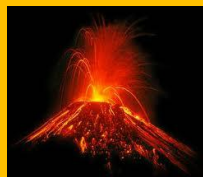
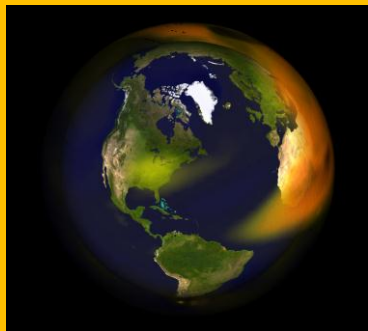


Models integrats *online*.

Una nova metodologia en l'estudi de les interaccions entre
la meteorologia i la química dels aerosols

Anna Carpio Gabañach



A l'Alex.

Models integrats *online*.

Una nova metodologia en l'estudi de les interaccions entre
la meteorologia i la química dels aerosols

Autora: Anna Carpio Gabañach
hannacarpio@gmail.com
Màster en Meteorologia

Directora: M^a Rosa Soler Duffour
Dra. rosa@am.ub.es
Facultat de Física, UB

Índex:

1: Introducció	6
2: Models atmosfèrics meteorològics, químics i de transport	7
2.1 Classificació i enfoc dels models	7
2.1.1 Models Eulerians i Lagrangians de la qualitat de l'aire	9
2.2 Model offline	10
2.2.1 Descripció del model offline	10
2.2.2 Avantatges i inconvenients dels models offline	10
2.3 Model online	12
2.3.1 Concepte i necessitat	12
2.3.2 Evolució fins a l'estat actual	14
2.3.3 Metodologia	15
2.3.4 Avantatges i limitacions	17
2.3.5 Camps d'aplicació	18
3: Aerosols i feedbacks	20
3.1 Concepte general	20
3.2 Fonts d'aerosols	20
3.2.1 Fonts primàries i secundàries	20
3.2.1.1 Pols industrial	21
3.2.1.2 Pols de sòl	21
3.2.1.3 Aerosols carbonatats (carbó negre i orgànic)	22
3.2.1.4 Aerosols biogènics	22
3.2.1.5 Sal marina	22
3.2.1.6 Sulfats	22
3.2.1.7 Nitrats	23
3.3 Feedbacks directes associats als aerosols	23
3.3.1 Propietats òptiques dels aerosols	23
3.3.2 Forçament radiatiu directe	23
3.3.3 Forçament radiatiu semi-directe	25
3.3.4 Resum dels feedbacks aerosol-radiació	25
3.4 Feedbacks indirectes associats als aerosols	27
3.4.1 Evidència observacional dels feedbacks indirectes	27
3.4.2 Aerosols com a nuclis de condensació	27
3.4.3 Concentració del nombre de gotes	28
3.4.4 Aerosols, nuvolositat i efectivitat en la precipitació	28
3.4.5 Nuclis de gel	29
3.4.6 Resum de la interacció aerosol-núvol i efectes indirectes associats	30
4: Classificació descriptiva dels models online integrats	31
4.1 AQUM	32
4.2 BOLCHEM	36
4.3 Enviro-HIRLAM	40
4.4 MC2-AQ	44
4.5 GEM-AQ	47
4.6 MCCM	51
4.7 MESO-NH	55
4.8 TAPM	59
4.9 COSMO LM-ART	62
4.10 COSMO LM-MUSCAT	66
4.11 WRF-Chem	69
4.12 ICLAMS	74
4.13 IFS-MOZART	78
4.14 CAM3	82

5: Casos d'estudi	86
5.1- WRF-Chem: avaluació de l'impacte dels aerosols a la regió de Nord Amèrica durant un episodi de tres dies, l'any 2004.	86
5.2- WRF-Chem: estudi dels efectes dels aerosols a diversos punts d'Amèrica del nord els mesos gener i juliol de l'any 2001.	88
6: Conclusions	91
Apèndix A: Equació de govern del model integrat online	93
Apèndix B: Llista d'acrònims	97
Bibliografia	101

1 Introducció

Descripció del problema científic

Malgrat que la química, la pol·lució de l'atmosfera que ens envolta i la diversitat de fenòmens meteorològics que la constitueixen han estat durant molt de temps tractats com a problemes independents, el bon coneixament de la seva relació i les conseqüències que se'n deriven es troba cada vegada més desenvolupada. El constant alliberament d'agents gasosos contaminants o partícules de matèria (PM) via fonts antropogèniques (i.e., processos de combustió, crema de biomassa, ús del sòl) i naturals (e.g., processos d'evaporació, incendis forestals, emissions volcàniques) acabarà influenciant ja de manera directa o indirecte el clima global degut a la profunda alteració d'una sèrie de factors meteorològics (i.e., temperatura, vent, nuvolositat, precipitació) i la modificació de reaccions químiques atmosfèriques (i.e., procés de creació i destrucció natural de l'ozó, fotòlisi del diòxid de nitrogen) representant d'aquesta manera un agreujament de la qualitat de l'aire amb substancials efectes sobre la salut així com una desviació de la tendència climatològica sobre una determinada regió.

Necessitat de l'ús dels models online integrats

Tradicionalment, els models meteorològics i de transport químic atmosfèric han estat executats dins un marc teòric independent en el qual les dades de sortida simulades per un model meteorològic de predicció (NWP) descrivint l'estat dinàmic de l'atmosfera són emprades per a conduir els càlculs del transport i la química d'aerosols i altres agents gasosos contaminants d'un model químic de transport (CTM). Els models que operen seguint aquesta metodologia són els anomenats models offline. Una xarxa de modelització que faciliti les simulacions integrades online és altament desitjable perquè per una banda proveeix un tractament concís dels processos dinàmics i redueix els càlculs redundants; d'altra banda permet acoblar les simulacions dinàmiques i químiques a passos de temps més petits obtenint resultats més consistents; en tercer lloc disminueix els requisits de memòria d'emmagatzematge típicament més elevada en els models offline i en darrer lloc perquè posseeix la capacitat de representar i avaluar els efectes radiatius dels aerosols i els seus efectes en la microfísica dels núvols (feedbacks directes i indirectes).

Objectius del treball

L'objectiu principal d'aquest projecte d'estudi és introduir el lector a l'innovador món dels models online integrats i la seva importància en el tractament de *feedbacks* atmosfèrics relacionats amb la presència dels aerosols a través d'una extensa revisió bibliogràfica.

Per una banda, en el capítol 2 es realitzarà una breu introducció a tres metodologies de models emprats actualment en funció del seu grau d'acobalment (offline, online integrats i online d'accés) per a tractar qüestions relacionades amb la qualitat de l'aire i el transport de contaminants, i d'altra banda s'aprofunditzarà en el concepte dels models online integrats citant constantment referències bibliogràfiques per a confirmar la font de la informació proporcionada i per a complementar amb informació addicional la matèria d'estudi en cada moment.

El capítol 3 l'he dedicat a l'estudi dels diferents feedbacks atmosfèrics resultants de les emissions, bé naturals o antropogèniques, de les partícules d'aerosols així com també el seu impacte en el clima global i regional.

En tercer lloc, en el capítol 4 es presenten 17 models meteorològics online amb les seves característiques principals meteorològiques i químiques així com referències bibliogràfiques de casos d'estudi per a cada model.

Finalment, en el capítol 5 exposo dos casos d'aplicació del model *Weather Research and Forecasting* integrat online (WRF/Chem) per tal de mostrar la importància dels feedbacks (directes i indirectes) a la capa límit resultants de l'emissió i transport de gasos contaminants i aerosols a l'atmosfera.

2 Models atmosfèrics meteorològics, químics i de transport

2.1 Classificació i enfoc dels models

El criteri per a la selecció del model atmosfèric més apropiat per un cas d'estudi específic sol ser usualment el següent:

- ▲ Models de diagnòstic o de pronòstic.
- ▲ La classe de variables i escalars que són objecte d'estudi.
- ▲ L'escala espacial i temporal dels processos atmosfèrics que involucren els contaminants.
- ▲ La orografia de l'àrea d'interès.

En una primera classificació, els models de qualitat de l'aire poden ser agrupats en dos categories ben diferenciades: els models de diagnòstic i els models de pronòstic. En els primers s'estimen els camps de les variables meteorològiques/químiques a partir de dades observacionals/d'emissions recopil·lades en estacions de monitoreig emprant mètodes d'interpol·lació; en els segons en canvi els paràmetres són calculats a partir de la resolució numèrica de les equacions primitives que descriuen la dinàmica atmosfèrica. És a dir, mentre que els models de pronòstic utilitzen equacions diferencials per tal de descriure l'evolució d'una variable al llarg del temps, els de diagnòstic eliminen completament la dependència temporal de les equacions i permeten conèixer l'estat d'aquesta variable en un instant determinat. Dins els models de pronòstic cal diferenciar els hidrostàtics dels no-hidrostàtics. En els primers s'assumeix que la gravetat i la pressió són les dues úniques forces importants en l'equació del moviment en la vertical. Aquesta aproximació permet simplificar el càlcul del sistema d'equacions primitives considerablement resultant vàlid per escales horitzontals superiors a 10 km. En els segons en canvi, la component vertical de l'equació del moment és resolta conjuntament amb la resta d'equacions sense realitzar-hi cap aproximació. Degut que aquests darrers no presenten limitacions d'escala, solen ser més adequats que els hidrostàtics en aplicacions de la qualitat de l'aire. La capacitat dels models de pronòstic per a resoldre les circulacions atmosfèriques a escala regional i local només es veu limitat pels recursos computacionals disponibles, i en comparació amb els de diagnòstic no requereixen una extensa base de dades observacionals i presenten una gran sensibilitat alhora de realitzar simulacions per a l'estudi de processos físics individuals.

Els models també poden ser agrupats d'acord amb l'escala espacial dels processos atmosfèrics representats. Els models de micro-escala per una banda, són usualment seleccionats per estudiar fenòmens a menys d'1km de resolució, com per exemple, la generada degut a la presència d'obstacles (i.e., edificis) dins un àmbit urbà. D'altra banda, els models de meso-escala, tenen un paper molt important en l'estudi de la quantificació de la concentració i deposició de contaminants acidificats (e.g., sulfur i nitrogen) o foto-oxidants (e.g., l'ozó a escala regional i nacional) a la vegada que són altament considerats per a tractar metalls pesants, contaminants orgànics i aerosols. Finalment, els models d'escala global, són aplicats a l'estudi de fenòmens a una escala continental o global com ara el transport a llarga distància de contaminants i la seva interacció amb el clima. Ara bé, aquests no poden resoldre aspectes de dispersió (i.e., influència dels efectes d'un edifici o una petita elevació de terreny sobre un punt proper). Així com els models de mesoescala cobreixen dels pocs als centenars de km, aquests darrers abasten des de centenars de km a milers.

Una distinció més a tenir en compte és la seva classificació segons l'escala temporal. Així, en un primer lloc es parla dels models per realitzar pronòstic a curt termini els quals són generalment emprats per a simulacions d'episodis durant un petit període de temps (dies) i caracteritzats principalment per nivells inusualment elevats de la pol·lució (i.e., ADREA [Bartzis, 1991,1993], *Multiscale Model Sistem* (M-SYS) [Trukenmüller, 2004], *NMMB/BSC Chemical Transport Model* (NMMB/BSC-CTM) [Jorba, 2012]). En un segon lloc, es disposa dels models a llarg termini per estudiar episodis durant un major període de temps (i.e., 1 any) per tal de donar informació de percentils o mitjanes anuals a ser comparades amb nivells estàndards de qualitat de l'aire (i.e., STOCHEM (HadAM3) [Stevenson, 2004], *ECHAM5/MESSy Atmospheric Chemistry Model* [Jöckel, 2006]).

En casos d'orografia no particularment complexa, els models de plomall Gaussià també resulten una molt bona opció de treball (Tsuang, 2003). Històricament, han estat àmpliament emprats per a propòsits regulatius. La parametrització de dispersió es basa sovint en coeficients empírics (categories d'estabilitat de Pasquill o Gifford). Una particularitat d'aquests models és que necessiten poques dades meteorològiques inicials i recursos força limitats computacionals. Si la orografia del terreny a considerar en canvi, resulta més complexa, l'ús de models 3-D Lagrangians i Eulerians és la preferida.

Taula 1. Taula comparativa de tots els models disponibles a l'inventari de COST728 en funció de l'escala i la classe de variables/escalars objecte d'estudi (veure: www.cost728.org).

Escala	NWP	CTM	NWP-CTM
Microescala	ADREA Chensi GEM-AQ LESNIC M-SYS M2UE MERCURE MIMO MITRAS Meso-NH RCG STAR-CD VADIS	ADREA AERMOD AUSTAL2000 Chensi FINFLO GEM-AQ M-SYS M2UE MERCURE MICTM MIMO MITRAS Meso-NH NAME RCG SRAR-CD VADIS	ADREA AERMOD AERMOD_Urban Chensi GEM-AQ M-SYS M2UE MERCURE MIMO MITRAS Meso-NH RCG STAR-CD VADIS
Mesoescala	ADREA ALADIN ALADIN/A ALADIN/PL AQUAM ARPS BOLAM CALMET CALGRID CLM COSMO-2 COSMO-7 FVM GEM/LAM GESIMA GME GRAMM Hirlam HRM Lokalmodell LAMI LAPS Lokalmodell LME LME_MH LMK MC2 MEMO (UoA-PT) MEMO (UoA-PT) MERCURE MESO_NH METRAS MINERVE MM5 (UoA-GR) MM5 (UoA-PT) MM5 (UoH-UK) MM5(GKSS) NHHIRLAM RAMS SAIMM TAMOS TRAMPER UM WRF_ARW	ADMS-Urban AERMOD ALADIN-CAMx ARGOS AURORA AUSTAL2000 CAC CALGRID CALPUFF CAMx CHIMERE CHIMERE(ARPAIT) CMAQ CMAQ(GKSS) DERMA EMEP EPISODE EURAD-IM FARM FLEXPART FVM GEM-AQ GEOS-CHEM GRAMM HYSPLIT LOTOS-EUROS LPDM MARS (UoT-GR) MATCH MECTM MOCAGE MUSE NAME OFIS Polyphemus RCG SILAM SPRAY TAMOS TCAM TREX UAM-V	BOLCHEM CALMET/CALPUFF CALMET/CAMx ENVIRO-HIRLAM GEM/LAM-AQ M-SYS MC2-AQ COSMO LM-ART COSMO LM-MUSCAT MCCM MEMO (UoT-GR) MERCURE Meso-NH RCG OPANA TAPM WRF/Chem GATOR/GCMOM
Global	GEM GME Hirlam TAMOS UM	CAC CAM-CHEM CHIMERE CHIMERE(ARPAIT) DERMA EMAC EMEP EURAD-IM FLEXPART FLEXPART/A GISS-PUCCINI	Caltech UM CAM3 ECHMERIT EMAC ENVIRO-HIRLAM GEM_AQ MIRAGE2 STOCHEM-HadAM3 UM CAM

		GEM-AQ GEOS-Chem GLEMOS GOCART IMPACT LPDM MATCH MOCAGE MOZART MSCE-POP NAME OsloCTM SILAM STOC HadAM STOCHEM TAMOS TCAM TM5 TOMCAT UKCA UM CAM	
--	--	---	--

2.1.1 Models Eulerians i Lagrangians de la qualitat de l'aire

Els models de dispersió de la qualitat de l'aire poden ser classificats en dos grans grups en funció de com enfoquin l'estudi alhora de tractar la zona afectada per l'emissió dels agents contaminants (Jacob, 1999): els models Eulerians i els models Lagrangians.

Les concentracions de contaminants en un model Eulerià són representades per una distribució espacial en una xarxa tridimensional de punts en un instant de temps determinat; contràriament, un model Lagrangian simula l'evolució d'una parcel·la o columna d'aire al llarg d'un fluid, és a dir, n'estudia la trajectòria al llarg d'un cert període de temps. Així doncs, mentre que en el model Eulerià les equacions de la dinàmica atmosfèrica són resoltes per a cada cel·la definida dins la xarxa de punts sota el domini del model, en el Lagrangian la meteorologia és utilitzada per advectar partícules individuals d'aire a cada pas de temps al llarg d'una trajectòria seleccionada. A la figura 1 es poden veure representades ambdues modalitats de treball.

Mentre que els models Lagrangians resulten extremadament ràpids (i.e., en el cas de FRAME el temps d'execució per a la simulació al llarg d'un any és de l'ordre de minuts) i són majoritàriament emprats per a estudiar episodis a llarg termini (i.e., estimació de concentracions anuals), els models Eulerians són particularment efectius en resoldre equacions químiques i dinàmiques d'ordre elevat a cada pas de temps per a cada punt de la xarxa. D'una banda, aquest tractament de les equacions primitives permet obtenir resultats molt detallats ja que inclou els processos meteorològics i químics atmosfèrics més rellevants, malauradament però, el detall aconseguit provoca una disminució del rendiment computacional. Altres inconvenients de treballar amb l'enfoc Eulerià són la dificultat alhora de determinar la font d'emissió (el model assumeix que les partícules es troben contínuament distribuïdes dins la cel·la) i temps més llargs d'execució (i.e., en el cas de CMAQ per a un any de simulació és de setmanes). Una conseqüència directe d'aquest darrer cas és l'ús dels models Eulerians preferentment en l'estudi de períodes relativament curts de temps. A diferència dels models Lagrangians, els Eulerians sí que requereixen dades meteorològiques i d'emissió inicials, tant espacials com temporals.

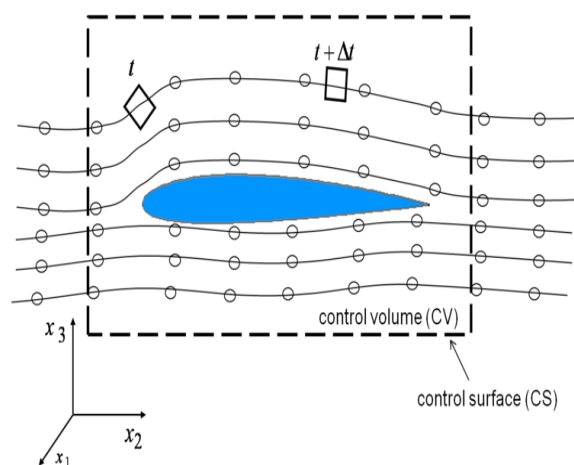


Figura 1: Comparació entre l'enfoc Eulerià i Lagrangian, i enfoc diferencial vs. integral

Exemples representatius de models químics de transport per a l'estudi de la qualitat de l'aire Eulerians són EMEP, MERCURE, CHIMERE, CMAQ i el CAMx. D'altres, com ara el GRAL, NAME, STOCHEM i el HARM resolen les equacions primitives segons un enfoc Lagrangian.

2.2 Model offline

2.2.1 Descripció del model offline

Fins a cavallades dels 1970's els camps de la predicció numèrica del temps i de la modelització de la qualitat de l'aire han estat dues comunitats de recerca i modelatge ben independents. Les estratègies més emprades en el camp de la simulació del transport químic i la qualitat de l'aire han estat la utilització de models químics de transport (CTMs) bé conduïts per la sortida d'un model d'emissió i per la sortida de dades meteorològiques de meteo-preprocessadors, mesures observacionals o models de diagnòstic; bé per la lectura de fitxers de sortida d'un model operacional numèric de predicció o models meteorològics específics (MetMs) a intervals limitats de temps (e.g., 1, 3, 6 hores); o bé conduïts per camps de dades meteorològiques analitzats a resolucions temporals més àmplies (e.g., 6 hores o més).

Aquest concepte de model simplificat només és capaç de proporcionar informació dels principals agents contaminants atmosfèrics més significatius per els seus efectes sobre la salut (i.e., CMAQ [Byun i Chin, 1999]), però en canvi no permet tenir en compte les diferents retroalimentacions (*feedbacks*) entre els camps de la meteorologia i la química per tal d'estudiar i predir de la manera més realista possible la variabilitat del temps i la composició atmosfèrica així com l'evolució del canvi climàtic.

