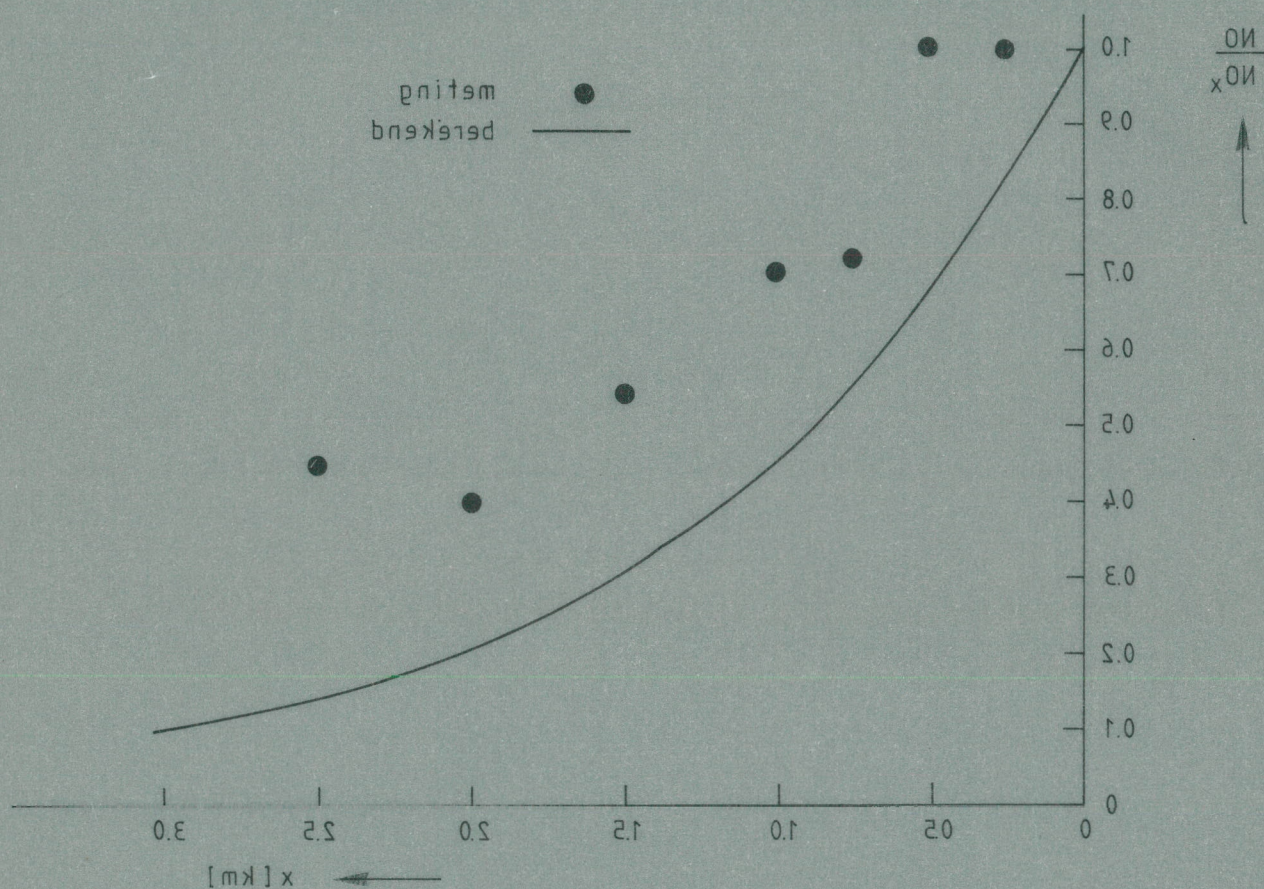
6.9.

6.10



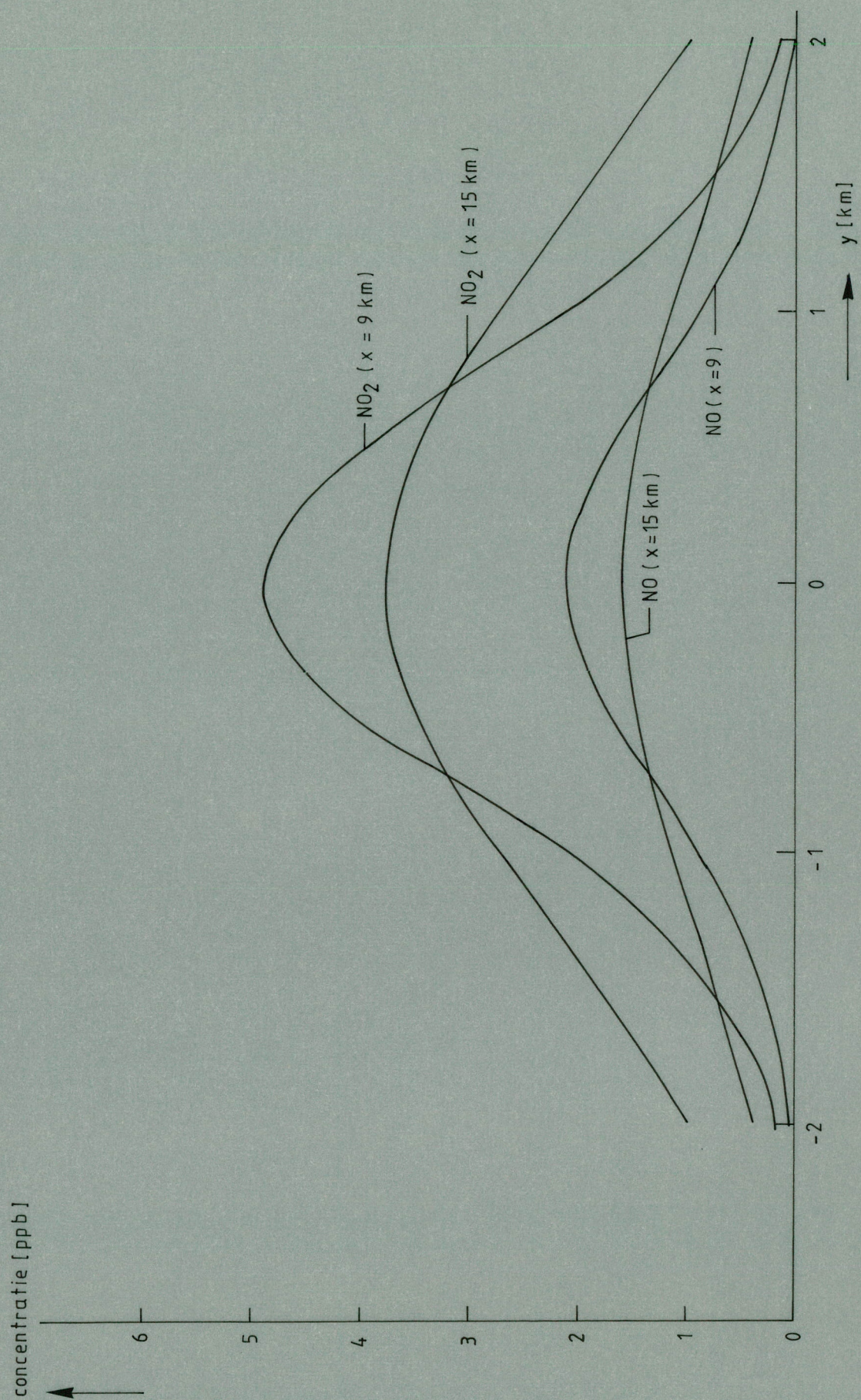
Gemeten en met het zeer eenvoudige model berekende
 NO/NO_x op pluimhoogte als functie van de afstand tot de
 bron voor test-case IX