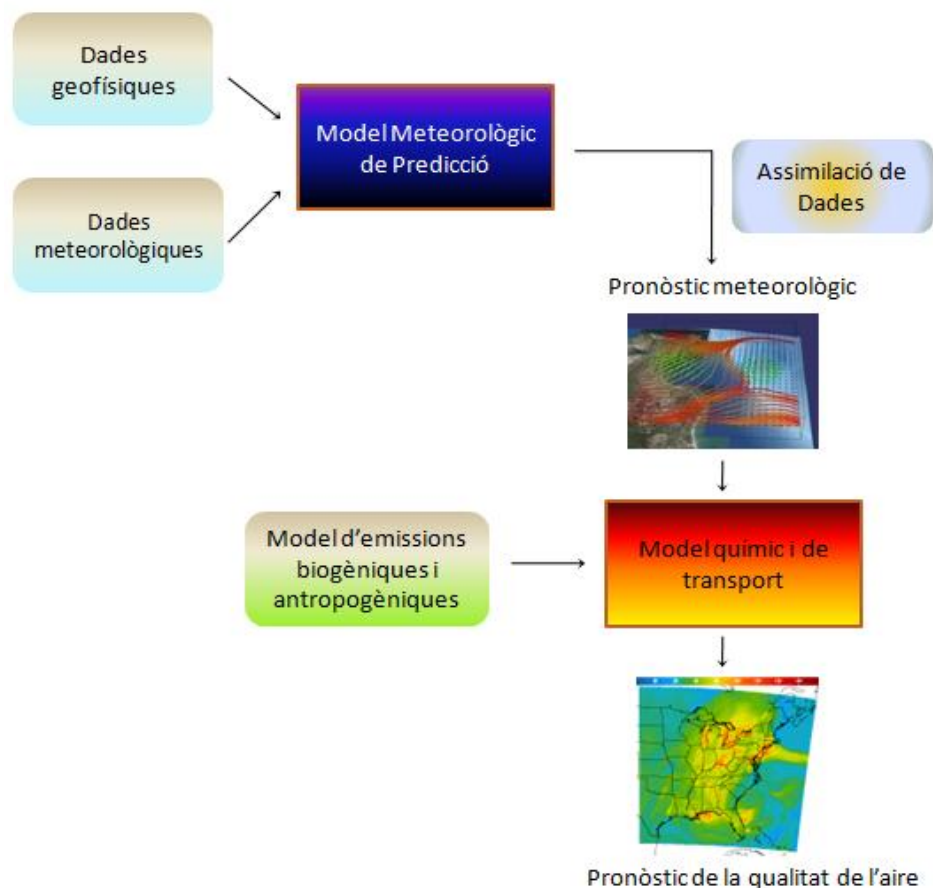


Figura 2: Esquema del funcionament d'un model offline.

2.2.2 Avantatges i inconvenients dels models offline

La modalitat offline només permet una única direcció (one-way) d'acoblament entre la meteorologia i la química a través d'intervals de temps fixats de manera que la majoria de processos resultants de la interacció entre aquests dos camps són ignorats. Com es pot observar a la figura 2 inicialment un model meteorològic és executat independentment del model químic de transport per tal de generar els camps meteorològics que posteriorment seran utilitzats per a representar-hi la distribució de les concentracions dels contaminants subministrades per un model d'emissions així com també la trajectòria evolutiva d'aquestes en el cas que s'operi amb un model de predicció.

Per tant, les dades de sortida del model meteorològic, típicament disponibles una vegada cada hora, seran subseqüentment utilitzades per conduir el transport a la simulació química. Els camps meteorològics generats pel model numèric són generalment valors instantanis que seran interpolats en l'espai i el temps pel model químic de transport. Tots els CTMs operant offline són capaços de tractar processos tant químics com físics, descrivint en particular el mode en què gasos, líquids i sòlids interactuen entre sí amb l'atmosfera així com amb la superfície terrestre i la biota associada, incloent la descripció de processos clau de transport (i.e., advecció i difusió) així com processos associats a fonts i embornals (i.e., deposició i emissió). Tot i que aquesta metodologia presenta certs avantatges que posteriorment seran discutits, la separació d'ambdós camps pot comportar una pèrdua potencial molt important d'informació sobre els processos atmosfèrics que sovint es desenvolupen a una escala de temps molt més petita que la freqüència de sortida del model meteorològic (i.e., velocitat i canvis direccionals del vent, formació de nuvolositat i precipitació) a la vegada que no permetran considerar els *feedbacks* entre els canvis en la modelització de la composició atmosfèrica i els camps físics meteorològics. Actualment, la única via per tal de tenir en compte les retroalimentacions entre processos associats a la pol·lució de l'aire i a la meteorologia és mitjançant els models online, on els models químics de transport i els models numèrics de predicció es troben units dins un mateix model o bé acoblats via una interfície. Alguns exemples de diferents acoblaments poden ser trobats a Korsholm et al (2009), Spracklen et al., (2005) i Grell et al (2004).

Tot i les limitacions esmentades, els models offline són econòmicament més atractius per aquells casos en els quals el paquet de dades meteorològiques es troba directament disponible de manera que ja no resulta necessària l'execució del model. També resulten de particular interès en agències reguladores les quals necessiten dur a terme simulacions sota diversos supòsits químics com ara l'entrada d'emissions i requereixen operar amb una major sensibilitat. Existeix també una major flexibilitat alhora d'especificar els *ensembles* amb un model offline a un preu computacional més reduït resultant particularment útil en activitats operacionals i també en aquells casos en els quals és necessària una resposta ràpida i els *ensembles* han de ser immediatament executats. Ja per a concloure, l'ús dels models offline esdevé també més adequat en l'anàlisi d'escenaris d'emissió, per a la gestió de la qualitat de l'aire, i per tal d'aconseguir agilitzar i reduir l'error en el càlcul de paràmetres en el modelatge invers (i.e., estimació de fluxes de gasos d'efecte hivernacle [Kim et al., 2010]).

En un estudi conduït per Anderson et al. l'any 2007 (figura 3), un model químic de transport offline (MATCH) a escala regional és emprat per a investigar la contaminació de l'aire a Europa utilitzant dades de reanàlisi (ERA40) com a conductor meteorològic. L'estudi mostra com per al període 1979-2001 les condicions meteorològiques i climàtiques han repercutit de manera significativa sobre la formació d'ozó (O_3), veient-se incrementada la seva concentració a les regions sud-central i sud-oest d'Europa però disminuint en canvi a la zona nord-est d'aquesta. L'equip d'Anderson va atribuir aquesta variabilitat als canvis físics de la temperatura, vent, cobertura nuvolosa i estabilitat de la capa límit planetària així com l'alteració de reaccions químiques fotolítiques (fotòlisi del seu precursor: diòxid de nitrogen [NO_2]) degut a una modificació de la radiació solar i la temperatura a causa de la presència d'aerosols.

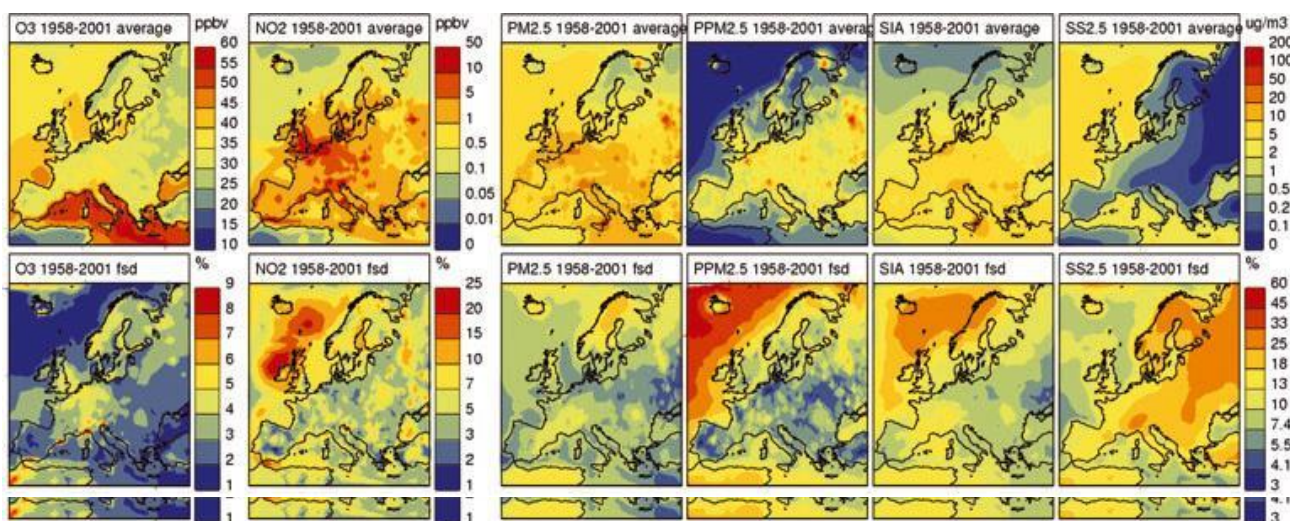


Figura 3: Concentració s'ozó mitjana i concentració anual de diòxid de nitrogen (NO_2), $PM_{2,5}$, $PM_{2,5}$ primàries, aerosols secundaris inorgànics (SIA) i sal marina ($SS_{2,5}$) (unitats: O_3 , NO_2 : ppbv; $PM_{2,5}$, $PPM_{2,5}$, SIA, $SS_{2,5}$: $\mu g m^{-3}$ pels mesos abril-setembre del període 1958-2001.

2.3 El model online

2.3.1 Concepte i necessitat

La simulació i la predicció de la qualitat de l'aire encara és avui en dia un punt complex a tractar alhora d'avaluar el canvi climàtic i els seus impactes potencials sobre l'atmosfera, ja que tan factors meteorològics (i.e., direcció i velocitat del vent, radiació, núvols i precipitació) com processos químics (i.e., deposició, fotòlisi, catàlisi, foto-oxidació, coagulació i condensació) cal que siguin considerats. A l'atmosfera real, els processos físics i químics es mostren relacionats entre sí (figura 4). La química és capaç d'afectar a la meteorologia, per exemple, desequilibrant el balanç radiatiu (la composició de l'aire així com la concentració de les partícules que el formen poden modificar la quantitat

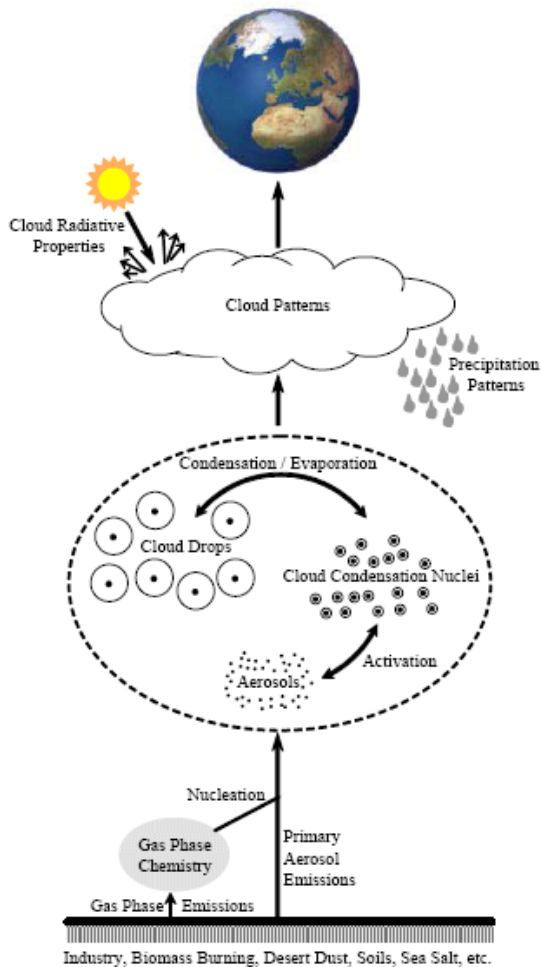


Figura 4: Esquematzació dels processos atmosfèrics resultants de l'emissió de partícules d'aerosols a l'atmosfera. Importància de la necessitat de models online per a l'avaluació del seu impacte climàtic. Extret de Steele [2004].

de radiació solar incident a la superfície), així com també alterant la quantitat de nuvolositat i eficiència en la precipitació mitjançant la interacció entre els aerosols i els nuclis de condensació (CN). En conseqüència, processos d'eliminació i transport de contaminants així com les transformacions d'espècies químiques també es veuran afectats (Rose i Bluth, 2004).

Estudis experimentals demostren que els feedbacks dels aerosols presents a l'atmosfera, alliberats ja de manera natural (i.e., explosions volcàniques, erosió de terrenys secs/àrids pel vent, xoc de les onades a la costa) o antropogènica (i.e., emissió de contaminants d'origen industrial o tècnic, incendis forestals, crema de biomassa i combustibles fòssils), inclouen una alteració de la radiació solar incident en superfície (efecte directe) via dispersió o absorció d'aquesta pels aerosols; un canvi en la temperatura i la velocitat del vent a la superfície/prop de la superfície així com una modificació de la humitat relativa, l'estabilitat atmosfèrica i l'alçada de la capa límit planetària (efecte semi-directe).

Pel mateix contingut d'aigua líquida, un augment de la concentració de les partícules contaminants actuant com a nuclis de condensació afavoreix la formació de gotes de núvol més petites provocant que una major quantitat de radiació en ona curta sigui reflectida de nou cap a l'atmosfera (primer efecte indirecte o efecte albedo). Tenint en compte el grau de creixement dels nuclis de condensació per captació de molècules d'aigua, la grandària de les gotes de núvol se'n veurà modificada i per tant l'efectivitat de la precipitació sobre una determinada regió també (segon efecte indirecte). Aquesta pot veure's afavorida: (Cerveny i Bailing, 1998) o inhibida (Givati i Rosenfeld, 2005). En aquest darrer cas, la precipitació via col·lisió/coalescència serà retardada allargant el temps de vida mitjà del núvol (bàsicament cúmuls i estratocúmuls).

Els models haurien d'incloure no només l'efecte dels contaminants (gasos d'efecte hivernacle i els aerosols) sinó també els feedbacks resultants responsables de la modificació del clima, els processos meteorològics, etc. Tal concepte de model requereix l'existència d'una nova generació de models capaços de combinar la meteorologia amb els processos químics i de transport per tal de predir la composició atmosfèrica i el canvi climàtic, a més a més de la pròpia meteorologia. Aquesta combinació online integrada de models permet utilitzar tots els camps meteorològics tridimensionals dels MetMs en els CTMs a cada interval de càlcul o *time step* i a la vegada considerar els feedbacks dels aerosols atmosfèrics (i.e., aerosols urbans) els quals, com serà discutit més endavant, tenen un gran impacte sobre els processos meteorològics, la composició de l'aire i la química atmosfèrica, així com en la variació del clima.

Aquesta combinació resulta raonable tenint en compte els següents factors :

- » Els efectes dels contaminants, especialment els aerosols, sobre el canvi climàtic i els fenòmens meteorològics (vida mitjana dels núvols, precipitació, tempestes, etc.)
- » Els efectes sobre la salut humana (i.e., al·lèrgies, malalties asmàtiques, mortalitat [figura 5])

Així doncs, per tal de poder dur a terme simulacions i estudis acurats de les retroalimentacions entre aerosols, i entre aerosols i núvols en els processos atmosfèrics és actualment indispensable l'ús de models de qualitat de l'aire integrats online.

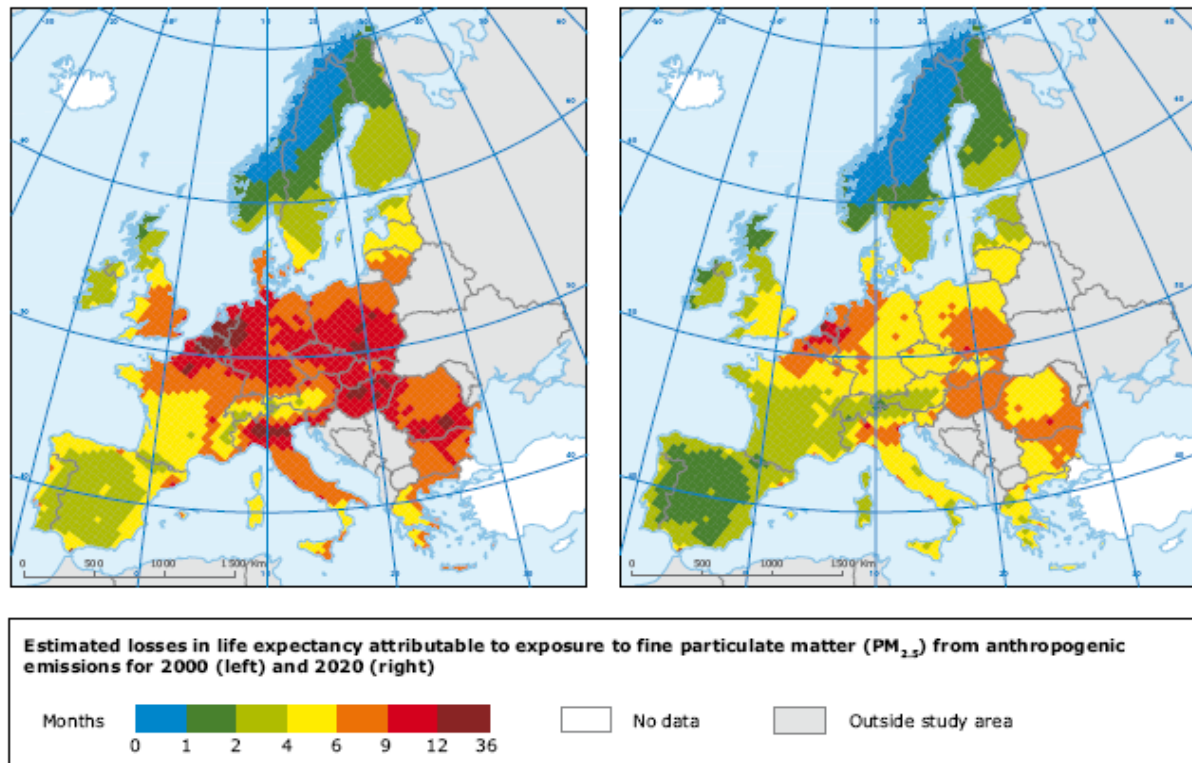


Figura 5: Efectes de la concentració ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) de les $\text{PM}_{2,5}$ sobre la salut humana a la regió del continent europeu. Pèrdua en l'esperança de vida (mesos) que pot ser atribuïda a les contribucions dels aerosols antropogènics $\text{PM}_{2,5}$ pels anys 2000 (esquerra) i 2020 (dreta). Font: Air pollution in Europe 1990–2004, EEA Report No 2/2007.

2.3.2 Evolució fins a l'estat actual

Actualment es disposa d'un nombre important de models meteorològics, químics i d'emissió integrats online capaços de simular la resposta del sistema climàtic global i regional a l'increment d'emissions de agents contaminants (gasos d'efecte hivernacle i aerosols). Ara bé, de models de qualitat de l'aire integrats online a escala urbana n'hi ha pocs en comparació amb els primers. Tot i així, els models que operen a escala global (GCM) no són encara del tot complerts pel que fa al pronòstic d'espècies gasoses (e.g., ozó i aerosols de sulfat), alhora de determinar processos de transport (e.g., Taylor i Penner, 1994) i en el càlcul dels feedbacks d'algunes espècies químiques a la radiació (e.g., Eckman et al., 1996) i als núvols (e.g., Liao et al., 2003).

Els primers intents d'acoblar ambdós models (químics i climàtics/meteorològics) es situa a finals del 1960 (figura 6), quan un model tridimensional de simulació de l'ozó i de la química més simple estratosfèrica (e.g., cicle de Chapman) van ser incorporats en un GCM per tal de simular-ne el transport i la producció global de O₃ simultàniament (e.g., Hunt, 1969; Clark, 1970). No va ser fins a finals dels 70's que es van complementar aquests models amb una fase gas química millorada (e.g., reaccions entre l'hidrogen i l'oxigen atòmic) i mòduls que permetien considerar els efectes directes de l'ozó sobre la radiació i la circulació general (e.g., Schlesinger i Mintz, 1979). Poc temps després es van incorporar també mòduls addicionals que permetien tenir en compte el transport tridimensional d'aerosols i els seus feedbacks a l'escalfament per radiació, així com l'estudi dels feedbacks de l'increment en CO₂ a la destrucció de l'ozó en zones polars (G. Pitari, 1992).

No va ser fins a inicis dels 80's que es va dur a terme l'acoblament entre la química atmosfèrica i la meteorologia a escala urbana i local permetent tenir en compte el transport tridimensional de l'ozó i dels aerosols (Backlanov, 1988). A partir d'aquest moment, els models integrats a escala global segueixen experimentant diverses millores: s'introdueixen noves espècies i mecanismes de reactivitat dins la fase gas química com ara la química dels halògens i dels aerosols inorgànics a càrrec de Levy et al. (1999), es considera el forçament directe del carbó negre troposfèric procedent de la crema de biomassa (Liousse et al., 1996; Haywood et al., 1997; Jacobson, 2002; Chung i Seinfeld 2005), permeten simular l'impacte de l'ozó troposfèric sobre la radiació solar (Mickley et al., 1999), fan possible estudiar els aerosols i la seva interacció amb els núvols (e.g., Chuang et al., 1997, 2002; Kogan et al., 1997) així com el seu efecte directe sobre la radiació (e.g., Zhang et al., 2008a,b), es representen les interaccions meteorologia-química-aerosol-radiació-núvols (e.g., Jacobson, 1994, 2004b, 2006a) entre d'altres.

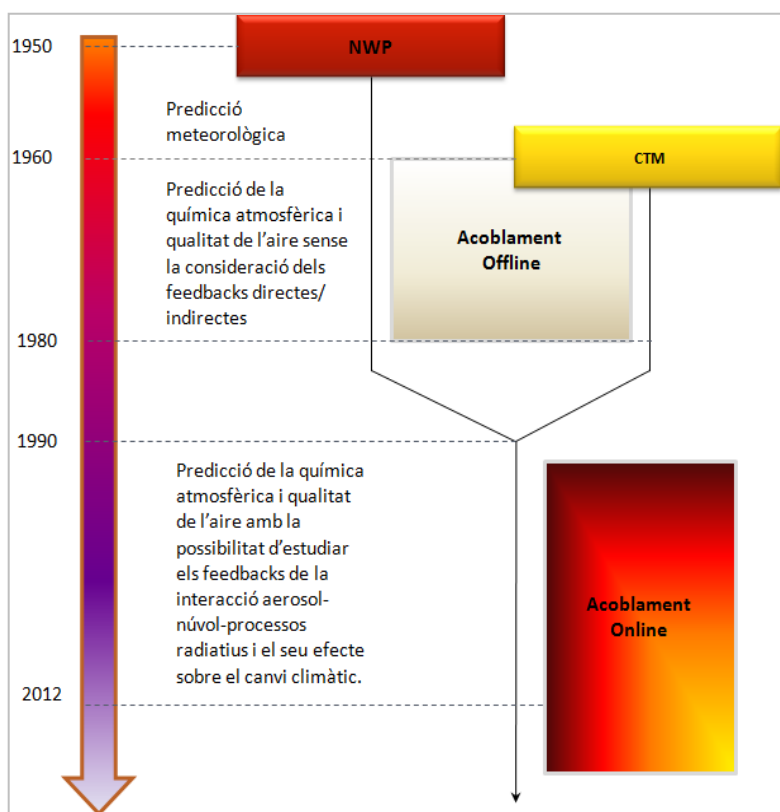


Figura 6: Mostra l'evolució de l'acoblament dels models meteorològics amb els models de transport químic.

Paral·lelament, els models integrats online a escala regional es centren en l'estudi d'agents contaminants a la troposfera i la seva interacció amb els fenòmens meteorològics i el clima (e.g., Mathur et al., 1998). Ara bé, no és fins a principis de segle 20 que l'acoblament entre la meteorologia i la química es produeix de manera parcial en projectes com ara el realitzat pel grup de Grell et al (2000) alhora d'avaluar l'efecte de les concentracions de contaminants emeses als Alps suïssos durant campanya VOTALP (transports verticals d'ozó) o bé l'estudi de la presència de nivells massa elevats d'ozó al sud de França a càrrec de Taghavi et al. (2004). El seu posterior acoblament total permet dur a terme investigacions més acurades relacionades amb els processos meteorològics i climàtics degut a la interacció aerosols-radiació-núvols (Zhang, 2008; Chapman, 2009; Zhang et al., 2010) fent-ne possible la representació i estudi detallats de la seva interacció amb la radiació solar així com els feedbacks directes i semi-directes originats (Charlson et al., 1992; Kiehl and Briegleb, 1993) i (Hansen et al, 1997) respectivament, i degut també a la seva influència en la microfísica de núvols actuant com a nuclis de condensació a través de l'estudi dels feedbacks indirectes associats (Jones et al., 1994; Haywood and Boucher, 2000).

2.3.3 Metodologia

L'acoblament online entre els MetMs i els CTMs es pot dur a terme a través de dos camins diferents segons l'entorn de treball i el grau d'acoblament permès en els models (figura 7):

1. El primer mètode, o els també anomenats **models online integrats**, consisteix en la integració d'un model de transport químic amb diferents nivells de la fase gas químic (mecanismes i espècies químiques) i de mòduls aerosol/núvol dins un model meteorològic (bé un GCM o un model de mesoescala). El resultat és la obtenció d'un sistema de model unificat tal que els paràmetres meteorològics i de qualitat de l'aire es veuran resolts simultàniament en el mateix *time step* a la mateixa xarxa (les pròpies equacions primitives ja tenen en compte l'interacció entre la meteorologia i la química) sense la necessitat d'una interfície que acobli els resultats. Aquests models inclouen la interacció en dues direccions entre el mòdul químic i el meteorològic i permeten tenir en compte els *feedbacks* atmosfèrics directes i indirectes associats a la presència d'aerosols i gasos contaminants.

2. En el segon mètode, o els també anomenats **models online d'accés**, l'equació de continuïtat per als camps meteorològics i químics és resolta separatament en dos models independents, però les dades tan químiques com meteorològiques obtingudes són intercanviades a cada pas d'integració del model meteorològic gràcies a una interfície o software acoblador. La interacció entre ambdós models es realitza en dues direccions de manera que també resulta possible el càlcul dels *feedbacks* associats als aerosols. L'acoblament de models independents mitjançant una interfície sovint s'aplica quan els models cobreixen dominis diferents del Sistema Climàtic, com ara l'oceà i l'atmosfera, i malgrat que solen presentar major flexibilitat que els models integrats, acostumen a ser menys eficients en l'estudi de les retroalimentacions.

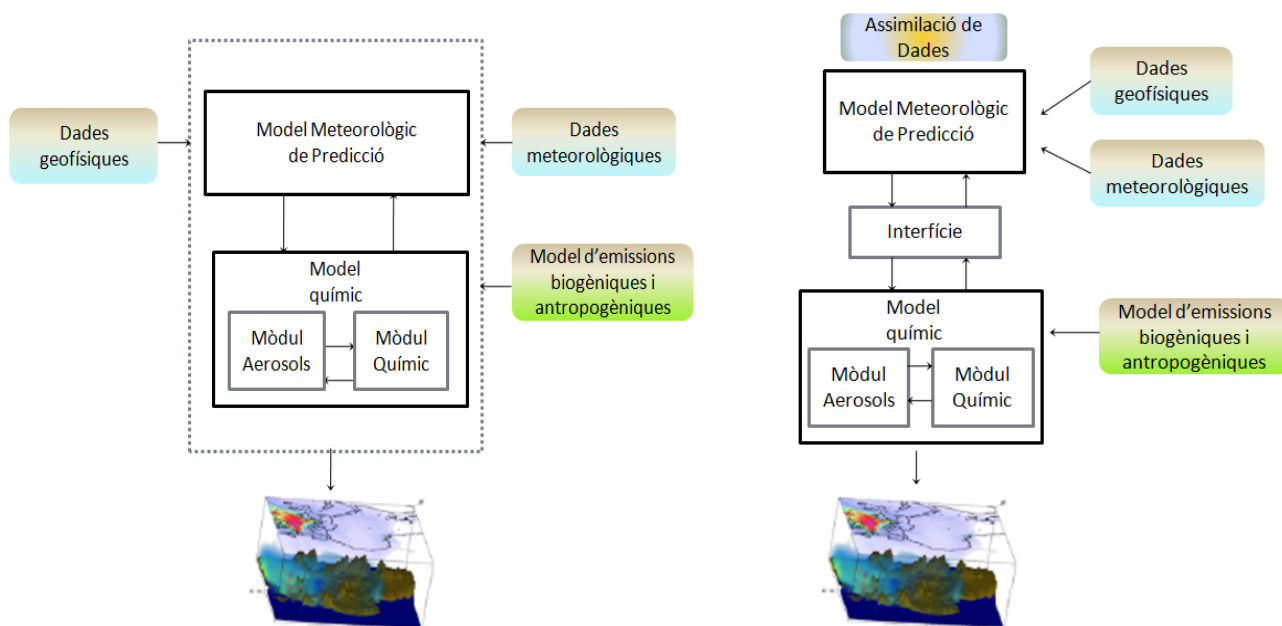


Figura 7: Comparació model integrat online (esquerra) vs el model d'accés online (dreta)

Els models que presenten un acoblament online unificat (primer cas), les equacions poden ser resoltes simultàniament mitjançant un sistema d'equacions no lineal o bé es poden resoldre utilitzant un "operator splitting". Obtenir solucions d'aquest conjunt d'equacions resulta no ser una tasca trivial i per tant es fa indispensable l'ús de mètodes numèrics per tal de resoldre els termes no lineals. Exemples de la integració online de mòduls químics en models de predicció meteorològica són el GEM-AQ (Kaminski et al., 2008), GEMS-BACH (Ménard et al., 2007), WRF/Chem (Grell et al., 2005) i ECHAM5-HAMMOZ (Pozzoli et al., 2008; Rast et al., 2008). Zang (2008) estableix una visió general dels models meteorològics i químics online acoblats així com la seva trajectòria evolutiva des dels seus orígens fins a l'actualitat, centrant-se especialment en el modelatge de les interaccions aerosols-radiació i núvols-aerosols.

La gran varietat de sistemes de modelatge també permet donar pas a diferents enfocis i mètodes de treball per a les interfícies dins els models online d'accés. Les tasques de sincronització dels camps de sortida d'ambdós models es veuen minimitzades en els sistemes acoblats que compten amb els fluxos superficials o amb els paràmetres de dispersió (i.e., viscositat dels eddies) proporcionats pel model meteorològic tot treballant a la mateixa xarxa emprada

pel model de dispersió. Altres softwares acobladors més versàtils implementen parametrizacions addicionals de capa límit i superficial per tal d'estimar-ne aquests paràmetres i ja no resulta necessari que ho faci el model meteorològic. Bàsicament però, la funció principal de la interfície és establir les relacions no lineals que relacionen la meteorologia i la química (ja que a diferència del model integrat) no són incorporades dins les mateixes equacions. Sovint, aquestes vies de treball són preferibles davant de la necessitat de comptar amb productes meteorològics estàndards i per tal de garantir més fermesa i rapidesa en la modelització de la qualitat de l'aire en les seves aplicacions pràctiques. En altres casos, les interfícies també són utilitzades per a millorar la resolució de dades fisiogràfiques locals i possiblement per a introduir parametrizacions més avançades (e.g., urbanització). Les parametrizacions físiques atmosfèriques, i fins i tot els valors límits o per defecte assumits per alguns paràmetres clau poden presentar efectes ben rellevants en els camps de concentració de contaminants en condicions crítiques (e.g., vents calmats i condicions d'estabilitat). A més a més, les superfícies interfacials involucren l'avaluació de les emissions d'algunes espècies rellevants que poden veure's fortament influenciades per la meteorologia, com ara els compostos orgànics volàtils (VOC), la pols arrossegada pel vent o la brisa salada del mar.

Per a la simulació de tots els mecanismes de forçament dels aerosols en sistemes integrats és necessari millorar no només els CTM, sinó també els NWP/MetMs. Per una banda, les parametrizacions per a la convecció i la condensació cal que es trobin plenament ajustades per tal de tenir en compte les interaccions aerosols-microfísica de núvols, i per l'altra, la parametrizació de la radiació necessita ésser modificada per tal que s'incloguin els efectes dels aerosols. D'aquesta manera l'estructura de la capa límit així com els processos que s'hi desenvolupen es trobaran plenament millorats.

Enviro-HIRLAM, per exemple, és un model online unificat europeu recentment desenvolupat pel Danish Meteorological Institute (DMI) i altres col·laboradors (Korsholm 2009; Baklanov et al, 2008a) emprat en la investigació i predicció dels camps tant de la meteorologia com de la química atmosfèrica. Les equacions per simular el transport químic atmosfèric es troben implementades dins el model meteorològic i s'integren a cada pas de malla. Per tal que fos adequat en àrees urbanes, on la majoria de població s'hi troba concentrada, la part meteorològica és millorada gràcies a la implementació de mòduls urbans i parametrizacions (Baklanov et al, 2004). El mòdul per aerosols comprèn un model d'equilibri termodinàmic i el model de dinàmica d'aerosols CAC (Gross and Baklanov, 2004a). Les parametrizacions per als mecanismes de *feedbacks* d'aerosols es troben descrites a Korshom et al., 2008 i a Korshom, 2009. Diversos mecanismes químics poden ser escollits en funció de les tasques específiques (en el capítol 4 serà descrit més extensament)

La complexitat dels processos atmosfèrics acoblats i els graus d'acoblament del model poden variar en funció de l'objectiu de les aplicacions. Així doncs, aquest ventall s'extén des d'un simple acoblament entre el camp meteorològic i una fase gas química (Langmann, 2000) fins a un acoblament més sofisticat involucrant la química, meteorologia, aerosols, radiació i núvols (Grell et al., 2005; Jacobson 2006a) Tot i que els models online acoblats es distingeixen per la seva efectivitat alhora de tenir en compte una gran varietat de *feedbacks* entre la majoria de components i processos atmosfèrics, el grau d'acoblament en aquests models podrà variar potencialment de lleugerament acoblat, moderadament acoblat a plenament acoblat.

Per una banda, en els models lleugerament-moderadament acoblats només certes espècies i determinats processos s'hi veuran acoblats. Només algunes espècies químiques com ara l'ozó o els aerosols així com el transport de certs compostos en estat gasós es veuran acoblats, d'altres com ara el vapor d'aigua i processos com ara l'absorció solar de l'ozó i el balanç radiatiu romandran desacoblats. Una altra característica existent en aquests models és que les retroalimentacions entre processos podran ser tingudes en compte o no. D'altra banda, en els models plenament acoblats, una majoria de processos podran ser integrats i un extens ventall de *feedbacks* atmosfèrics hi seran perfectament simulats.

Avui en dia, existeixen pocs models plenament acoblats, i és que aquests es troben encara en vies de desenvolupament. La majoria de models actuals consisteixen en models lleugerament-moderadament acoblats que incorporen petites retroalimentacions entre els processos atmosfèrics més destacats. En funció dels processos/components acoblats online, aquests models online poden ser classificats en quatre categories principals: meteorologia i transport de contaminants, meteorologia i transport de contaminants/química/microfísica, *feedbacks* de contaminants als graus d'escalfament per a conduir la meteorologia, *feedbacks* de contaminants a les reaccions de fotòlisi per a conduir la meteorologia.

2.3.4 Avantatges i limitacions

Una vegada presentat el model online integrat així com el seu funcionament i importància dins els camps de la simulació i la predicció atmosfèrica, resulta necessari remarcar algunes de les seves característiques més rellevants així com els seus principals avantatges enfront els models offline. A la figura 8 es pot veure una representació comparativa entre el tractament de processos duts a terme per a models online vs els models offline, des de la micro-escala fins a escala sinòptica.

La integració simultània de la química en la meteorologia en els sistemes de modelatge online permet tenir en compte els *feedbacks* a cada model per a cada *time step*, de la meteorologia a la química i de la química a la meteorologia. Aquesta tècnica no només reflecteix la forta interacció entre ambdós camps, sinó que al mateix temps permet obtenir una visió més àmplia i realista de l'atmosfera que ens envolta i dels fenòmens que s'hi desenvolupen. Els models online poden ser a la vegada emprats per estudiar la influència de la qualitat de l'aire en l'evolució del temps atmosfèric i el clima global o regional.

A la vegada, disposem de la capacitat de poder treballar únicament amb una sola xarxa i sense necessitat d'interpolació en l'espai i el temps resultant en una metodologia més consistent alhora de realitzar les simulacions. En determinades ocasions però, no es descarta la possibilitat d'interpolat temporalment ja que d'aquesta manera es fa possible guanyar certs avantatges computacionals. Aquests casos són especialment significants en estudis de l'efecte indirecte dels aerosols o bé per a processos en els quals la fase aquosa resulta de molta importància.

A més a més, les parametritzacions físiques emprades per tal de simular els diferents processos són les mateixes en tot moment de manera que no es presentaran inconsistències. D'una banda, totes les variables meteorològiques tridimensionals es trobaran disponibles a cada *time step* aconseguint que no es generin restriccions en la variabilitat dels camps meteorològics.

Pels centres de predicció numèrica del temps, un atractiu addicional de la integració online dels models serà la seva gran utilitat en processos d'assimilació de dades meteorològiques, on la recuperació de dades de satèl·lit així com l'assimilació directa de radiàncies es veurà plenament millorada.

Per tal de millorar notablement els errors comesos per una simulació offline és necessari l'ús d'un interval de temps d'integració d'alta resolució. Desafortunadament, un major temps de resolució implica que els costos també es vegin incrementats de manera que aplicar aquesta millora tan sols és preferible fins a un cert punt i en el seu defecte resulta computacionalment més econòmic l'ús del model online.

Tot i que la modelització online permetrà una millor caracterització de la dispersió dels contaminants de l'aire així com els *feedbacks* de la química a la meteorologia, existeixen certes situacions en les quals l'ús del model offline és preferible enfront el model online acoblat.

Un primer desavantatge d'aquest darrer es presenta en el camp de la predicció meteorològica operativa, en la qual el modelatge i l'estudi de l'evolució del temps atmosfèric per tal de fer-ne la seva predicció requiriria majors temps de càlcul o bé l'ús de processadors addicionals si es trobés operant en línia amb un model de qualitat de l'aire.

Alhora de tractar i examinar qüestions de caràcter científic relacionades directament amb la química atmosfèrica, les simulacions retrospectives offline són també més atractives ja que només requereixen un únic paquet de dades meteorològiques per tal de generar diverses simulacions de transport químic i per tant, fer córrer el sistema de modelatge online resulta innecessari.

Un tercer i últim desavantatge dels models online es veu reflectit alhora de dur a terme simulacions d'escala superiors on els moviments atmosfèrics modelitzats es troben fortament restringits per la rotació, és en aquests casos quan l'aproximació offline esdevé una solució molt bona i efectiva tant a nivell econòmic com experimental.