MT-TNO
 50055
 Fig.6.11



MT-TNO
50052
Fig. 6.11

Gemeten en met het zeer eenvoudige model berekende
 NO_x op pluimhoogte als functie van de afstand tot de
bron voor test-case IX

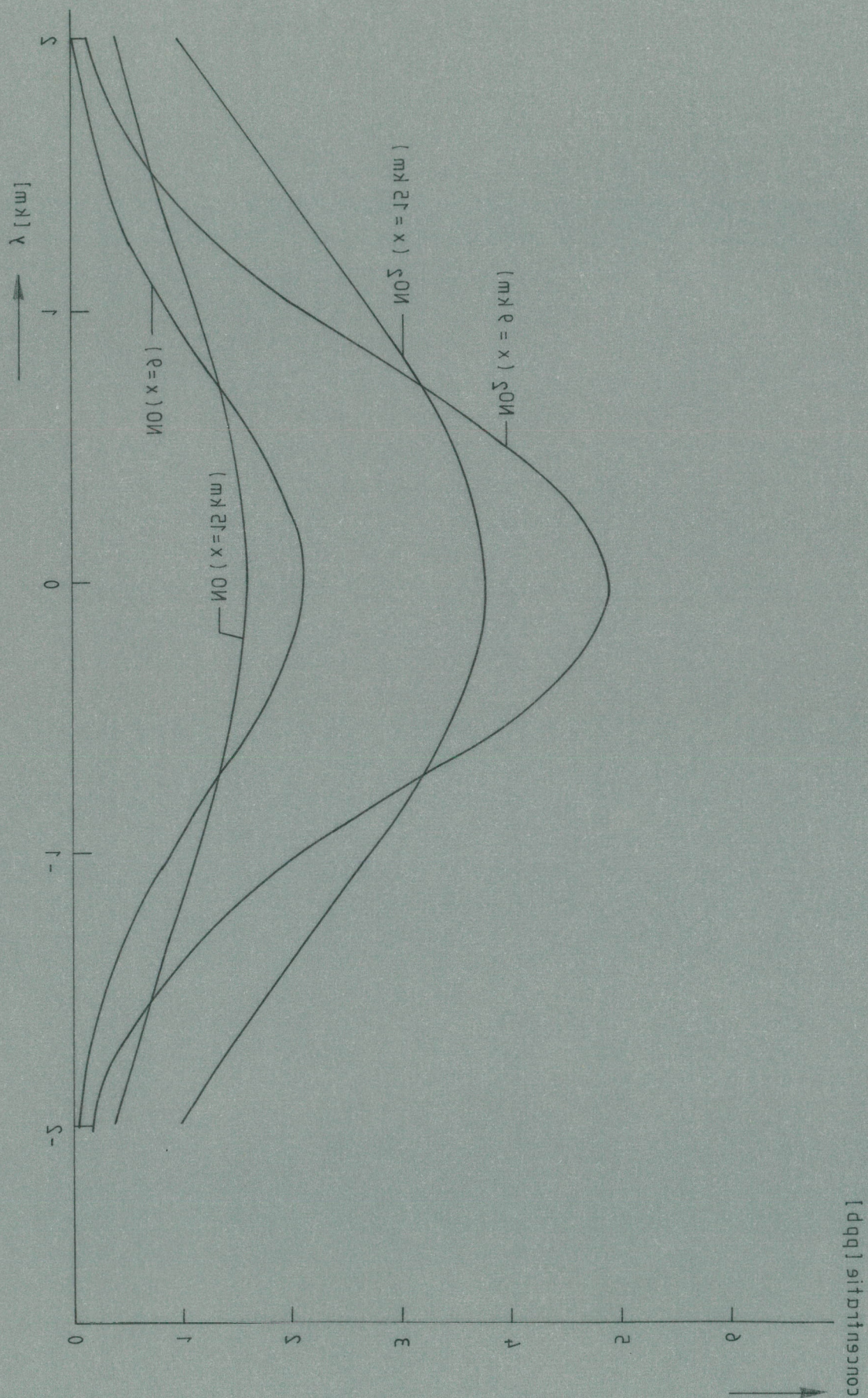


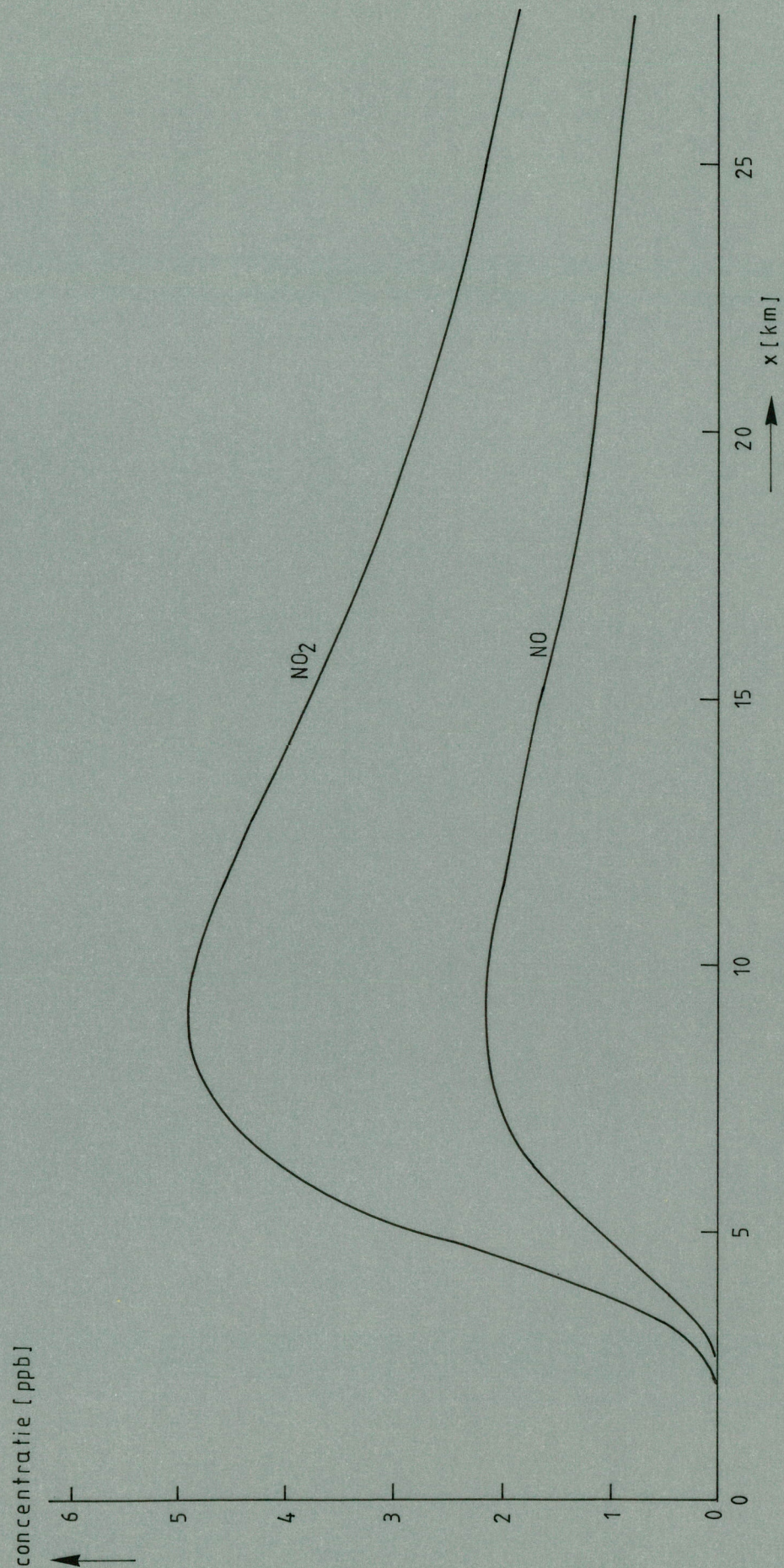
Berekende dwarsprofielen van grondconcentraties van NO en NO₂ inclusief droge depositie als functie van de afstand tot de bron voor test case I

MT-TNO
50055
Fig.7.1

Berekende dwarsprofielen van grondconcentraties van
 NO en NO_2 inclusief droge depositie als functie van de
 afstand tot de bron voor test case I

Fig. 7.1
 20025
 MT-TNO



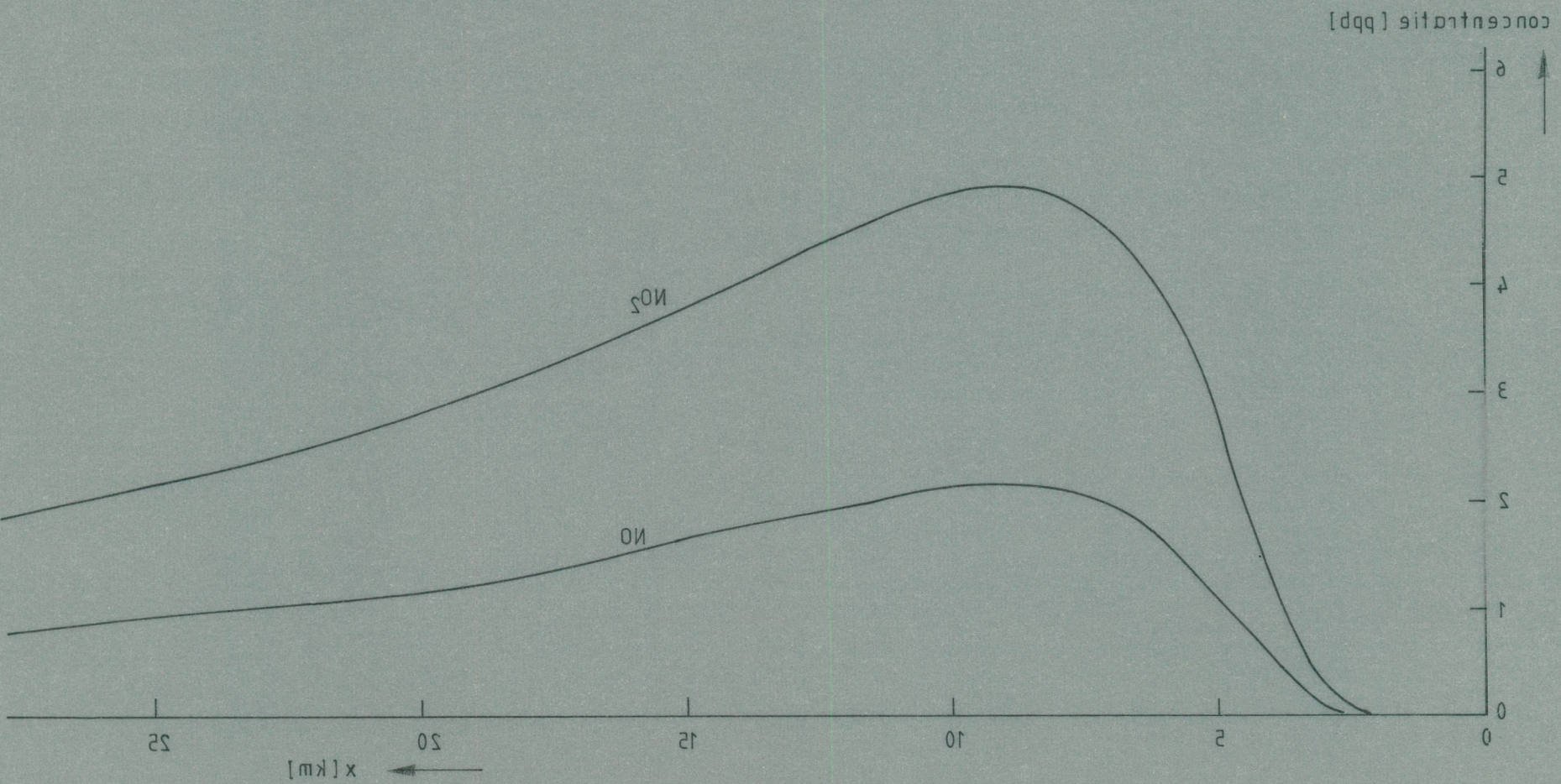


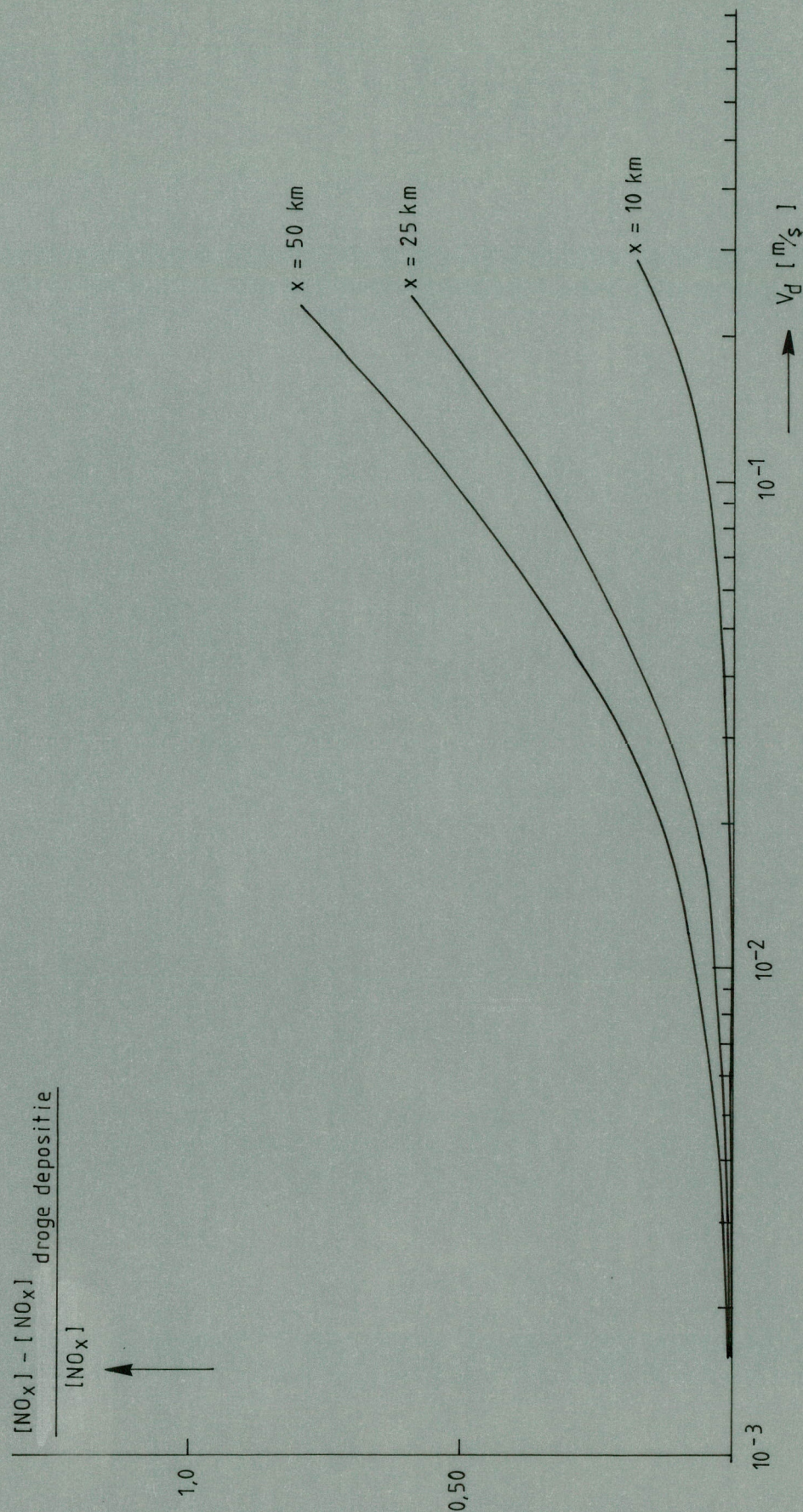
Berekende grondconcentraties van NO en NO_2 inclusief droge depositie als functie van de afstand tot de bron voor test case I