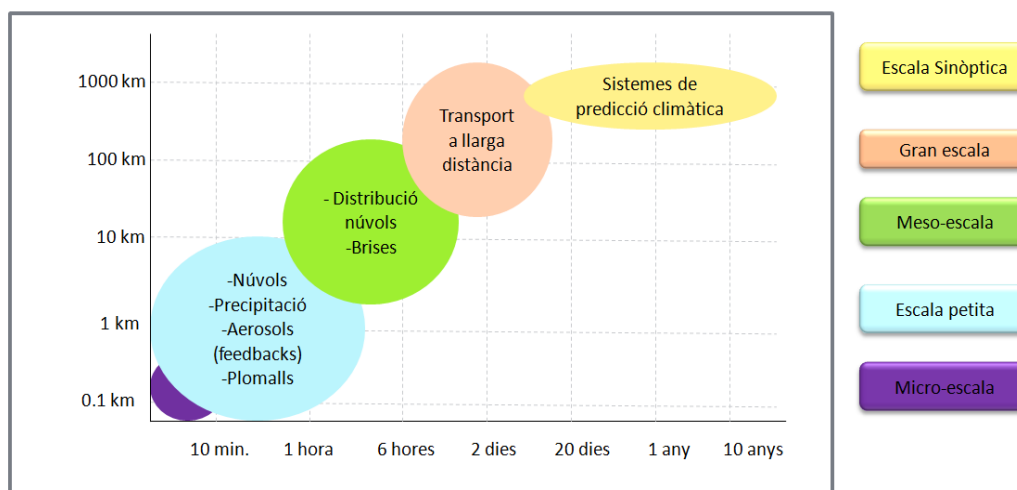


Figura 8: Escales temporal i espacial característiques de processos importants atmosfèrics

2.3.5 Camps d'aplicació dels models online

Els models integrats online són emprats dins un ampli ventall de procediments dins dels camps següents:

- ▲ la meteorologia i la física atmosfèrica
- ▲ la química atmosfèrica
- ▲ medi-ambient
- ▲ ciència computacional (i.e., anàlisi numèric)

Així doncs, les operacions i àrees d'estudi més comunes mitjançant les quals es posarà en pràctica l'ús d'aquests models seran majoritàriament la modelització del canvi climàtic global, la simulació i predicció del temps meteorològic, la valoració de la composició química atmosfèrica i la qualitat de l'aire a llarg termini, valoració de les conseqüències de les explosions nuclears, previsió i control de situacions d'emergència (i.e., desastres naturals, temps sever), estudis de la dinàmica i microfísica dels núvols, l'estudi dels *feedbacks* atmosfèrics degut a la presència d'aerosols (i.e., directes, semi-directes, indirectes) i l'estudi dels efectes contaminants dels aerosols sobre la salut. A la taula 2 es presenten diversos models acoblats online i les seves aplicacions més importants (alguns d'ells seran descrits més extensament en el capítol 4) classificats segons l'escala en la qual operen.

Taula 2: Comparació de diversos models online (**acoblats via una interfície) amb l'escala de treball i les seves aplicacions més habituals.

Model	Escala	Aplicacions
BOLCHEM	Continental a regional	Episodis climàtics, qualitat de l'aire, efectes directes
COSMO-LM-ART	Continental a regional	Episodis, qualitat de l'aire, efectes directes
COSMO-LM-MUSCAT**	Continental a regional	Episodis, efectes directes dels aerosols de pols mineral
ECHAM5/6-HAMMOZ	Global	Episodis, pronòstic a llarg termini, efectes directes & indirectes
Enviro-HIRLAM	Hemisfèric a regional i urbà	CWF, episodis, <i>feedbacks</i> directes & indirectes
IFS-MOZART	Global	Pronòstic, reanàlisis, episodis, efectes directes & indirectes
MCCM	Regional	Episodis, climatologia-química, efectes directes

MC2-AQ	Regional a urbà	Episodis
Meso-NH	Continental a regional	Episodis, efectes directes
MESSy(-ECHAM5)	Global	Episodis, pronòstic a llarg termini, efectes directes & indirectes
MetUM	Regional a global	CWF, episodis, efectes directes, impacte radiatiu del N ₂ O, O ₃ , CH ₄
M-SYS	Regional a global	Episodis
RegCM-Chem	Continental a regional	Climatologia-química, efectes directes
RAMS/ICLAMS	Continental a urbà	CWF, episodis, interaccions meteo-químiques, efectes directes & indirectes
WRF-Chem	Continental a regional	CWF, episodis, climatologia-química, <i>feedbacks</i> directes & indirectes, O ₃ , PM _{2,5}
WRF-CMAQ	Urbà a hemisfèric	Episodis, estudis anuals, efectes dels aerosols a la radiació i a les reaccions de fotòlisi
GATOR-GCMOM	Global a urbà	Qualitat de l'aire/efectes sobre la salut, interaccions meteo-química-radiació, efectes directes-indirectes
CAM3	Global	Climatologia, cicle hidrològic, efectes directes & indirectes
MIRAGE2	Global	Control dels nivells de monòxid de carboni atmosfèric, cicle dels sulfurs, càlcul massa/nº aerosols, efectes directes & indirectes
CALTECH Unified G-CM	Global	Interaccions globals química-aerosols, forçament radiatiu directe dels aerosols, química heterogènia, impacte canvi climàtic al nivells de O ₃ i aerosols.

3. Aerosols i *feedbacks*

Una millor concepció de la sensibilitat climàtica i meteorològica del planeta requereix una molt bona comprensió de la varietat de processos de retroalimentació o *feedbacks* que s'hi desenvolupen (figura 9). El concepte de *feedback* és utilitzat en el camp de la meteorologia i climatologia per caracteritzar la resposta del sistema climàtic a un forçament radiatiu extern que a la vegada provocarà una alteració en altres forçaments. En aquesta secció m'he centrat en l'estudi concret dels aerosols i en la discussió dels seus efectes directes i indirectes com a exemple important d'aplicació dels models integrats online.

3.1 Concepte General

Els aerosols són partícules líquides o sòlides suspeses en l'aire. Generen un forçament radiatiu directe (gairebé sempre negatiu) perquè són capaços de dispersar o absorbir la radiació solar de l'atmosfera emetent posteriorment radiació infraroja. Al mateix temps però, els aerosols també poden alterar els processos de formació de la nuvolositat, del gel i de la precipitació mitjançant l'increment de la concentració del nombre de gotes/partícules de cristalls i la modificació de la seva grandària. Emissions considerables d'aerosols a l'atmosfera disminueixen l'eficiència de la precipitació dels núvols càlids i en conseqüència generen un forçament radiatiu indirecte associat amb aquests canvis en les propietats dels núvols. Una característica important dels aerosols és que presenten temps de vida relativament curts i és per aquest motiu que no poden ser considerats dins la mateixa categoria que els gasos d'efecte hivernacle ja que aquests darrers es caracteritzen per recórrer distàncies superiors ja que poden romandre durant un major període de temps a l'atmosfera.

Alguns paràmetres físics essencials a conèixer dels aerosols per a determinar-ne el forçament radiatiu són: la grandària, la variació de la grandària en funció de la humitat relativa, l'índex de refracció, la solubilitat de les partícules d'aerosol i la seva font d'origen: natural o antropogènica. La quantificació del forçament indirecte resulta més difícil de determinar. El forçament dels núvols càlids (aigua líquida) es podria classificar en dos components. El primer forçament indirecte es trobaria associat amb el canvi en la concentració de gotes de núvol causada per l'increment dels nuclis de condensació i el seu efecte en la quantitat de radiació solar retornada novament cap a l'espai (albedo). El segon, s'associaria amb el canvi en l'eficiència de la precipitació i temps de vida mitjà del núvol producte de la modificació en la concentració del nombre de gotes i la grandària finalment assolida. La quantificació d'aquest últim forçament requereix del coneixement del canvi en el contingut d'aigua líquida i la quantitat de cobertura nuvolosa. Paral·lelament als núvols càlids cal destacar l'existència de núvols de gel, els quals també es veuran fortament influenciats pels aerosols.

Els models online acoblats són avui en dia l'eina més poderosa alhora d'estudiar l'efecte dels aerosols. Així com antigament el model més simple emprat representava l'atmosfera global com una caixa en estat estacionari a partir de la qual la càrrega es podia derivar si es disposava d'informació sobre el temps de vida i les fonts d'aerosols (e.g., Andreae, 1995), actualment ja es disposa de models 3D capaços d'avaluar la gran majoria d'aerosols presents a l'atmosfera: sulfats, sotge, carbonats procedents de la crema de biomassa i combustibles fòssils (Cooke *et al.*, 1999), partícules de pols (Tegen *et al.*, 1996), partícules de sal (Gong *et al.*, 1998), nitrats i amoni en aerosols (Adams *et al.*, 2001).

3.2 Fonts d'aerosols

3.2.1 Fonts primàries i secundàries

El terme primari fa referència als aerosols que són directament emesos a l'atmosfera (en forma de partícules sòlides o bé en estat líquid); en canvi, parlarem d'aerosols secundaris quan ens referim als aerosols que hagin estat formats a l'atmosfera a partir d'un gas precursor (conversió de gas a partícula). A la pràctica aquesta distinció és difícil de realitzar acuradament ja que en primer lloc, la majoria d'aerosols estan formats per una mescla de components (en

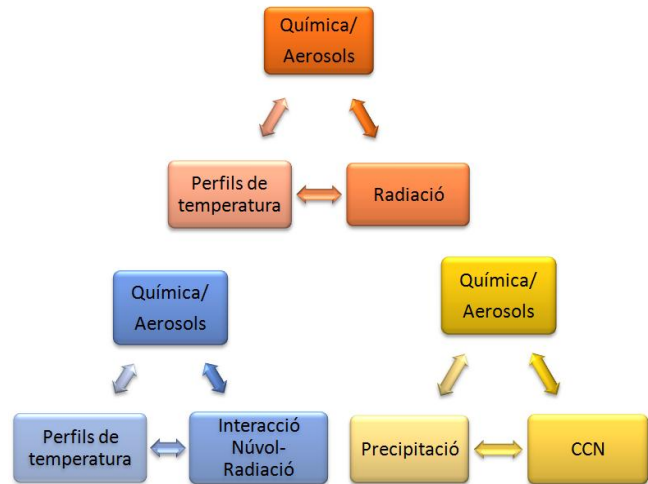


Figura 9: Representació de la interacció dels aerosols amb la radiació (dalt), núvols (esquerra) i nuclis de condensació (dreta).

funció de la història de la massa d'aire que els conté) i en segon lloc, degut que alguns gasos orgànics de baixa volatilitat propers a la font d'emissió poden condensar-hi al damunt. A la vegada, els aerosols poden ser d'origen antropogènic si són producte d'activitats realitzades per l'ésser humà, i poden ser d'origen biogènic si procedeixen de fonts naturals (figura 10).

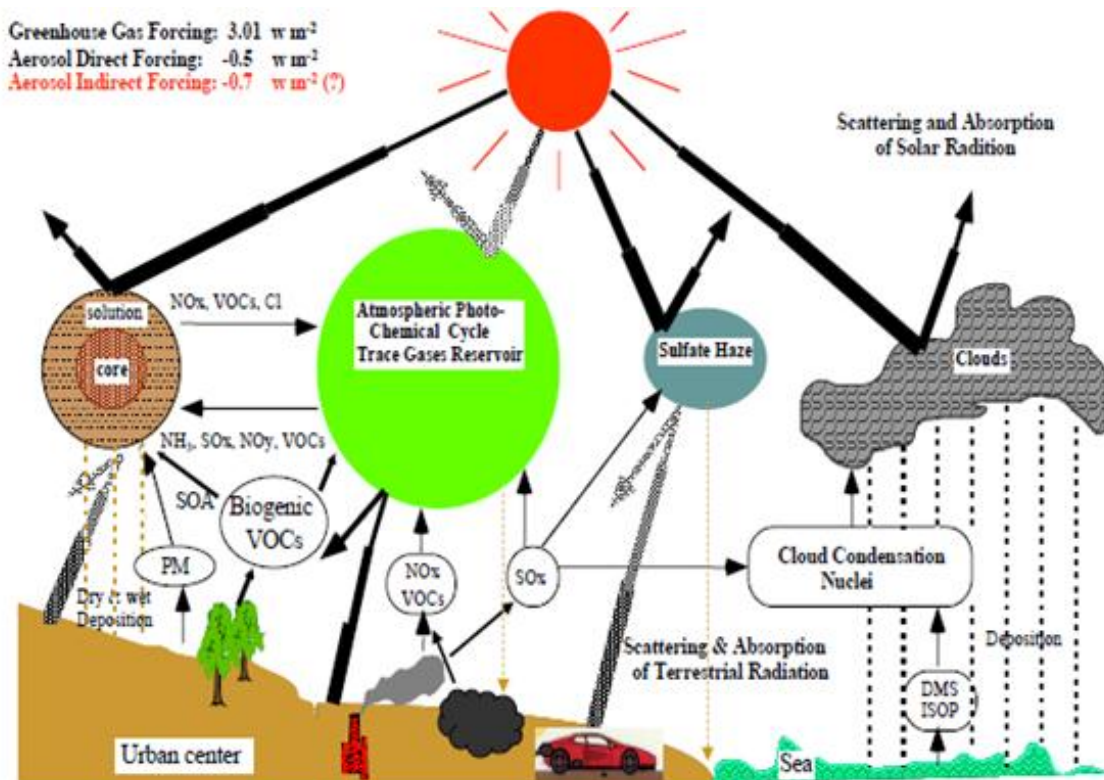


Figura 10: Esquema representatiu de les emissions biogèniques i antropogèniques de partícules d'aerosols, i processos atmosfèrics relacionats. Extret de IPCC (2007)

3.2.1.1 Pols industrial

La pols industrial és considerada avui en dia com l'aerosol primari per excel·lència. El transport, la combustió de carbó, la manufactura del ciment, la metal·lúrgia i les incineracions són, entre d'altres, algunes de les activitats industrials i tècniques que produeixen més quantitat d'aquest tipus d'aerosol. Aquestes fonts d'origen antropogènic serien responsables d'un gran impacte negatiu en la qualitat de l'aire si fossin descontrolades, però afortunadament, es troben actualment ben monitoritzades i regulades. Com a resultat, l'emissió d'aerosols de pols industrials (< 1 micròmetre de diàmetre) ha estat reduïda significativament, sobretot en els països més desenvolupats, de manera que sempre que es mantinguin sota vigilància no representaran una gran amenaça en la variació del canvi climàtic. Ara bé, en regions de fort creixement descontrolat d'industrialització, especialment a l'Àsia, l'emissió de grans nivells d'aquests aerosols podrien arribar a superar les 400 Tg/any cap a l'any 2050 (Wolf and Hidy, 1997).

3.2.1.2 Pols de sòl

La pols procedent del sòl és el major contribuent a la formació d'aerosols i a la caracterització de la seva espessor òptica, sobretot en les regions tropicals i sub-tropicals. Aquestes fonts procedeixen de regions que són principalment deserts, llits secs de rius, franges desèrtiques semi-àrides, però també àrees en regions més seques on la vegetació ha estat reduïda o els sòls han estat alterats per l'activitat humana. La major part de les fonts de pols es troben a l'hemisferi nord, mentre que a l'hemisferi sud aquestes fonts hi són relativament petites.

El temps de vida de les partícules de pols depèn del seu tamany: les més grans són ràpidament eliminades de l'atmosfera mitjançant processos de sedimentació gravitacional, les més petites en canvi (sub-microscòpiques) poden perdurar a l'atmosfera durant setmanes. Un gran nombre de models químics i de transport han estat desenvolupats per a escales globals i regionals alhora de fer un seguiment d'aquests aerosols així com per determinar-ne els seus efectes radiatius a partir del seu índex de refracció i grandària (Jacobson, 2001).

3.2.1.3 Aerosols carbonats (carbó negre i orgànic)

Els compostos carbonatats constitueixen una gran però molt variable part dels aerosols atmosfèrics resultants principalment de la crema de combustibles fòssils i crema de biomassa (aerosols primaris) així com de l'oxidació de compostos orgànics volàtils biogènics i antropogènics (aerosols secundaris) i es troben en gran concentracions a la capa més alta de la troposfera. La presència de grups funcionals polars en els orgànics, és a dir, grups d'elements químics amb una gran afinitat per reaccionar amb les molècules d'aigua (e.g., els carboxílics [COOH]) els fa particularment solubles en aigua i aquesta característica els hi permetrà participar en el procés de formació de nuclis de condensació en els núvols (Saxena *et al.*, 1995; Saxena i Hildemann, 1996) jugant així un paper molt important en els efectes indirectes climàtics (Rivera-Carpio *et al.*, 1996). D'altra banda, el caràcter absorbent d'algunes espècies carbonatades que contenen carbó negre, com el sotge i les substàncies alquitranades, són de particular importància en els efectes directes climàtics ja que provoquen modificacions en la irradiància solar però també ho són en la modificació de la cobertura nuvolosa en capes especialment càlides (Hansen *et al.*, 1997). Tot i les tècniques computacionals actuals, encara resulta avui en dia un procés difícil arribar a diferenciar acuradament ambdós tipus d'aerosols carbonatats ja que la piròlisi d'alguns orgànics pot interferir notablement en la determinació del carbó negre.

3.2.1.4 Aerosols biogènics

Els aerosols biogènics primaris es componen de restes de plantes (i.e., fragments de fulles), partícules microbianes (i.e., bacteries, fongs, pol·len, espores). Desafortunadament existeix poca informació disponible actualment que permeti estimar de manera precisa la contribució d'aquestes partícules als aerosols atmosfèrics. La presència de grups àcids en aquestes substàncies provoca que aquests aerosols absorbeixin radiació entre els 290 i 320 nm (a la regió de l'UV-B, [Havers *et al.*, 1998]), resultant en partícules que poden contribuir tant en la modificació de la irradiància solar com en l'alteració del procés de formació de gotes d'aigua líquida o de cristalls de gel en els núvols.

3.2.1.5 Sal marina

Els aerosols de sal marina són generats per varis processos físics, especialment en el trencament de les onades a la costa. No només són formades de clorur de sodi, sinó que també presenten traces de compostos inorgànics com el magnesi, sulfat, calci i potassi reaccionant d'aquesta manera amb altres reactius químics a l'atmosfera (i.e., H_2SO_4). Per una banda, les partícules de sal reflecteixen la llum disminuint d'aquesta manera la quantitat de radiació solar incident a la superfície provocant així una disminució de la temperatura propera al sòl; d'altra banda, són molt eficients formant nuclis de condensació i és per aquest motiu que resulta molt important estudiar-ne els seus efectes indirectes.

3.2.1.6 Sulfats

Els aerosols sulfatats (SO_4^-) són produïts per reaccions químiques a l'atmosfera mitjançant gasos precursors, principalment per l'oxidació del diòxid de sofre (SO_2) procedent de fonts antropogèniques o de l'erupció dels volcans, i l'oxidació del dimetil sulfòxid (DMS) procedent de fonts biogèniques, especialment del plàncton marí. L'oxidació del SO_2 pot tenir lloc tant en fase gas com en fase aquosa: existeix un primer mecanisme (amb etapes diferents segons el medi) on a partir del diòxid de sofre s'obté àcid sulfúric (H_2SO_4) i a continuació la pèrdua del dos protons àcids de la molècula per neutralització amb l'amoniac (producte d'una intensa activitat agrícola) origina l'aerosol de sulfat. Ara bé, depenent del medi on es desenvolupi aquesta transformació, el procés de nucleació (la grandària final obtinguda) i les propietats òptiques resultants de la partícula de sulfat poden veure's alterades significativament.