MT—TNO
50055
Fig.7.2

voor test case I
 droge depositie als functie van de afstand tot de bron
 Berekende grondconcentraties van NO en NO₂ inclusief

Fig. 7.5
 20025
 M1—TNO

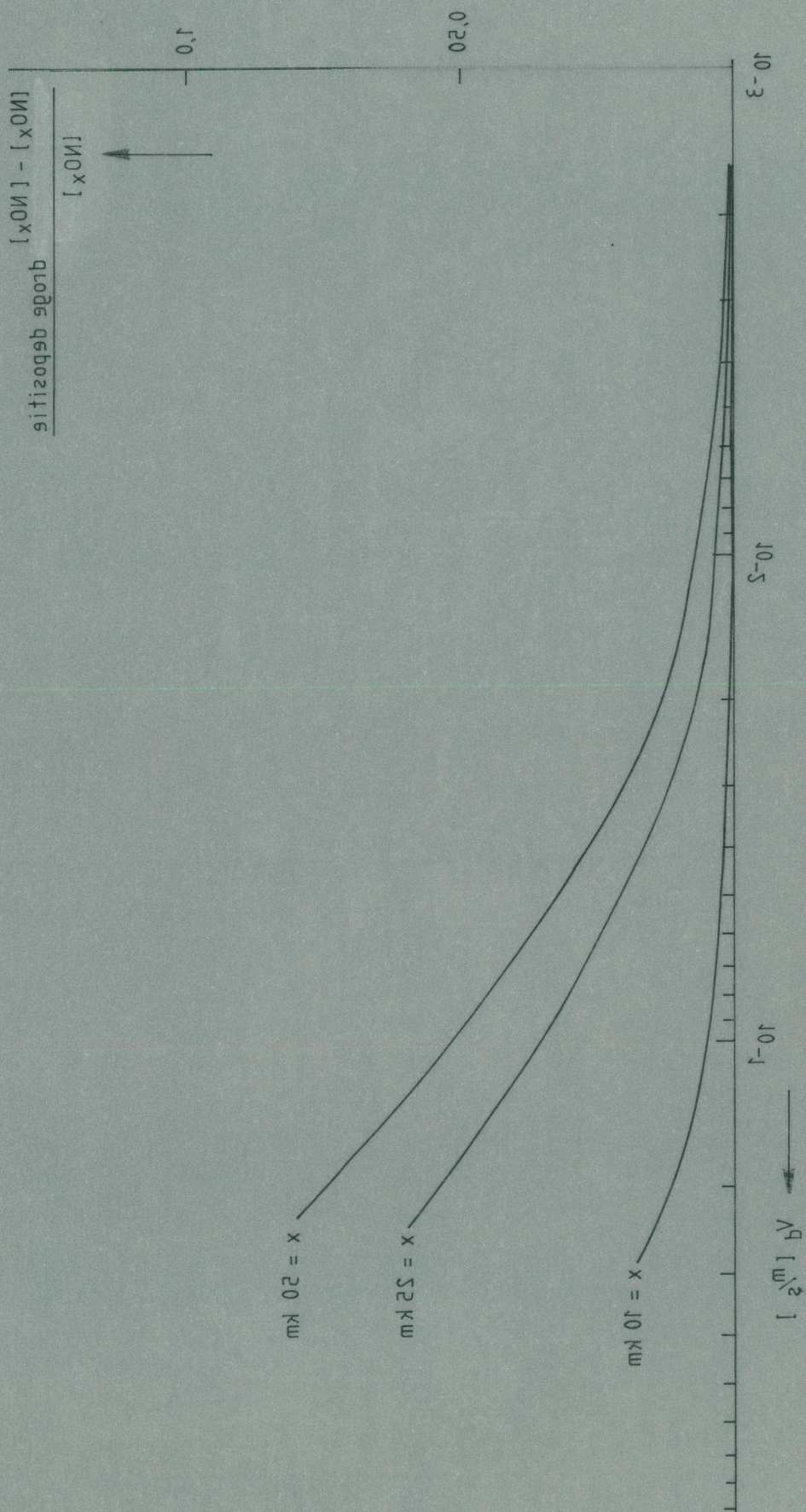


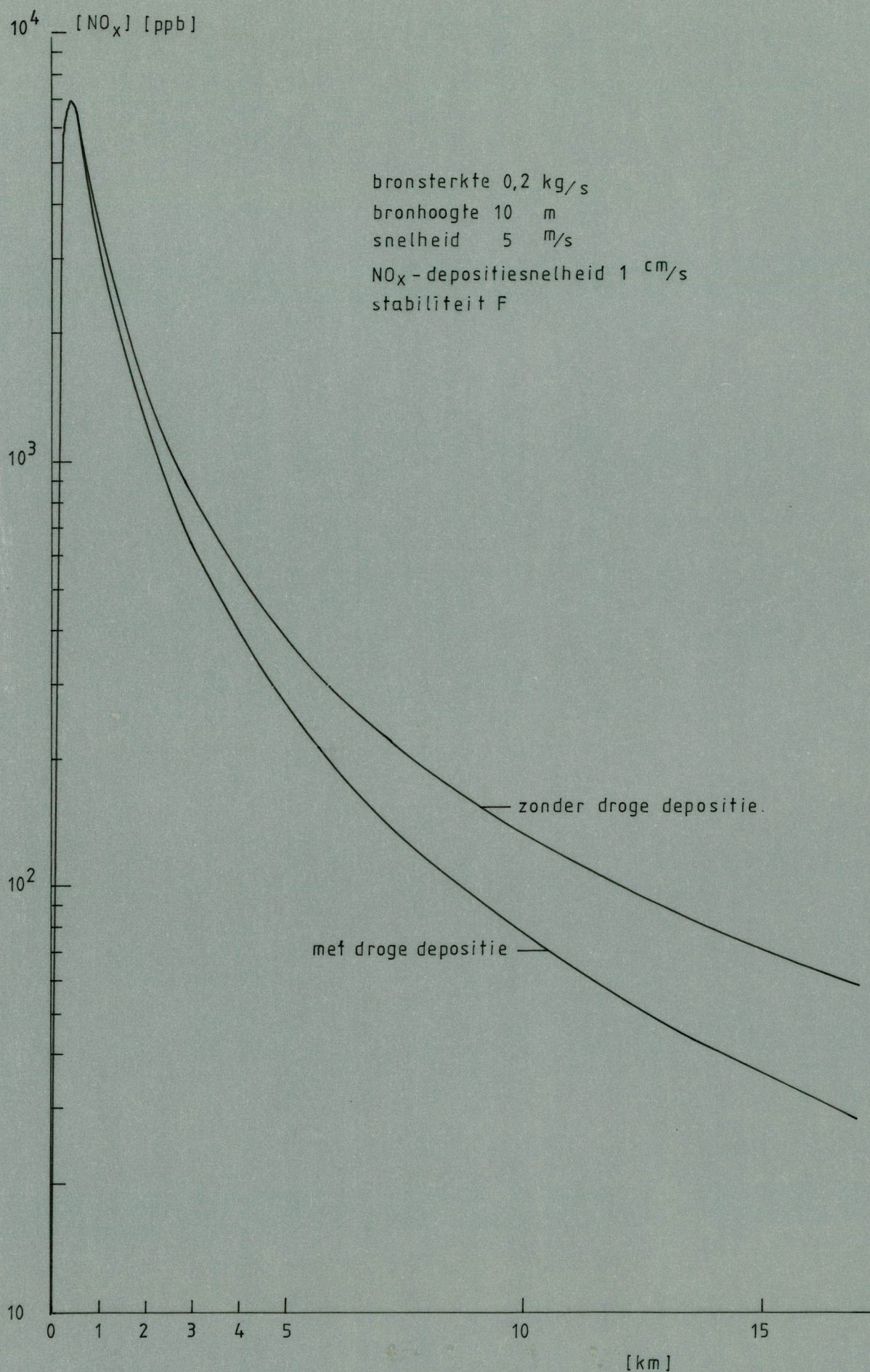


De invloed van de depositiesnelheid van NO_x op de NO_x -grondconcentratie voor verschillende afstanden tot de bron, berekend voor test case I

MT - TNO
50055
Fig. 7.3

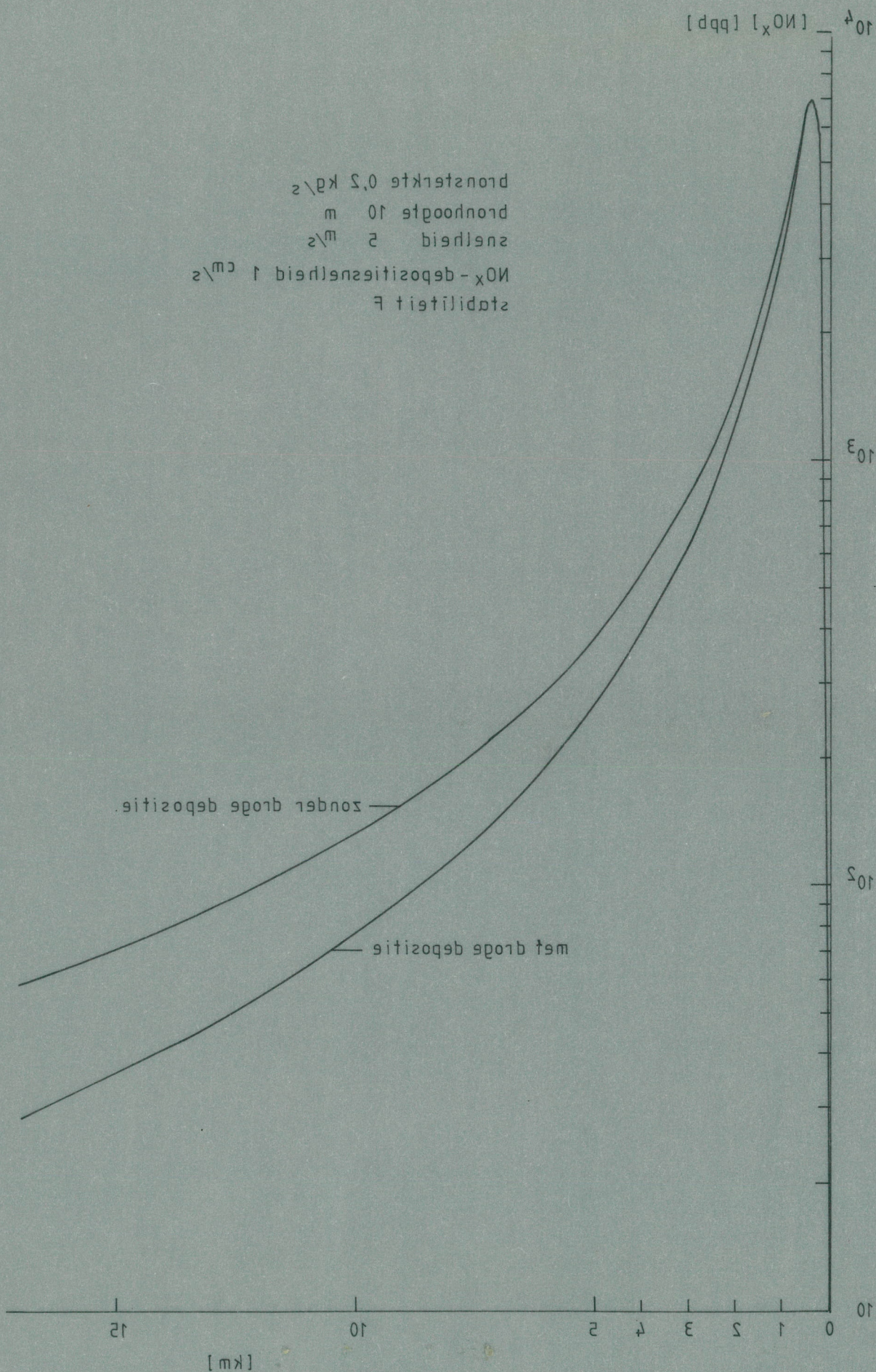
De invloed van de depositiesnelheid van NO^x op de
 NO^x -grondconcentratie voor verschillende afstanden
tot de bron berekend voor test case I