Si la reacció transcórrer en fase gas, l'aerosol originat de sulfat presentarà una gran capacitat per a formar noves partícules (e.g., agrupant-se amb molècules d'aigua, molècules orgàniques), incrementant la densitat de l'aerosol original, l'eficiència de l'*scattering* i la població de nuclis de condensació del núvol. En medi aquós, l'oxidació del SO_2 presenta una major probabilitat que es desenvolupi a l'interior dels núvols degut al seu elevat contingut en aigua líquida. Tot i així, les partícules de sal marina hidratades poden actuar com a medis de reacció importants per a la formació de sulfat degut a la ràpida oxidació del SO_2 per l'ozó en solucions alcalines (Zhang i Carmichael, 1999). Ara bé, els aerosols de sulfat formats en solucions aquoses no lideren la formació de noves partícules via nucleació ja que solen reaccionar amb element alcalins del medi en el que es troben abans que amb les molècules de vapor d'aigua de l'atmosfera.

3.2.1.7 Nitrats

Els aerosols de nitrat (NO_3^-) són originats, seguint un mecanisme i sota condicions químiques favorables, a partir de l'oxidació del diòxid de nitrogen (NO_2) a àcid nítric (HNO_3) amb la posterior pèrdua del seu protó àcid per neutralització amb una base molt forta, l'amoniac (NH_3). Tenint en compte que el sulfat es forma també per neutralització amb l'amoniac, la presència d'ambdós àcids precursors (nítric i sulfúric) en el mateix medi competiran per l'amoniac present. L'àcid sulfúric presenta una major afinitat de reacció amb l'amoniac que no pas l'àcid nítric, per tant, davant d'una baixa concentració d'aquesta base forta, el primer àcid que hi reaccionarà i formarà l'aerosol corresponent serà el sulfúric impedingent que es pugui formar l'aerosol de nitrat. En aquest cas, l'àcid nítric sense reaccionar s'acabarà dipositant sobre partícules més grans (e.g., sal marina) formant aerosols poc dispersors de la radiació solar. Ara bé, si es disposa de prou concentració d'amoniac en el medi com per què tot el sulfúric hi reaccioni formant sulfat, encara restarà prou base per que també es pugui formar nitrat. Ara, l'aerosol de nitrat seguirà amb el procés de nucleació agrupant-se amb molècules d'aigua o molècules orgàniques formant aerosols no massa grans que presentaran un gran poder dispersant. Observacions amb models de transport i qualitat de l'aire mostren que en regions de grans emissions de NO_x i NH_3 com Europa, Índia i parts de l'Amèrica del Nord, les concentracions de nitrat d'amoni (NH_4NO_3) hi són molt elevades i sovint excedeixen les de sulfat (Jacobson, 2002).

3.3 *Feedbacks* directes i semi-directes associat als aerosols

El forçament radiatiu directe associat als aerosols és encara avui en dia una àrea força desconeguda principalment a conseqüència de la incertesa en les seves propietats òptiques, físiques i químiques.

Aquestes quantitats solen ser difícils de mesurar i varien considerablement en l'espai i el temps. Gràcies a la introducció i millora dels models online integrats però, aquestes dificultats s'han vist notablement reduïdes.

3.3.1 Propietats òptiques dels aerosols

Les propietats químiques i la grandària dels aerosols són emprades per a determinar les propietats òptiques dels mateixos en funció de la longitud d'ona (i.e., densitat, distribució de les mides, la forma i l'índex de refracció). Es poden calcular numèricament a partir de la teoria de dispersió de Mie, (1998) però tot i així en molts casos resulten de difícil determinació ja que són molt variables en l'espai i el temps. Aquest mètode permet resoldre la interacció de les ones electromagnètiques i monocromàtiques amb les partícules d'aerosols suposant que són esferes.

Una primera complicació alhora de determinar-les és que certs aerosols són solubles en aigua (i.e., sulfats) i per tant atrauran aquesta molècula quan l'ambient presenti una humitat relativa prou elevada. L'aigua majoritàriament dispersa la radiació en ona curta i en conseqüència n'estarà incrementant la seva importància relativa. Una segona complicació apareix davant la presència d'aerosols absorbents com ara el carbó negre (BC) o el carbó orgànic (OC); l'eficiència d'absorció d'aquests compostos es veu amplificada quan es troben mesclats internament amb altres aerosols no-absorbents o gotes d'aigua, i per tant les propietats òptiques d'aquestes espècies també resulten difícils de quantificar ja que solen veure's sobre estimades.

3.3.2 Forçament radiatiu directe

Els aerosols poden tant dispersar com absorbir la radiació solar (ona curta). La majoria d'aerosols inorgànics són no absorbents i contribueixen a un forçament radiatiu negatiu retornant, per dispersió, la radiació cap a l'espai i provocant una disminució de la temperatura prop de la superfície. Ara bé, d'altres com el carbó negre, la pols mineral i la gran majoria d'aerosols orgànics condueixen a un forçament radiatiu positiu ja que són capaços d'absorbir radiació ultraviolada (UV) i emetre radiació infraroja (IR) contribuint així a un escalfament de l'atmosfera, i equilibrant el refredament ocasionat pels aerosols no absorbents.

El forçament radiatiu directe dels aerosols (veure figura 11) pot ser calculat emprant dades de sortida d'un model de transport químic. Els CTMs preduen la distribució de la massa relativa (mass mixing ratio distribution) de diverses espècies d'aerosols i precursors gasosos a partir de dades d'emissions, transport i tractament de diversos processos químics i físics (i.e., nucleació, creixement per condensació, coagulació, i deposició seca/humida). La simulació dels camps 3D de la massa relativa de les partícules condensades és posteriorment emprada per un esquema de radiació per a calcular el forçament radiatiu directe (disminució de la quantitat de radiació en ona curta incident a la superfície).

Inicialment els CTMs només incloïen aerosols de sulfat i els seus precursors: el diòxid de sofre i el dimetilsulfat (e.g. Langner and Rodhe, 1991). Més endavant, es van incloure bases de dades per al tractament del carbó negre (Cooke et al., 1999) i ja actualment disposen de mecanismes que permeten tractar plenament i de manera separada els sulfats, el carbó negre, el carbó orgànic, la pols, la sal marina i la majoria del seus precursors gasosos (e.g., Jacobson, 2001).

El signe del forçament radiatiu directe dels aerosols depèn a la vegada de l'albedo de la superfície subjacent. Així doncs, els aerosols absorbents seran capaços d'absorbir més radiació si la superfície que tenen per sota presenta un elevat grau de reflexió, com ara els núvols baixos o la neu. (Haywood, 1995).

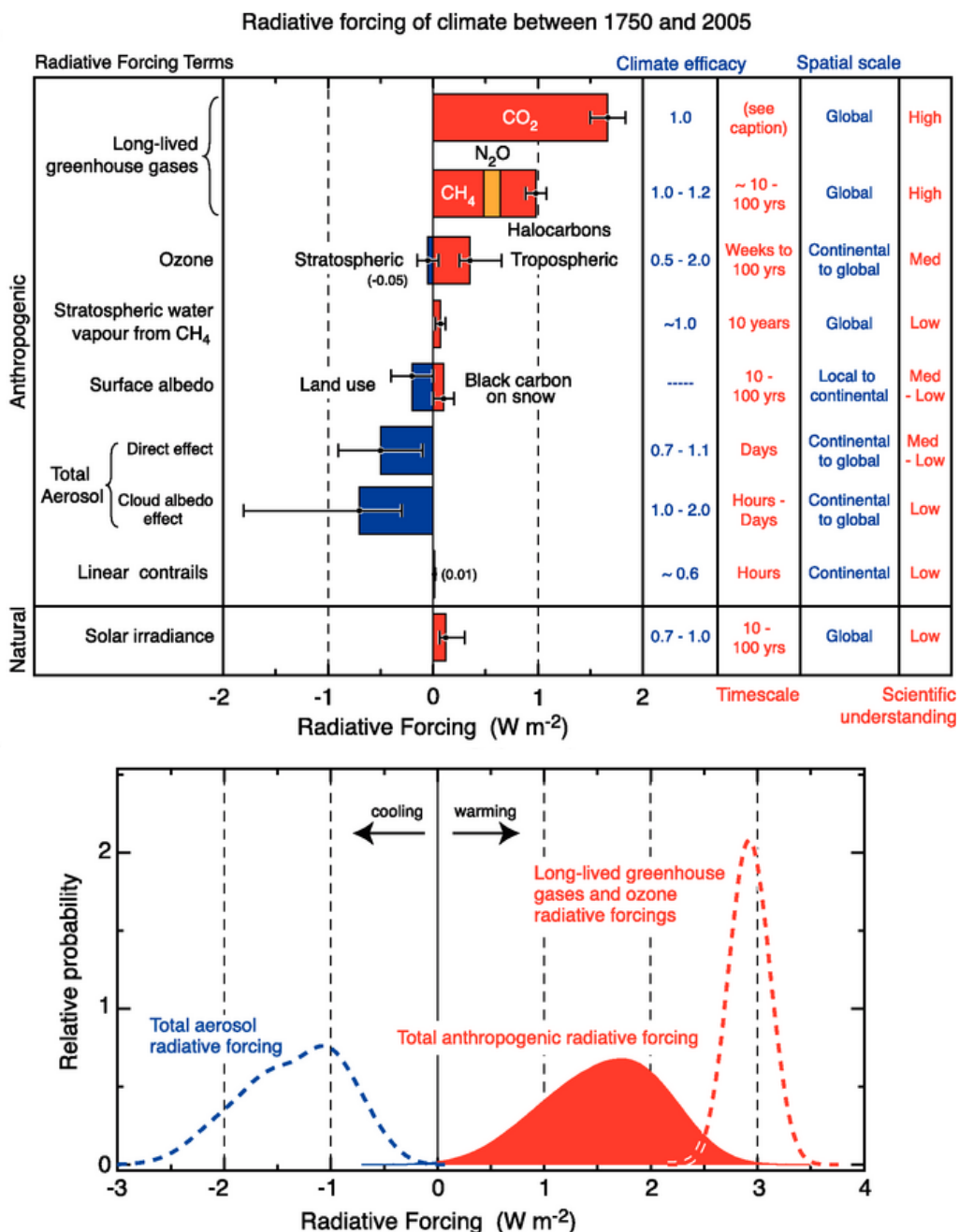


Figura 11: Gràfic superior: Mitjana dels forçaments radiatius (RFs) climàtics globals associats a l'emissió d'aerosols naturals i antropogènics durant el període 1750-2005. L'escala espacial indica l'extensió geogràfica del forçament i la columna de la dreta indica el "nivell de coneixement científic". Gràfic Inferior: Indica la funció de distribució de probabilitat resultant de la combinació dels forçaments radiatius dels aerosols antropogènics. Es mostren tres casos: el total de RFs de tots els antropogènics (corba sòlida vermella), dels gasos d'efectes hivernacle de llarga vida i de l'ozó (corba vermella discontinua) i el total associat a l'albedo dels núvols i al forçament directe dels aerosols (corba blava discontinua). Es pot observar com l'ozó troposfèric i el BC generen forçament positiu mentre que l'OC i els sulfats tenen un forçament negatiu. Extret de IPCC 2007, working group I

3.3.3 Forçament radiatiu semi-directe

Hansen et al (1997) va definir l'efecte semi-directe com l'impacte que els aerosols absorbents produïen en els núvols. Mitjançant una sèrie d'experiments efectuats amb un GCM va determinar que l'absorció de radiació d'ona curta pels aerosols generava una disminució de la humitat relativa i en conseqüència una reducció de la cobertura nuvolosa. Tot i que l'albedo dels núvols baixos és elevat, Hansel i el seu equip van observar que aquesta pèrdua de cobertura conduïa a un increment de l'escalfament de 0.17 K. Estudis similars van ser obtinguts posteriorment per Cook i Highwood (2003), amb un model GCM més simple. Els resultats mostraven un increment de 0.2 K degut a la disminució de la cobertura nuvolosa i a la reducció de l'activitat convectiva a causa de la presència d'aerosols antropogènics absorbents de la radiació, principalment carbó negre i matèria orgànica.

L'efecte semi-directe va ser estudiat també per Ackerman et al (2000) utilitzant el Large-Eddy-Simulation (LES) basant-se en dades observacionals procedents de l'oceà Índic durant els mesos de desembre a maig. Els vents baixos del nord-est advection grans quantitats d'aire contaminat procedents del sud d'Àsia cap al nord de l'oceà, especialment de carbó negre. Els resultats d'aquests estudis van ser la observació d'un elevat grau d'escalfament a la troposfera per absorció de la radiació solar a càrrec d'aquests aerosols (0.3-1 K per dia), una disminució de la humitat relativa a la capa límit i una reducció de la cobertura nuvolosa. Aquests fets estabilitzaven la capa límit (PBL) mitjançant la reducció dels fluxos d'humitat i la turbulència, resultant així en una supressió de la convecció a la capa de mescla.

Un estudi relativament recent (Hongbin et al., 2002) concreta que l'alçada de la capa límit no només és funció de l'empenta vertical (*bouyancy flux*) sinó també de la capa d'inversió (*entrainment zone*). Hongbin i el seu equip va estudiar la variació de l'alçada de la capa límit planetària en funció de la classe d'aerosols contaminants dominants a l'atmosfera per una determinada regió: purament dispersants o fortament absorbents. Es va determinar que pel cas de la presència únicament d'aerosols dispersants, el refredament originat en superfície redueix l'empenta vertical al llarg de la capa de mescla (menys convecció) i augmenta la força de la capa d'inversió, disminuint l'alçada de la PBL i reduint l'entrada de masses d'aire més seques i calentes procedents de la zona d'*entrainment*, implicant una major probabilitat de formació de cobertura nuvolosa. Ara bé, pel cas d'una atmosfera amb aerosols fortament absorbents, l'increment de la temperatura de la capa de mescla per emissió de radiació infraroja augmenta l'alçada de la PBL tot i la disminució de l'activitat convectiva per la pèrdua de radiació solar incident en superfície. A la vegada, la força de la capa d'inversió es veu afeblida liderant a una major entrada d'aire calent i sec de l'*entrainment zone* conduint a una pèrdua de cobertura nuvolosa.

3.3.4 Resum dels *feedbacks* aerosol-radiació

La presència d'aerosols absorbents i dispersants de la radiació a l'atmosfera pot afectar considerablement factors com ara la temperatura, el vent, l'alçada de la capa límit, el grau de fotòlisi del NO₂, l'albedo tant de la superfície com dels núvols i la cobertura nuvolosa. A diferència dels orgànics, sovint són els aerosols inorgànics els que dispersen amb més facilitat la radiació ultraviolada degut a la gran capacitat que presenten per captar molècules d'aigua. Aquest fet afavorirà el ràpid creixement de la partícula i n'augmentarà el seu caràcter dispersant (figura 12).

Per una banda s'ha determinat que els aerosols que dispersen la radiació solar (ona curta) eviten que part d'aquesta arribi a la superfície (forçament directe) disminuint-ne la seva temperatura, i en conseqüència reduint-se tant la temperatura (T) de l'aire que s'hi troba per sobre com la quantitat de vapor d'aigua disponible resultant de l'evaporació i evotranspiració. Com a resultat, els fluxos de calor turbulents ascendents (tèrmiques) i fluxos d'humitat es veuran menys potenciats tots afectant a la formació de nuvolositat. De l'altra, els aerosols capaços d'absorbir radiació UV no només generen un forçament negatiu prop de la superfície (refredament) per disminució de la quantitat de radiació en ona curta incident, sinó que també lideren a un escalfament de l'atmosfera en alçada per emissió de radiació d'ona llarga o IR provocant l'evaporació d'algunes gotes de núvol ja formades i disminuint conseqüentment la cobertura nuvolosa (efecte semi-directe). Aquests canvis en la radiació solar i en la temperatura acaben afectant directament i de manera negativa processos com ara la fotòlisi del NO₂ i la formació de l'ozó (el diòxid de nitrogen és el gas precursor d'aquesta molècula).

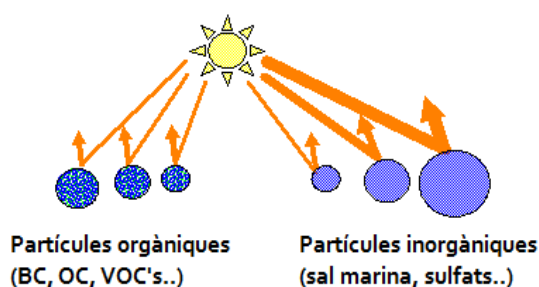


Figura 12: Figura representativa de la grandària i caràcter dispersant dels aerosols inorgànics vs. el dels orgànics.

Com a resultat de l'escalfament en alçada i el refredament en superfície generats per ambdós classes d'aerosols, té lloc un augment de l'estabilitat de la PBL i en conseqüència una disminució del seu gruix o espessor. En ambients nets lliures d'aerosols contaminants succeeix tot el contrari: l'estabilitat de la capa límit planetària disminueix i en conseqüència el seu gruix augmenta. La manca d'estabilitat en el cas d'una atmosfera contaminada per aerosols apareix degut a la reducció de l'activitat turbulenta i convectiva que s'hi desenvolupa producte del feble ascens vertical de fluxos de calor i humitat turbulents originats per la menor incidència de radiació solar en superfície.

La presència únicament d'aerosols purament dispersants de la radiació solar condueix a una supressió de l'activitat turbulenta a la capa de mescla (activitat convectiva) i a un increment de la força de la capa d'inversió, provocant per una banda que el cim de la capa límit disminueixi i per l'altra un guany de la cobertura nubulosa (en el cas que hi hagués humitat relativa suficient a l'ambient) degut a l'impediment de l'entrada d'aire més sec i calent procedent de la zona d'*entrainment*. Contràriament, la presència d'aerosols fortament absorbents de la radiació solar i emissors de radiació infraroja condueixen a un augment de la temperatura de la capa límit i a un afebliment de la capa d'inversió resultant en una disminució del cim de la capa límit (malgrat la disminució de l'activitat convectiva) i un afavoriment de l'entrada d'aire més sec i calent de l'*entrainment zone* tot minimitzant la probabilitat de formació de cobertura nubulosa (figura 13).

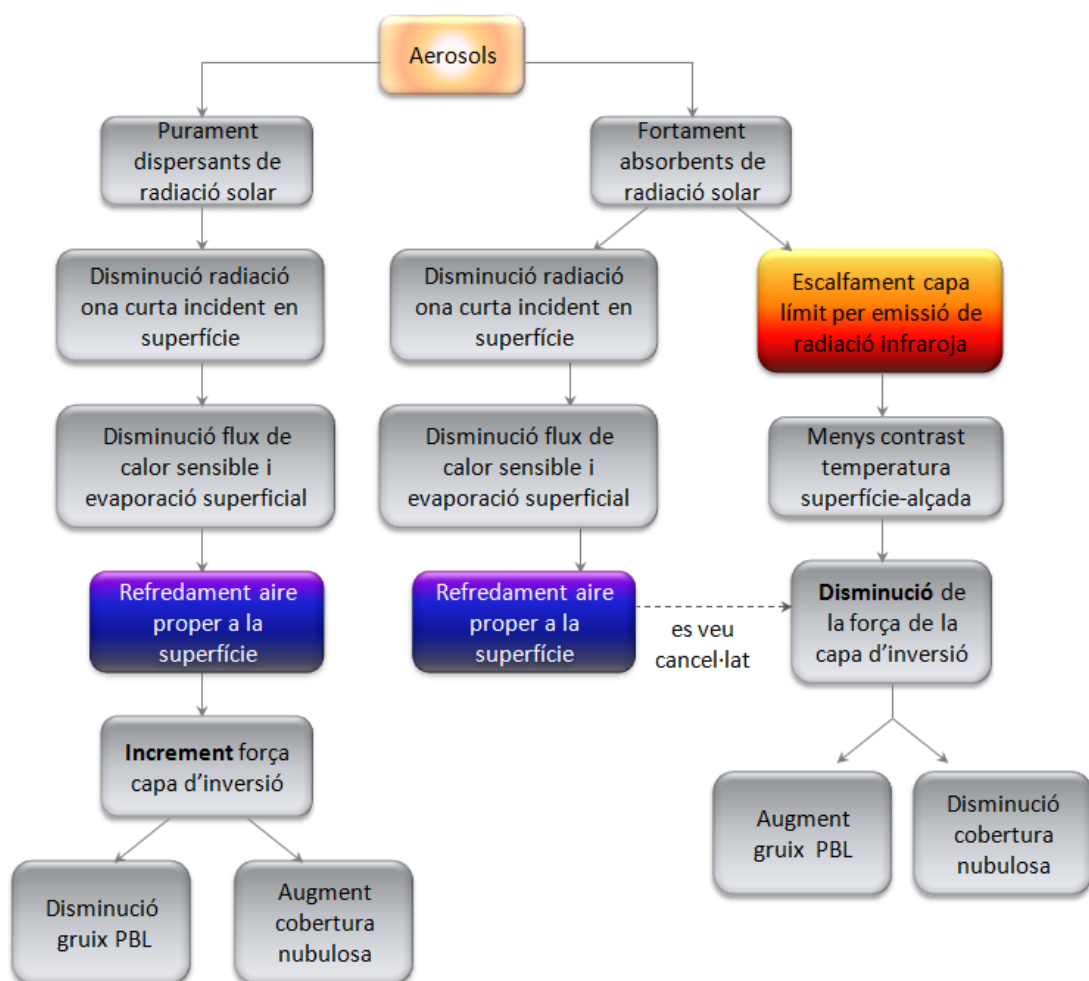


Figura 13: Representació dels feedbacks directes i semi-directes associats a la presència d'aerosols purament dispersants i aerosols fortament absorbents.