Invloed van droge depositie op de NO_x-grondconcentratie voor een lage bron

MT-TNO
50055
Fig. 7.4



Invloed van droge depositie op de NO_x-concentratie voor een lage bron

MT-TM
 20022
 Fig. 74

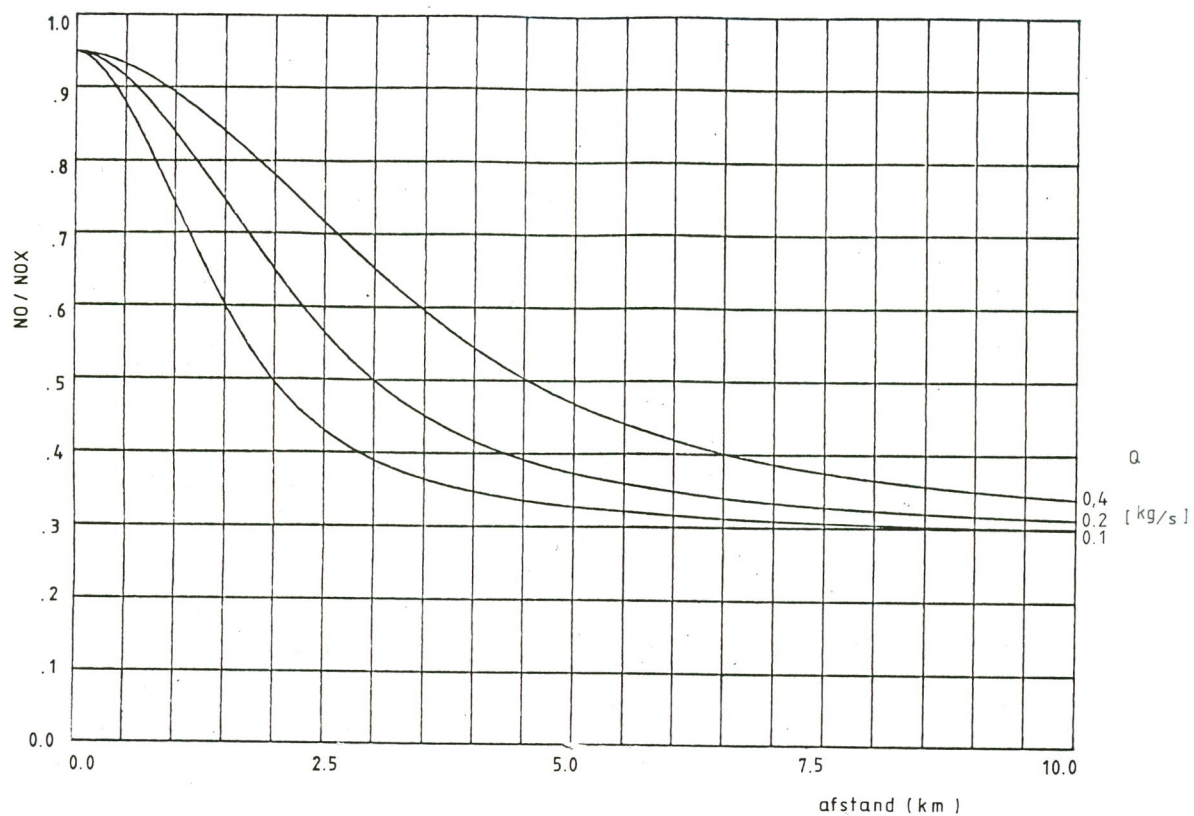


Fig. 7.5 De invloed v.d. bronsterkte Q op NO/NO_x op pluimhoogte als functie van de afstand tot de bron voor test case I