3.4 *Feedbacks* indirectes associat als aerosols

S'entén per *feedback* indirecte dels aerosols a la reacció del sistema climàtic al conjunt de processos pels quals els aerosols pertorben el balanç de radiació atmosfèrica a través de la modulació de l'albedo dels núvols i la quantitat de nuvolositat. Es pot considerar com un conjunt de processos que relacionen una sèrie de variables intermèdies (i.e., massa dels aerosols, composició del nuclis de condensació (CN), concentració dels cristalls de condensació (IN), nombre i distribució de la grandària de les gotes de núvols, espessor òptic del núvol, etc.) que connecten les emissions dels aerosols o els seus precursors amb els fenòmens atmosfèrics meteorològics i climàtics que se'n deriven (i.e., increment o disminució de la cobertura nuvolosa i alteració de la quantitat de precipitació total). Actualment, només dos models integrats online de mesoescala, el WRF-Chem als Estats Units i el EnviroHirlam a Europa, consideren els *feedbacks* indirectes dels aerosols.

3.4.1 Evidència observacional dels *feedbacks* indirectes

Les fonts de suport observacional del forçament indirecte pels aerosols prové de diverses fonts. Per una banda estudis de núvols mitjançant imatges de satèl·lit mostren que en zones properes a fonts de SO₂, els núvols contaminats per aerosols presenten una major reflectivitat respecte els núvols llunyans a zones afectades per la pol·lució (Kuang and Yung, 2000). Un altre estudi dut a terme per Han et al. (1998a) mostra com la concentració de gotes d'una columna de núvol observada augmenta considerablement en núvols baixos a mesura que avança des d'una zona marina a una zona continental. S'ha trobat també que aquesta sol ser major en regions tropicals on la crema de biomassa hi és prevalent. Wetzel i Stowe (1999) van demostrar que existeix una correlació significant entre l'espessor òptic de l'aerosol i el radi efectiu (r_{ef}) de les gotes de núvol (correlació negativa) i una correlació positiva entre l'espessor òptic de l'aerosol i l'espessor òptic del núvol per a núvols amb espessors òptics inferiors a 15. Un altre estudi realitzat per Han et al. (1998b) conclou que existeix també una correlació negativa entre l'albedo dels núvols i la grandària de les gotes per a núvols òpticament primis; i una correlació positiva entre ambdues per a espessors òptics més petits que 15 (ambdós disminueixen).

Estudis paral·lels basats en numerosos experiments o a través de l'anàlisi de dades observacionals proporcionades per satèl·lits també evidencien una alteració de la quantitat de precipitació assolida sobre una determinada regió en funció del grau de contaminació local o en punts propers. Per exemple, el fum alliberat per la crema d'arbres a l'Amazonia i la crema de plantacions agrícoles a Indonèsia va ser tema d'estudi en diverses ocasions [Rosenfeld, 1999, 2000] determinant que l'alliberació de grans quantitats d'aerosols i gasos contaminants productes de la combustió afavoria l'inhibició de la precipitació per alteració dels processos que la originen. Un segon cas de supressió de la precipitació (entre el 15-20%) es produeix en àrees d'orografia complexa a les regions de Califòrnia i Israel degut a una elevada presència d'aerosols antropogènics (Rosenfeld et al., 2008a). I un darrer cas en el que contràriament la precipitació es veia incrementada s'ha observat a sotavent de zones urbanes o prop de fonts d'emissió com ara fàbriques/indústries suggerint que la formació de grans nuclis de condensació afavoreix la seva eficiència (Givat i Rosenfeld 2005; Rosenfeld, 2008a)

3.4.2 Aerosols com a nuclis de condensació

L'efectivitat d'una partícula com a nucli de condensació depèn de la seva grandària i la seva capacitat de reaccionar amb l'aigua. Les partícules d'aerosols són els nuclis a partir dels quals les gotes de núvols s'originen i per tant, els núvols i els aerosols han de coexistir. Així doncs, els aerosols atmosfèrics poden ser hidrofòbics (no reaccionaran amb l'aigua) i per tant no s'activeran en el núvol sota cap circumstància, insolubles en aigua però poden posseir grups hidrofílics que permetin a les partícules humitejar-se i activar-se a nivells d'alta supersaturació, o bé estar formades per algun component soluble en aigua que s'activarà a baixes supersaturacions una vegada assolit el seu radi crític.

Els sulfats, el clorur de sodi, i altres sals solubles en aigua i àcids inorgànics són ben comuns entre els aerosols atmosfèrics i en els CN. Les habilitats d'aquestes espècies per actuar com a nuclis de condensació són relativament ben conegudes (presenten una elevada facilitat per reaccionar amb l'aigua i solen formar nuclis grans de condensació), mentre que les que presenten les espècies orgàniques per actuar-hi no ho són tant.

Pel que fa a la solubilitat de les espècies orgàniques oxigenades, aquesta tendeix a disminuir a mesura que incrementa el número de carbonis. Shulman et al. (1996) van demostrar que l'activació d'aerosols orgànics amb baixes solubilitats en els núvols es retraçava entre 1-3 segons degut a un increment del temps de dissolució. Altres estudis més recents han determinat que alguns aerosols formats per revestiments de components orgànics pesants

també reduïen el creixement higroscòpic de partícules de clorur de sodi (Hansson et al, 1998). Per a partícules d'aerosols amb una mescla de components inorgànics (sals o àcids) i orgànics menys solubles i volàtils, la presència d'aquests darrers contribuïa a la disminució de la supersaturació crítica per a l'activació degut a una reducció en la grandària i massa de la partícula i especialment, si els orgànics actuaven disminuint-ne la tensió superficial.

D'altra banda, certs gasos altament solubles (àcid nítric) poden dissoldre's en una solució creixent de gotes abans que es produeixi l'activació dels CN ens els núvols. L'addició d'aquesta substància inorgànica pot fer disminuir la supersaturació crítica del vapor d'aigua per a l'activació, accelerant d'aquesta manera el procés de condensació de l'aigua sobre la partícula. El resultat serà un increment del número de gotes d'aigua líquida i en conseqüència, es produirà un augment de la quantitat de precipitació. Els models de gran escala han de ser capaços de predir l'espectre dels CN i IN, així com representar factors importants relacionats amb aquests (tipus d'hidrometeors, la distribució de la grandària de les gotes, la composició, i propietats radiatives dels núvols) per tal de proveir una major concepció dels efectes indirectes.

Les gotes d'aigua dels núvols representen a la vegada un medi de reacció important per al desenvolupament d'una multitud de transformacions químiques en fase aquosa (i.e., oxidació del diòxid de sofre dissolt a sulfat) en les quals els productes obtinguts són gasos no volàtils que romandran dins la solució afavorint encara més l'augment de la massa i la grandària de la partícula conduint a la formació de nuclis gegants de condensació.

3.4.3 Concentració del nombre de gotes

L'impacte dels nuclis de condensació en la concentració de gotes d'aigua líquida del núvol (N_{ii}) pot ser no-lineal. Per exemple, Ghan et al. (1998) van mostrar que la presència d'altres concentracions d'aerosols de sal marina incrementava N_{ii} a baixes concentracions de sulfats i fortes velocitats d'ascens, però contràriament disminuïa N_{ii} en presència d'elevades concentracions de sulfat i dèbils velocitats d'ascens. Actualment, existeixen dos mètodes generals que s'han emprat per a determinar la relació entre els canvis en la concentració del nombre de gotes i la concentració dels aerosols. El primer i el més simple, empra una relació empírica que relaciona directament la quantitat d'aerosols amb N_{ii} (Gillani *et al.*, 1995). El segon en canvi, es basa en una parametrització per a pronosticar el procés de formació de les gotes del núvol (Abdul-Razzak i Ghan, 2000).

Existeixen també altres factors dinàmics que afecten la predicció del N_{ii} . Per als mètodes de pronòstic, hi ha la necessitat d'entendre no només la funció de distribució de probabilitat (FDP) dels ascensos de l'aire (especialment en els stratocúmul marins; Feingold *et al.*, 1998) sinó la FDP dels ascensos que produeixen la nucleació de les gotes.

3.4.4 Aerosols, nuvolositat i efectivitat en la precipitació

L'efecte indirecte dels aerosols en els núvols no només ve determinat pel canvi en la concentració i grandària de les gotes (primer efecte indirecte) sinó que també es troba fortament relacionat amb el contingut d'aigua líquida i temps de vida del núvol, la cobertura nuvolosa i la quantitat de precipitació generada (segon efecte indirecte).

El mecanisme postulat per tal d'explicar el procés a través del qual els aerosols alteren l'eficiència de la precipitació sobre una determinada regió seria el següent Com a conseqüència d'una excessiva i continuada emissió d'agents i partícules de matèria contaminants a l'atmosfera (i.e., carbó negre i matèria orgànica) es genera un elevat nombre d'aerosols que actuaran com a nuclis de condensació mitjançant la captació/condensació de molècules d'aigua (veure figura 14). Per una banda, l'activació (condensació del vapor d'aigua sobre el nucli de condensació) dels aerosols a la base del núvol limitarà la grandària final assolida de les gotes. Pel fet que les diferents partícules es troben competint per la captació de les molècules d'aigua disponibles a l'ambient, succeirà que a major nombre d'aerosols contaminants emesos a l'atmosfera major és el nombre de gotes de núvol més petites que s'acaben formant per processos de col·lisió/coalescència, provocant una atenuació de l'efectivitat de la precipitació i un increment del temps de vida mitjà del núvol (Albrecht, 1989). D'altra banda però, la grandària assolida pels nuclis de condensació també resulta determinant en la modulació de precipitació; així, la formació de grans nuclis de condensació (i.e., partícules de sal marina activades) resultaran en un increment important d'aquesta, mentre que la formació de petits nuclis de condensació conduirà a disminuir-ne la quantitat (Zang, 2008).

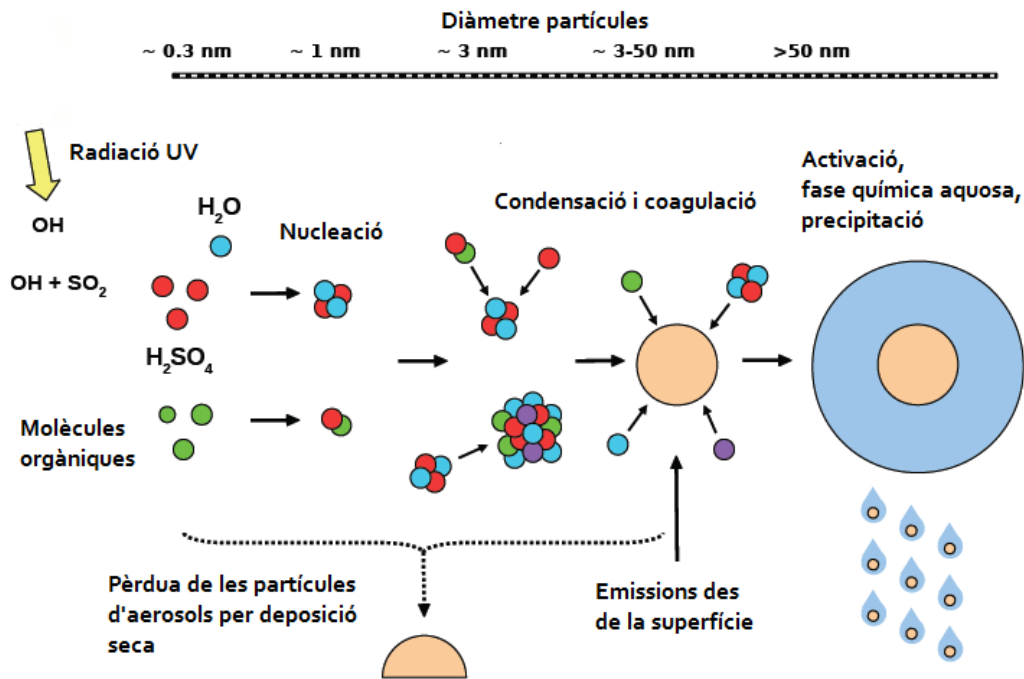


Figura 14: Representació de la formació, creixament i deposició humida d'un nucli de condensació.

3.4.5 Nuclis de gel

La formació de cristalls d'aigua líquida a l'atmosfera s'ha considerat un tema de gran importància degut a la seva participació en el procés de precipitació. S'ha vist que un gran nombre d'aerosols atmosfèrics són capaços de formar gotes d'aigua líquida actuant com a nuclis de condensació, a la vegada però, també poden formar cristalls de gel actuant com a nuclis de deposició. El gel pot formar-se per deposició sempre que l'aire es trobi supersaturat pel que fa al gel i la temperatura sigui prou baixa. Si l'aire es troba supersaturat pel que fa a l'aigua, la partícula d'aerosol actuarà bé com un nucli de refredament-condensació (l'aigua líquida primer hi condensarà i posteriorment es congelarà) o bé com un nucli de deposició (no hi haurà fase líquida intermèdia, si més no, a escala macroscòpica). Lògicament, un augment en el nombre d'aerosols tendirà a incrementar la concentració del nombre de cristalls de gel en el núvol degut a la major superfície disponible per a la deposició del vapor d'aigua. Lee i Penner (2010) van estudiar l'efecte dels aerosols en els núvols de gel i van determinar que la seva presència jugava un paper molt important en el desenvolupament de corrents verticals més forts degut a la calor alliberada per deposició, i en conseqüència s'incrementava el contingut de massa d'aigua disponible per a la formació de cristalls de gel en núvols alts (cirrus).

Tant per a núvols baixos com per a núvols alts a la troposfera, els processos d'inicialització de cristalls de gel (i.e., nucleació homogènia i heterogènia) depenen en bona mesura dels aerosols atmosfèrics. Així, per a núvols cirrus formats mitjançant la nucleació homogènia (i.e., inicialitzats dins la mateixa fase líquida sense presència de substrat) existeixen fonaments prou sòlids per tal de justificar la presència d'un component antropogènic (el sulfat) associat a la formació dels IN (e.g., Feichter *et al.*, 1996). Un altre exemple es dona en els núvols polars, un cas especial dels cirrus baixos, on s'hi ha observat que la presència d'aerosols àcids procedents de la calitja Àrtica afavoreixen la formació de grans cristalls de gel (Blanchet i Girard, 1995).

Els nuclis de deposició constitueixen una porció més petita que els nuclis de condensació ja que quan creixen ho solen fer més ràpidament degut que la seva pressió de vapor de saturació és més petita que la de l'aigua. Les baixes concentracions de nuclis de gel en els núvols i el divers nombre de mecanismes físics que participen en la formació dels cristalls fa que resulti ser un camp de difícil mesura. Hom podria esperar una elevada correlació entre les concentracions de cristall i els nuclis de gel, tot i així, estudis demostren que a bona part dels núvols les concentracions de cristalls excedeixen els nuclis de gel en diversos ordres de magnitud (DeMott *et al.*, 1996).

3.4.6 Resum de la interacció aerosol-núvol i efectes indirectes associats

Tot i que la quantitat de precipitació depèn principalment de la cobertura i la quantitat d'aigua líquida continguda a l'interior del núvol, els aerosols hi juguen també una sèrie de rols interessants. En primer lloc, juntament amb l'empenta vertical de la massa d'aire i el vapor d'aigua contingut, aquests actuen de "nutrients" bàsics per a la formació de les gotes d'aigua líquida i els cristalls de gel actuant com a nuclis de condensació i de deposició, respectivament. En segon lloc, la grandària i concentració de les partícules modularà la quantitat de precipitació sobre una determinada zona; així, en presència de grans nuclis de condensació amb un elevat contingut de sals inorgàniques solubles (i.e., aerosols marins) la magnitud de la supersaturació crítica del vapor d'aigua dins el núvol serà menor, fet que permetrà que aquests s'activin més ràpidament. El resultat serà un increment de l'efectivitat en la precipitació. En canvi, nuclis petits amb poc contingut de salts solubles dissoltes tendiran a suprimir-la (i.e., aerosols continentals); d'altra banda, l'emissió de grans concentracions d'aerosols contribuirà a l'afebliment del núvol i en conseqüència la precipitació resultant també es veurà reduïda (veure figura 15). En darrer lloc, els nuclis de condensació solen ser més grans en ambients contaminats i es troben constituïts de material inorgànic soluble (probablement carbó) mesclat internament amb material orgànic insoluble.

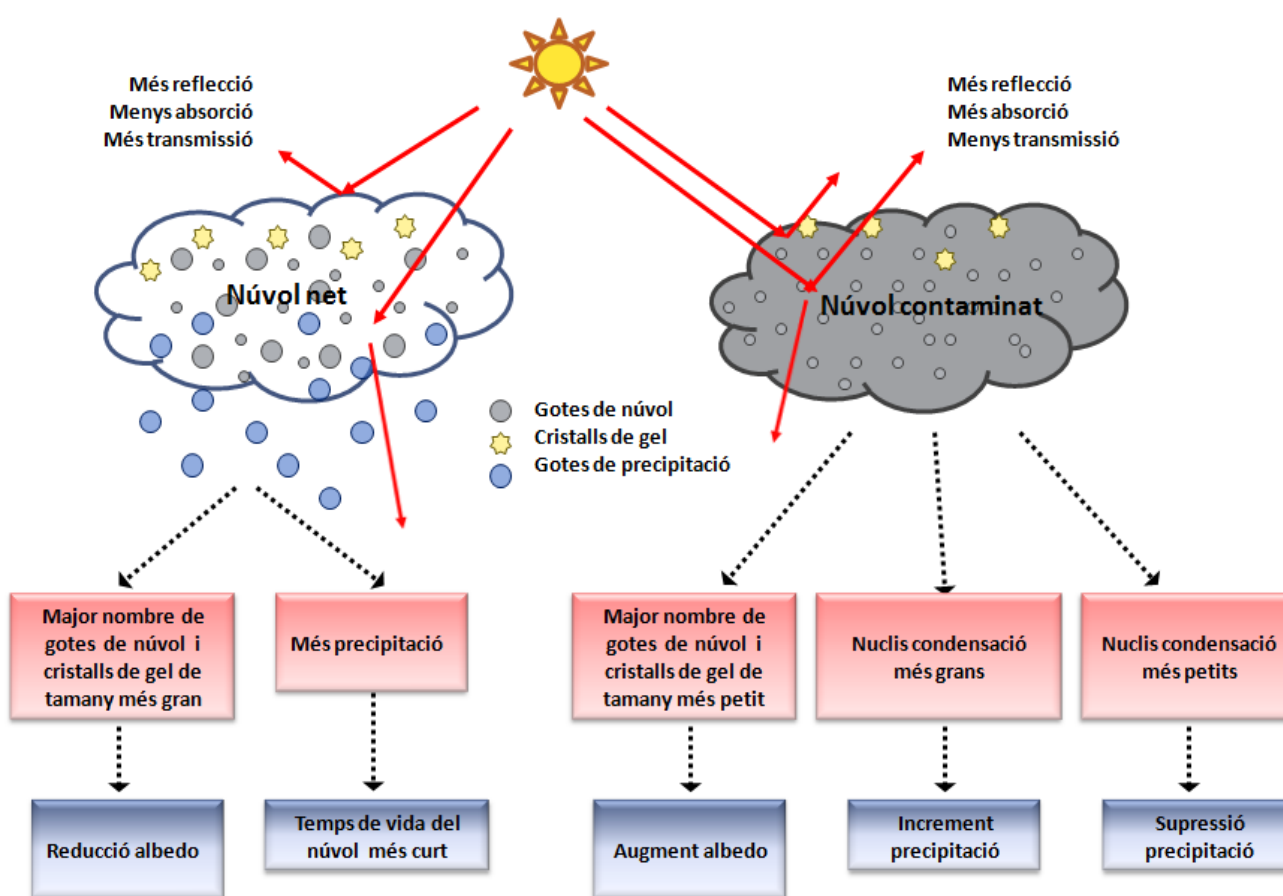


Figura 15: Representació dels feedbacks indirectes degut a la presència d'aerosols

4 Classificació descriptiva dels models online

Seguidament s'exposen i es descriuen 14 models online, 12 online integrats i 2 online d'accés, amb les seves característiques i funcions principals. També hi constaran taules que resumeixen i complementen el text descriptiu. Els models estudiats en aquest capítol són els següents:

- AQUM
- BOLCHEM
- Enviro-HIRLAM
- GEM-AQ
- MC2-AQ
- MCCM
- MESO-NH
- TAPM
- OPANA
- COSMO LM-ART
- COSMO LM-MUSCAT (accés)
- WRF-Chem
- IFS-MOZART (accés)
- ICLAMS
- CAM3

4.1 AQUM

L' *Air Quality in the Unified Model* és un model online integrat i es tracta de la versió d'àrea limitada del *United Kingdom Chemistry and Aerosols* (UKCA), emprat per al pronòstic operacional de gasos i partícules contaminants a l'atmosfera sobre la regió del Regne Unit, Irlanda, i la major part de França i Alemanya, amb una resolució horitzontal de 12 km i per un horitzó de pronòstic a 48h. Està basat en el model numèric de predicció *Unified Model* (MetUM), i ha estat desenvolupat pel *Unified National Weather Prediction Model* al Met Office en col·laboració amb la *Cambridge University* i la *Leeds University*.

El mòdul meteorològic, l'*Unified Model*, és un model no hidrostàtic que utilitza dades d'inicialització i de contorn procedents del *Met Office North Atlantic and European Model* (NAE) i de models d'escala global com ara el *Global Environmental Multiscale Model* (GEM). Presenta 38 nivells verticals, establerts des dels 20 m fins als 39 km. Es tracta d'un model privat el qual requereix l'activació d'una llicència per tal de fer-ne ús (ja sigui comercial o no)

El mòdul químic del AQUM presenta dos mecanismes per a tractar la fase química: el *Standard Tropospheric Chemistry* (STC) amb 46 espècies (8 d'elles emeses), 102 reaccions en fase gas i 27 reaccions de fotòlisi, i el *Regional Air Quality* (RegAQ) amb 40 espècies (16 d'elles emeses), 115 reaccions en fase gas i 23 reaccions de fotòlisi (Abraham et al., 2012). Mentre que el STC simula els cicles químics del Ox, HOx i NOx així com l'oxidació del metà, età i propà i és deuat per a estudis inicials del sistema de predicció, el RegAQ tracta l'oxidació de l'isopropè, d'alquens (2 i 3 carbonis), i de compostos aromàtics i resulta adient per a casos d'estudi i pronòstic operatiu. Els processos microfísics que descriuen la formació i transformació dels aerosols (sal marina, pols, SO₂, SO₄, BC i OC) són calculats pel mòdul d'aerosols seccional: *Canadian Aerosols Module* [CAM] (Gong et al., 2003). Les condicions inicials i de contorn químiques són proporcionades pel model global *Global Environment Multiscale-Global Reactive Gases* (GEMS-GRG). Les dades d'entrada d'emissions per a la regió del Regne Unit són preses del *National Atmospheric Emissions Inventory* (NAEI) mentre que les alienes al Regne Unit són preses del *European Monitoring and Evaluation Programme-Centre on Emission Inventories and Projections* (EMEP-CEIP).

Pàgina web oficial:

<http://www.metoffice.gov.uk/research/modelling-systems/unified-model>

Pàgines web relacionades:

http://www.weatheroffice.gc.ca/model_forecast/global_e.html (GEMS)

<http://naei.defra.gov.uk/> (NAEI)

<http://www.ceip.at/> (EMEP-CEIP)

Casos d'estudi del model:

Cullen, M. J. P., Davies, T., Mawson, M. H., James, J. A., Coulter, S. C., and Malcolm, A.: An overview of numerical methods for the next generation of NWP and climate models, in: Numerical methods in atmospheric and ocean modelling. The Andre Robert memorial volume, edited by: Lin, C., Laprise, R., and Ritchie, H., pp. 425–444, Canadian Meteorological and oceanographic Society, Ottawa, Canada, 1997.

Derwent R.G., Ryall D.B., Jennings S.G., Spain T.G., Simmonds P.G.: Black carbon aerosol and carbon monoxide in European regionally polluted air masses at Mace Head, Ireland during 1995 - 1998, *Atmospheric Environment* 35, 6371-6378, 2001.

Manning A.J., Ryall D.B., Derwent R.G., Simmonds P.G., O'Doherty S.: Estimating European emissions of ozone-depleting and greenhouse gases using observations and a modelling back-attribution technique, *J. Geophysical Research* 108, 4405, 2003.

Smith F.B., Clark M.J.: The transport and deposition of airborne debris from the Chernobyl nuclear power plant accident with special emphasis on the consequences to the United Kingdom, *Meteorological Office Scientific Paper No. 42*, HMSO, 1989.

Característiques Generals:

Tipus de model	- 3D - Mesoescala - Meteorològic i de transport químic acoblat online
Horitzó de pronòstic	Regional: curt termini
Aproximacions/Limitacions	- No hidrostàticitat - Atmosfera compressible
Resolució horitzontal	12 km
Nivells verticals	38 nivells, des dels 20 m fins als 39 km
Sistema de coordenades	Horitzontal: longitud i latitud rotades Vertical: Híbrid (combinació de coordenades: tetha per sobre la capa límit i sigma per sota)
Inicialització i dades de contorn	Meteorologia: - Met Office North Atlantic and European Model - Global Environmental Multiscale Model Química: - Global Environment Multiscale-Global Reactive Gases
Assimilació de dades	No s'usa directament
Niuament (Meteorologia/Química)	- Una direcció - Offline - Intercanvi de dades per fitxers
Variables meteorològiques pronosticades	$u, v, w, \theta, P, \rho, q_{vr}, q_{tr}, q_{fr}, q_{scr}, q_{lrr}, q_{sgf}, q_{ss}$
Espècies químiques pronosticades	$SO_{2r}, NO, NO_{2r}, NH_{3r}, HNO_{3r}, O_{3r}, CH_{4r}, DMS, H_2O_{2r}, HCHO, CO, NH_4^+, SO_{4r}$ pols, BC, POM, NO_3
Feedbacks	Directes

Física del model:

Procés	Parametrització
Turbulència	Lock et al. [2000]. Capa límit de 1er ordre, no local i multi-règim.
Convecció	- Gregory i Rowntree [1990] per a la Superficial convection considerant els corrents descendents i el transport de moment del flux de massa. - Fritsch i Chapell [1980] per a la convecció profunda mitjançant el mètode de la CAPE.
Intercanvis a la superfície	MOSES II- (Essery et al, 2003) és capaç de tenir en compte fins a 9 tipus diferents de superfícies.

Radiació	Slingo i Wilderspin, [1986] ; Slingo, [1989] per a tractar els efectes de les partícules de gel no-esfèriques, scattering multiple entre capes de núvols, absorció pel CO ₂ ,H ₂ O,O ₃ ,O ₂ ,N ₂ O,CH ₄ i CFC ₁₁ .
Fricció orogràfica	Webster et al., [2003] i Milton et al., [1996]. Consideren la formació de remolins degut a la presència d'obstacles orogràfics i la rugositat del terreny respectivament.
Núvols/Precipitació	-Smith, [1990] només per al diagnòstic dels núvols. -Brooks et al., [2005] . Té en compte el contingut d'aigua líquida i la cobertura nuvolosa. -Wilson i Ballard, [1999] modelitza la transició entre el vapor d'aigua- líquida- gel i precipitació
Fase química gas	- Standard Tropospheric Chemistry (Abraham et al., 2012) - Regional Air Quality (Abraham et al., 2012)
Emissions	NAEI (Regne Unit) EMEP-CEIP (Regons alienes a UK)
Aerosols	- Canadian Aerosols Module (Gong et al., 2003) - CLASSIC (Jones et al., 2001) empra els camps de OH I HO ₂ de la fase química gas per a tractar la química del sulfur - Enfoc modal
Fotòlisi	Fast-J (Wild et al., 2000) executada online i acoblada amb l'aigua líquida modelitzada i els aerosols de sulfat a cada time step.
Deposició seca	Wesely, [1989] per a considerar la deposició seca dels gasos i els aerosols mitjançant el càlcul de les resistències superficials
Deposició humida	Adaptada de Giannakopoulos et al., [1999]

Referències:

- Abraham L.N., Archibald A. T., Bellouin N., Boucher O., Braesicke P., Bushell A., Carslaw K., Collins B., Dalvi M, Emmerson K., Folberth G., Haywood J., Johnson C., Kipling Z., Macintyre H., Mann G., Telford P., Merikanto J., Morgenstern O., O'Connor F., Ordóñez C., Osprey S., Pringle K., Pyle J., Rae J., Reddington C., Savage N., Spracklen D., Stier P., West R.: Unified Model Documentation Paper No. 84: United Kingdom Chemistry and Aerosol (UKCA) Technical Description MetUM Version 8.2, 2012.
- Brooks, M. E., Hogan R. J., Illingworth, A. J.: Parameterizing the difference in cloud fraction defined by area and by volume as observed with radar and lidar, *J. Atmos. Sci.*, 62(7), 2248–2260, doi:10.1175/JAS3467.1, 2005.
- Essery, R. L. H., M. J. Best, R. A. Betts, P. M. Cox, and C. M. Taylor: Explicit representation of subgrid heterogeneity in a GCM land-surface scheme, *J. Hydrometeorol.*, 4(3), 530–543.es: 530-543,
- Fritsch, J., and C. Chappell : Numerical prediction of convectively driven mesoscale pressure systems. part i: Convective parameterization, *J. Atmos. Sci.*, 37, 1722–1733, 1980.
- Giannakopoulos, C., Chipperfield, M. P., Law, K. S., and Pyle, J. A., Validation and intercomparison of wet and dry deposition schemes using 210Pb in a global threedimensional off-line chemistry model, *J. Geophys. Res.*, 104, D19, 23761-23784, 1999.
- Gong S. L., Barrie L. A., Blanchet J.-P., Salzen K., Lohmann U., Lesins G., Spacek L., Zhang L. M., Girard E., Lin H., Leaitch R., Leighton H., Chylek P., Huang P.: Canadian Aerosol Module: A size-segregated simulation of atmospheric aerosol processes for climate and air quality models 1. Module development, *J. of Geo. Res.*, VOL. 108, NO. D1, 4007, doi:10.1029/2001JD002002, 2003.

- Gregory, D., and P. R. Rowntree: A mass-flux convection scheme with representation of cloud ensemble characteristics and stability dependent closure, *Mon. Weather Rev.*, 118, 1483–1506, 1990.
- Jones, Roberts, Woodage & Johnson, 2001: Indirect sulphate aerosol forcing in a climate model with an interactive sulphur cycle. *Journal of Geophysical Research*, Volume 106, Issue D17, p. 20293-20310.
- Lock, A. P., A. R. Brown, M. R. Bush, G. M. Martin, and R. N. B. Smith: A new boundary layer mixing scheme. Part I: Scheme description and single column model tests. *Mon. Wea. Rev.*, 128, 3187–3199, 2000.
- Slingo, A.: A GCM Parametrization for the Shortwave Radiative Properties of Water Clouds. *J. Atmos. Sci.*, 46, 10, 1419-1427, 1989.
- Slingo, A., and Wilderspin, R.C.: Development of a revised longwave radiation scheme for an atmospheric general circulation model. *Quart. J. Roy. Met. Soc.*, 112, 371-386, 1986.
- Smith, R. N. B.: A scheme for predicting layer clouds and their water content in a general circulation model, *Q.J.R. Meteorol. Soc.*, 116, 435–460., 1990.
- Webster S., Brown A.R, Cameron D.R, Jones C.P: Improvements to the representation of orography in the Met Office Unified Model. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 129, 1989–2010, 2003.
- Wesely, M. L., Parameterization of surface resistance to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models, *Atmos. Environ.*, 23, 1293-1304, 1989.
- Wilson D.R., Ballard S.P.: A microphysically based precipitation scheme for the UK meteorological office unified model. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* Volume 125, Issue 557, pages 1607–1636, Part A, 1999.
- Wild, O., Zhu, X., and Prather, M. J.: Fast-J: Accurate Simulation of In- and Below-Cloud Photolysis in Tropospheric Chemical Models, *J. Atmos. Chem.*, 37, 245–282, 2000.

4.2 BOLCHEM

El *Bologna limited area model for meteorology and Chemistry* (BOLCHEM) es tracta d'un model de mesoescala integrat online desenvolupat al *Istituto di Scienze dell'Atmosfera e del Clima* (ISAC) pel grup de meteorologia dinàmica, a Bolònia per tal de dur a terme estudis de la qualitat de l'aire sobre la regiò d'Itàlia, amb una resolució horitzontal de $0,5^{\circ} \times 0,5^{\circ}$ ($40 \text{ km} \times 40 \text{ km}$) per un horitzó de pronòstic a 48 hores.

El mòdul meteorològic, el BOLAM, és un model meteorològic d'àrea limitada hidrostàtic, que utilitza les dades subministrades per l' *European Centre for Medium-Range Weather Forecast* (ECMWF) o pel *Global Forecast System* (GFS) per tal d'establir les condicions inicials i de contorn. Presenta 33 nivells verticals sigma, des de la superfície fins als 30 km. Es tracta d'un model de codi obert, disponible tan per a la col·laboració científica com per a ús operacional.

El BOLAM està acoblat a una processador químic mitjançant la interfície: *Flexible Chemical Mechanism* [FCM] (Kumar et al. 1995) el qual conté diferents mòduls químics: el *Statewide Air Pollution Research Center* [SAPRC90] (Carter, 1990) amb 35 espècies i 131 reaccions químiques, i el *Carbon Bond Mechanism* [CBM-IV] (Gery et al., 1989) amb 30 espècies i 85 reaccions químiques i un mòdul d'aerosols (el M7) del ECHAM5. Mentre que el SAPRC90 agrupa els gasos orgànics segons el tipus de molècula, el CB-IV els agrupa segons el tipus d'enllaç del carboni. El mòdul d'aerosols M7 és pseudomodal i conté informació dels processos dinàmics de les partícules d'aerosols: nucleació homogènia, coagulació, condensació (i.e., sulfat sobre aerosols pre-existents) i sedimentació. Les següents espècies hi són considerades: SO_4^{2-} , BC, OC, salt marina i pols. Les dades inicials i de contorn són cedides pel model d'escala global *Integrated Forecast System* (IFS) del ECMWF i pel *Model for Ozone and Related Chemical Tracers* versió 2 (MOZART-2) respectivament. Empra dades d'entrada d'emissions proporcionades per l'*European Monitoring and Evaluation Programme* (EMEP) i pel *Co-ordinated European Programme on Particulate Matter Emission Inventories, Projections and Guidance* (CEPMEIP).

Pàgina web oficial:

<http://bolchem.isac.cnr.it/>

Pàgines webs relacionades:

<http://www.ecmwf.int/research/> (ECMWF)

<http://www.air.sk/tno/cepmeip/> (CEPMEIP)

<http://www.emc.ncep.noaa.gov/index.php?branch=GFS> (GFS)

<http://www.isac.cnr.it/~dinamica/bolam/index.html> (BOLAM)

Casos d'estudi del model:

Butenschoen M.: BOLCHEM 0.9, A 3D prediction model of the meteorology and the chemical composition of the atmosphere, ISAC - CNR Report, Bologna, Italy, April 2003.

D'Isidoro M., Maurizi A., Tampieri F., Tiesi A., Villani M. G.: Assessment of the numerical diffusion effect in the advection of passive tracer in BOLCHEM. *Il Nuovo Cimento C*, 28, 151-158, 2005.

Maurizi A., D'Isidoro M. i Mircea M.: BOLCHEM, an integrated system for atmospheric dynamics and composition, *Integrated Systems of Meso-Meteorological and Chemical Transport Models*. Pàg. 89-94, 2007a.

Mircea, M., D'Isidoro M., Maurizi A., Vitali L., Monforti F., Zanini G., Tampieri F.: A comprehensive performance evaluation of the air quality model BOLCHEM to reproduce the ozone concentrations over Italy, *Atmos. Environ.*, 42(6), 1169-1185, doi:10.1016/j.atmosenv.2007.10.043, 2008.

Mircea, M., D'Isidoro M., Maurizi A., Vitali L., Monforti F., Zanini G., Tampieri F.: Saharan dust over Italy: Simulations with regional air quality model bolchem, *Proceedings of 29th NATO/CCMS International Technical Meeting on Air Pollution Modelling and its Application XIX*, C. Borrego and A. I. Miranda, eds., 2007d.

Mircea M., D'Isidoro M., Maurizi A., Villani M.G., Buzzi A., Fuzzi S., Tampieri F., Zanini G., Monforti F., Vitali L.: Ozone modelling over Italy: a sensitivity analysis to precursors using BOLCHEM air quality model. *IXX GLOREAM workshop*, 11-13, 2006.

Mircea M., D'Isidoro M., Villani M.G, Maurizi A., Tampieri F.: Spotlight on the development of the regional air quality model BOLCHEM: adding aerosol model M7, 20 Convengno Nazionale sul Particolato Atmosferico, 10-13 settembre 2006, Firenze.

Russo F., Maurizi A., Tampieri F.: Studying the feedback processes in the model BOLCHEM, Geophysical Research Abstracts, Vol. 13, EGU2011-14069, 2011

Tampieri F., D'Isidoro M., Maurizi A., Tiesi A., Villani M. G., Cuomo V., Mona L., Pappalardo G., Spinelli N., Wang X., Rizi V., Balis D., Trickl T., Mitev V., Kolarov G.: Tropospheric transport of volcanic aerosol in the Mediterranean area: a case study based on the 2002 Etna eruption. European Geophysical Union, General Assembly 2005, Wien 24-29, April 2005.