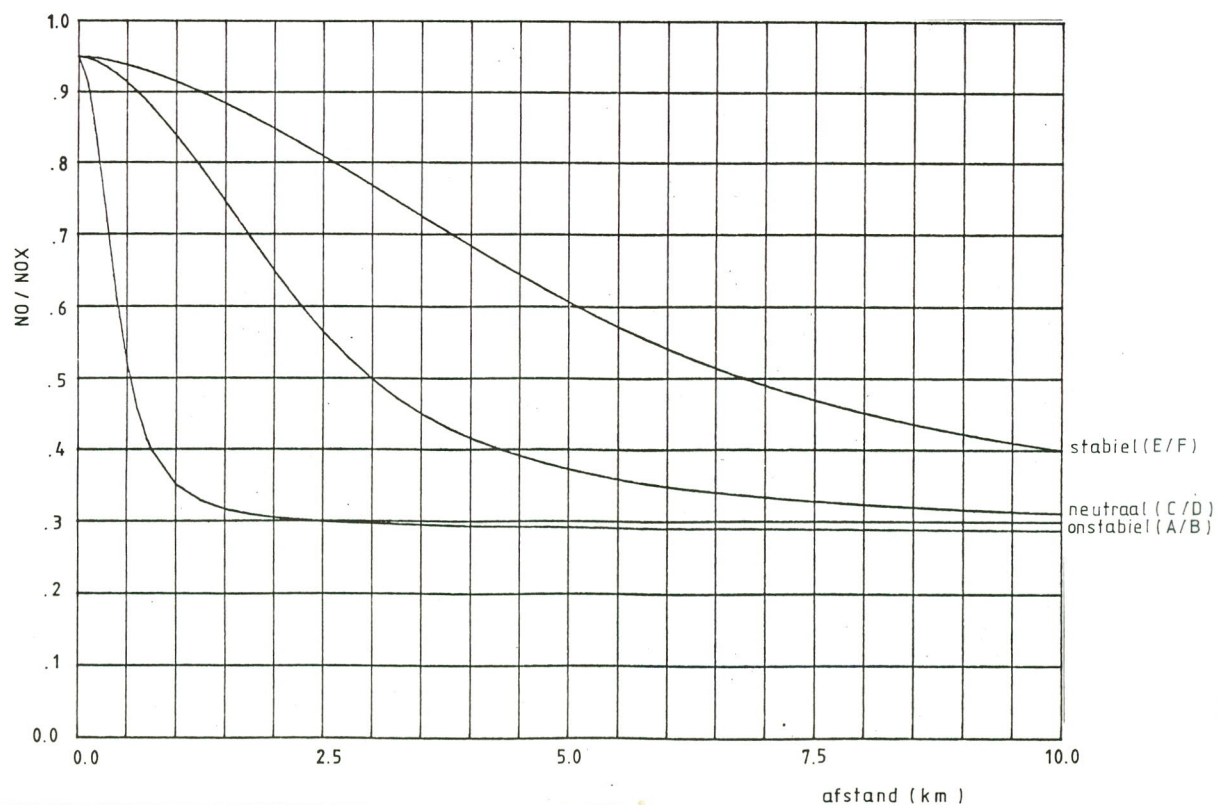


Fig. 7.6 De invloed v.d. atmosferische stabiliteit op NO/NO_x op pluimhoogte als functie van de afstand tot de bron voor test case I



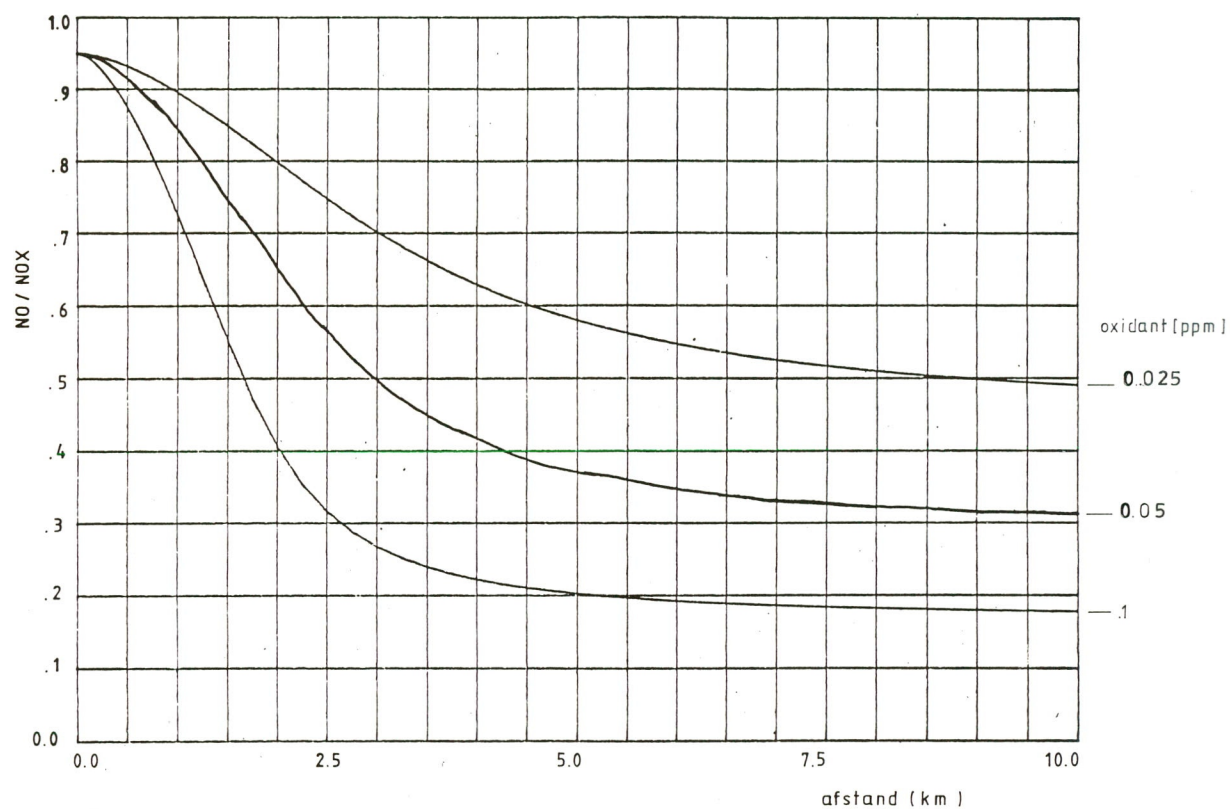
Fig. 7.2



Fig. 7.6

als

Fig. 7.2 + 7.6
20022
MT-TNO



De invloed v.h.oxidantniveau op NO/NO_x op pluimhoogte
functie van de afstand tot de bron voor test case I .

MT — TNO
50055
Fig. 7.7

Fig. 7.7
50052
MT-TNO