Villani M. G., Mona L., Maurizi A., Pappalardo G., Tiesi A., Pandolfi M., D'Isidoro M., Cuomo V., Tampieri F.: Transport of volcanic aerosol in the troposphere: the case study of the 2002 Etna plume, 2006.

Característiques Generals:

Tipus de model	- 3D - Mesoescala - Meteorològic i de transport químic acoblat online
Horitzó de pronòstic	Regional: curt termini
Aproximacions/Limitacions	- Hidrostaticitat - Boussinesq
Resolució horitzontal	40 km
Nivells verticals	33 nivells, des de la superfície fins als 30 km
Sistema de coordenades	Horitzontal: longitud i latitud rotades Vertical: sigma
Inicialització i dades de contorn	Meteorologia: - European Centre for Medium-Range Weather - Global Forecast System Química: - Integrated Forecast System
Assimilació de dades	Meteorologia: - Tècnica de nudging - Interpolació òptima Química: - Interpolació òptima
Niuament (Meteorologia/Química)	- Una direcció - Offline - Intercanvi de dades per fitxers
Variables meteorològiques pronosticades	u, v, θ, P, q_v, E
Espècies químiques pronosticades	$SO_2, NO, NO_2, NO_x, NH_3, HNO_3, O_3, VOC, HCHO, CO, PM_{10}, PM_{2,5}, NH_4^+, SO_4, \text{pols}, \text{sal marina}, BC, POM, SOA, NO_3$
Feedbacks	Directes

Física del model:

Procés	Parametrització
Turbulència	Mellor, [1974] per resoldre l'equació primitiva de l'energia cinètica turbulenta (TKE)
Convecció	Kain-Frisch, [1990] per a la convecció profunda. Permet descriure els processos d'entrainment i detrainment per sobre els 500hPa.
Advecció	E.F.Toro, [1999]. L'esquema Weighted Average Flux de segon ordre permet tractar l'advecció de les partícules d'aerosol contaminants.
Intercanvis a la superfície	Monin-Obukhov (Teoria de semblança) per tal de computar els fluxos de calor i humitat.
Radiació	Ritter i Geleyn, [1992] per a la radiació solar i infraroja, i per a calcular la seva interacció amb els núvols.
Fricció orogràfica	Proporcional a la variança orogràfica sense resoldre.
Núvols/Precipitació	Schultz, [1995] per a la microfísica explícita, amb 5 classes d'hidrometeors (incloent 3 espècies de cristalls de gel)
Fase química gas	- SAPRC90 (Carter, 1990) - CBM-IV (Gery et al., 1989)
Emissions	- EMEP (GEMS) - CEMEIP
Aerosols	- M7 - Enfoc pseudomodal
Fotòlisi	Establerta a partir de taules en funció de l'angle d'elevació solar i posteriorment corregida amb la raó entre el flux net total i el corresponent a un dia de cel serè proporcionada per l'esquema de radiació.
Deposició seca	Wesely, [1989]. Estableix una analogia amb la resistència expressant la velocitat de deposició en funció de tres termes: la resistència aerodinàmica, la quasi-laminar i la superficial.
Deposició humida	La quantitat de partícules eliminades per deposició humida a cada <i>time step</i> del model ve determinada a l'interior i per sota del núvol mitjançant el càlcul del coeficient d' <i>scavanning</i> (ahora funció de l'eficiència aerosol-gota, intensitat de precipitació i radi d' <i>scavanning</i> de la gota).

Referències:

Carter, W. P. L.: A detailed mechanism for the gas-phase atmospheric reactions of organic compounds. Atmos. Environ., 27A, 481-518, 1990.

Gery, M. W., Witten, G. Z., Killus, J. P., Dodge, M. C.: A photochemical kinetics mechanism for urban and regional scale computer modeling. J. Geophys. Res., 94(D10), 12925-12956, 1989.

Kain, J. S., J.M. Fritsch: A one-dimensional entraining/detraining plume model and its application in convective parameterization. J. Atmos. Sci., 47, 2784-2802, 1990.

Lurmann K.N, Frederick W., Carter, William P.L.: Development of the Flexible Chemical Mechanism Version of the Urban Airshed Model. Final Report STI-94470-1508-FR. Prepared for California Air Resources Board, Sacramento, CA. August, 1995.

Mellor, G. L., Yamada, T.: A hierarchy of turbulence closure models for planetary boundary layers. *J. Atmos. Sci.*, 31, 1791-1806, 1974.

Ritter B., Geleyn J.F.: A comprehensive radiation scheme for numerical weather prediction models with potential applications in climate simulations. *Mon. Wea. Rev.* 120, 303-325, 1992.

Schultz, P.: An explicit cloud physics parameterization for operational numerical weather prediction, *Mon. Weather Rev.*, 123, 3331-3343, 1995.

Toro, E. F.: The Weighted Average Flux Method Applied to the Euler Equations. *Phil. Trans. R. Soc. Lond.*, vol. 341 no. 1662 499-530, 1999.

Wesely, M. L.: Parameterization of surface resistance to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models, *Atmos. Environ.*, 23, 1293-1304, 1989.

4.3 Enviro-HIRLAM

Enviro-Hirlam és un model online integrat que es basa en una versió extesa del model *High Resolution Limited Area Model* (HIRLAM). El model meteorològic es troba acoblat a un driver químic que incorpora un mòdul per a tractar la fase química gas i un mòdul per als aerosols. Permet fer pronòstic meteorològic operatiu a escales des de l'hemisfèrica a la regional i urbana, així com dur a terme estudis de la qualitat de l'aire avaluant els *feedbacks* tan directes com indirectes associats a la presència d'aerosols. Ha estat desenvolupat al *Danish Meteorologic Institute* (DMI) a la ciutat de Copenhagen (Dinamarca) i pot operar en tres dominis diferents (els dos darrers els més utilitzats): sobre la regió T15 amb una resolució horitzontal de $0,15^\circ$ (15km), sobre una regió euroatlàntica (So3) amb una resolució horitzontal de $0,03^\circ$ (3km) i una àrea centrada sobre Dinamarca (Uo1) amb una resolució de $0,014^\circ$ (1,4km), generant pronòstic cada 24 o 48hores.

El Hirlam és un model meteorològic hidrostàtic i de mesoescala que permet treballar amb 31 nivells verticals al llarg de la troposfera. L'estat inicial atmosfèric s'obté corregint una primera estimació (basada en una predicció a curt plaç recent) mitjançant l'assimilació d'observacions convencionals procedents d'estacions meteorològiques en superfície, radiosondatges, vaixells, avions. així com dades brutes de satèl·lit subministrades pel ECMWF. El codi del model es troba disponible pels membres del consorci ja per ús oficial o de recerca, per a propòsits comercials s'ha de negociar amb el consell HIRLAM.

El mòdul químic disposa dels següents mecanismes: el mecanisme *Numerical Weather Prediction* (NWP-Chem-Gas) que treballa amb 17 espècies químiques advectades i 32 reaccions químiques, el *Regional Acid Deposition Model* versió 2 [RADM2] (Stockwell et al., 1990) el qual treballa amb 63 espècies i 156 reaccions, el mecanisme *Regional Atmospheric Chemistry Mechanism* [RACM] (Stockwell et al., 1997) que ho fa amb 49 i una versió extesa del mecanisme del CBM-IV: el *Carbon-Bond Mechanism version Z* [CBMZ] (Zaveri.R.A, 1999) amb 72. El mòdul d'aerosols es troba comprès en dues parts: un model d'equilibri termodinàmic (el NWP-Chem-Liquid [Korsholm et al. 2008]) i tres models de dinàmica d'aerosols: el *Chemistry-Aerosol-Cloud* (CAC) (Gross i Baklanov, 2004), el *Model for Simulating Aerosol Interactions and Chemistry* (MOSAIC) (Zaveri et al., 2007) i el *Modal Aerosol Dynamics Model for Europe* (MADE [Ackerman et al., 1998]) amb el mòdul d'aerosols secundaris *Secondary Organic Aerosol Model* [SORGAM] (Schell et al., 2001). Les dades inicials i de contorn són proporcionades pel model d'escala global IFS del ECMWF, pel DMI-HIRLAM15 i pel DMI-HIRLAM05. L'inventori d'emissions utilitzat és el generat per l'EMEP (GEMS-TNO).

Pàgina web oficial:

http://www.hirlam.org/index.php?option=com_content&view=category&layout=blog&id=108&Itemid=104
(requereix subscripció)

Pàgines web relacionades:

<http://www.hirlam.org> (HIRLAM)

Casos d'estudi del model:

Baklanov, A., Gross A., Sørensen J.H.: Modeling and Forecasting of Regional and Urban Air Quality and Microclimate, *J. Computational Technologies*. 9-2, 82-97, 2004.

Baklanov, A: Meteorological advances and systems for urban air quality forecasting and assessments. Short Papers of the 5th International Conference on Urban Air Quality Valencia, Spain, 29-31 March 2005, CLEAR, pp. 22-25, 2005.

Baklanov, U. Korsholm, A. Mahura, C. Petersen, and A. Gross , ENVIRO-HIRLAM: on-line coupled modelling of urban meteorology and air pollution. *Danish Meteorological Institute, Adv. Sci. Res.*, 2, 41-46, 2008.

Chenevez, J., A. Baklanov and J. H. Sørensen, Pollutant Transport Schemes Integrated in a Numerical Weather Prediction Model: Model Description and Verification Results. *Meteorological Applications* 11,265-275, 2004.

Korsholm, U., Baklanov, A., Mahura, A., Petersen, C., Lindberg, K., Gross, A., Rasmussen, A., Sørensen, J. H., Chenevez, J.: ENVIRO-HIRLAM. An On-Line Coupled Multi-Purpose Environment Model, ACCENT/GLOREAM Workshop 2006 Proceedings, 2006.

Característiques Generals:

Tipus de model	- 3D - Mesoescala - Meteorològic i de transport químic acoblat online
Horitzó de pronòstic	Regional i urbana: curt termini
Aproximacions/Limitacions	Hidrostaticitat
Variabls meteorològiques pronosticades	$u, v, T, p, q_{lc}, q_{lr}, q_{ss}, E$
Resolució horitzontal	- T15: 15 km - M09: 9km - S03: 3km - U01: 1,4 km
Nivells verticals	40 nivells
Variabls meteorològiques diagnosticades	$w, \zeta, p_v, \theta, G_{ph}, \rho, N, z_i, \epsilon$
Inicialització i dades de contorn	Meteorologia: Dades Observacionals, ECMWF, T15 Química: IFS, DMI-HIRLAM15, DMI-HIRLAM05
Assimilació de dades	Meteorologia: 3D-VAR Química: 3D-VAR
Niuament (Meteorologia/ Química)	- Online - Intercanvi de dades per matrius
Sistema de coordenades	Horitzontal: longitud i latitud rotades Vertical: híbrides
Substàncies químiques diagnosticades	SO ₂ , NO _x , NH ₃ , CO, NMVOC's, CH ₄ , PM _{2.5} , PM ₁₀
Espècies advectades	NO, NO ₂ , SO ₂ , CO, HC, HCHO, O ₃ , HO ₂ , HNO ₃ , H ₂ O ₂ , H ₂ , H ₂ SO ₄ , OH, OR ₂ , ROOH.
Feedbacks	- Directes - Indirectes

Física del model:

Procés	Parametrització
Turbulència	CBR-TKE-1 (Cuxart et al., 2000) per resoldre l'equació de la TKE
Convecció	STRACO (Sass, 2002) per a la convecció en el bulk i la microfísica dels núvols.
Radiació	Savijäri, [1990]

Núvols/Precipitació	Els processos de condensació, evaporació i autoconversió en els núvols càlids són considerats massa ràpids en comparació amb el timestep i no hi són pronosticats.
Advecció	- Bott (Bott, [1989a, 1989b]) - LMCSL ([Kaas, 2008]). La divergència és calculada mitjançant les trajectòries i no per diferències centrades com és feia a la parametrització tradicional semi-lagrangiana CISL.
Fase química gas	- NWP (HIRLAM newsletter, nº 54, June 2008) - RADM2 (Stockwell et al., 1990) - RACM (Stockwell et al., 1997) - CBMZ (Zaveri, 1999)
Emissions	EMEP (GEMS-TNO)
Aerosols	- CAC (Gross i Backlanov, 2004) - MOSAIC Chemistry (Zaveri et al., 2007) - MADE/SORGAM (Ackerman et al., 1998; i Schell et al., 2001)
Fotòlisi	Poppe et al., 1996. Tracta el cicle per als NO _x , HO _x , sulfur.
Deposició seca	- Wesely, 1989 a partir del càlcul de les resistències superficials - Binkowski, [1999] - Seinfeld i Pandis, [1998]
Deposició humida	Calculada a partir de coeficients d' <i>scavenging</i> . Tan a l'interior del núvol com per sota, l' <i>scavenging</i> dels aerosols per la pluja depèn alhora del radi i de la intensitat de la precipitació seguint Backlanov i Sørensen, [2001]

Referències:

Ackermann I. J., Hass H., Memmesheimer M., Ebel A., Binkowski F. S., Shankar U.: Modal aerosol dynamics model for Europe: Development and first applications, *Atmos. Environ.*, 32, No.17, 2981-2999, 1998.

Baklanov, A., Sørensen J.: Parameterisation of Radionuclide Deposition in Atmospheric Long-Range Transport Modelling, *Phys. Chem. Earth. (B)*, 26, 787-799, 2001.

Binkowski, F., 1999, Aerosols in Models-3 CMAQ. In: Science algorithms of the EPA Models-3 community multiscale air quality (CMAQ) modeling system. EPA/600/R-99/030. 14.1-14.6.

Bott, A., 1989a. A positive definite advection scheme obtained by non-linear renormalization of the advective fluxes. *Monthly Weather Review*, 117, 1006-1015.

Bott, A., 1989b. Reply. *Monthly Weather Review*. 117, 2633-2636.

Cuxart, J., Bougeaults, P. and Redelsberger, J., L., 2000. A turbulence scheme allowing for mesoscale and large-eddy simulations. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 126, 1-30.

Gross, A., Baklanov A.: Modelling the influence of dimethyl sulphide on the aerosol production in the marine boundary layer, *International Journal of Environment and Pollution*, 22(1/2): 51-71, 2004.

Kaas E.: A simple and efficient locally mass conserving semi-Lagrangian transport scheme. *Tellus*, 60A, 305-320, 2008.

Sass, B., 2002, A research version of the STRACO cloud scheme, Danish Meteorological Institute, Technical report no 02-10.

Poppe, D., Andersson-Skold, Y., Baart, A, Builtjes, P., Das, M., Fiedler, F., Hov, Ø., Kirchner, F., Kuhn, M., Makar, P., Milford, J., Roemer, M., Ruhnke, R., Simpson, D., Stockwell, W., Strand, A., Vogel, B., Vogel, H., 1996, Gas-Phase Reactions In Atmospheric Chemistry and Transport Models: A Model Intercomparison, EUROTRAC-report, February.

Savijärvi H.: Fast Radiation Parameterization Schemes for Mesoscale and Short-Range Forecast Models, *J. of Applied Meteorology*, vol. 29, 1990.

Schell B.: Modeling the formation of secondary organic aerosol within a comprehensive air quality model system, *J. of Geophys. Res.*, 106 (D22), 28, 275-28,293, 2001.

Seinfeld, J., Pandis, S., 1998, *Atmospheric Chemistry and Physics*, Wiley Interscience publication, John Wiley and Sons, Inc.

Stockwell W., Kirchner F, Kuhn M., Seefeld, S.: A new mechanism for regional atmospheric chemistry modelling. *J. Geophys. Res.*, 102, 847-879, 1997.

Stockwell W., Middelto, P., Chang J.: The Second Generation Regional Acid Deposition Model – chemical Mechanism for Regional Air Quality Modelling. *J. of Geophys. Res.*, 95, 16343-18367, 1990.

Wesely L., M.: Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models, *Atmospheric Environment*, 23, 1293-1304, 1989.

Zaveri R. A., Easter R. C., Fast J. D., Peters L. K.: Model for simulating aerosol interactions and chemistry (MOSAIC). *J. Geophys. Res.*, doi:10.1029/2007JD008782,2007.

Zaveri, R. A., Peters, L. K.: A new lumped structure photochemical mechanism for large-scale applications. *J. Geophys. Res.*, 104, 387 -415, 1999.

4.4 MC2-AQ

El *Mesoscale Compressible Community-Air Quality* (MC2-AQ) és un model de mesoescala online integrat compost pel *Canadian Mesoscale Compressible Community Model* (MC2) acoblat online amb un mòdul de qualitat de l'aire amb la finalitat d'estudiar la química oxidant atmosfèrica (emissions biogèniques, antropogèniques i processos químics-físics dels aerosols) a escala regional a urbana. Ha estat desenvolupat a la Universitat Tecnològica de Warsaw (Polònia) i es caracteritza per ser altament flexible alhora d'establir el domini de la regió d'estudi. Dos casos particulars sobre Europa són els següents: el projecte CityDelta-I cobrint la regió de l'Europa central (Berlín, Praga i Katowice) amb 3km de resolució horitzontal, i l'EuroDelta per tot el continent Europeu amb 50 km de resolució.

El model meteorològic MC2 és un model regional, no hidrostàtic que permet treballar amb 28 nivells verticals des de la superfície fins als 25 km d'altitud, amb els dos primers nivells més baixos utilitzats per al càlcul de vent a 50 i 150 m. Les dades inicials i de contorn són proporcionades pel model global GEM i a la vegada també obtingudes de resultats observacionals. El codi del model és obert per a propòsits de recerca i es pot consultar a la web indicada a continuació¹ una vegada l'usuari/a s'ha registrat.

El mòdul de qualitat de l'aire conté una fase gas química similar a la del ADOM-II (*Venkatram et al.*, 1988). El mecanisme conté 47 espècies (32 advectionades), 98 reaccions químiques i 16 reaccions de fotòlisi. De les 46 espècies tractades, 14 tenen un temps de vida curt (i.e., oxigen atòmic) i seran considerades en estat fotoquímic estacionari; les que presenten un temps de vida més llarg en canvi, són tractades segons el mètode implícit de Newton. Les emissions biogèniques són calculades online a cada time step químic mitjançant el *Biogenic Emissions Inventory System* [BEIS] (Vukovich i Pierce, 2002). Les dades inicials i de contorn són proporcionades per l'EMEP, les dades d'emissions biogèniques són proporcionades per l'*US Geological Survey*, i les dades d'emissions antropogèniques són obtingudes de la combinació entre bases de dades d'inventaris de contaminants de les pròpies ciutats (Umwelt Bundesamt, ESCOMPTE, CityDelta) i de l'EMEP.

Pàgina web oficial: -

1 Pàgines web relacionades:

<http://www.collaboration.cmc.ec.gc.ca/science/rpn.comm/wiki/doku.php?id=mc2> (MC2)
<http://www.umweltbundesamt.de/index-e.htm> (Umwelt Bundesamt)
<http://escomppte.mediasfrance.org/projet/projets/CLU/> (ESCOMPTE)
<http://www.usgs.gov/> (US Geological Survey)
<http://eurodelta.pangaea.de/> (EuroDelta)
<http://aqm.jrc.it/citydelta/> (CityDelta)

Casos d'estudi del model:

Kaminski, J.W., Plummer, D.A., Neary, L., McConnell, J.C., Struzewska, J., Loboeki, L., F.: First Application of MC2AQ to Multiscale Air Quality Modelling over Europe. *Physics and Chemistry of the Earth*, 27, 1517-1524, 2002.

Kaminski, J. W., Neary, L., Lupu, A., McConnell, J.C., Struzewska, J., Zdunek, M., Loboeki, L.: High resolution Air Quality Simulations with MC2-AQ and GEM-AQ, *Air Pollution Modeling and Its Application XVII*, 11, 714-720, DOI: 10.1007/978-0-387-68854-1_86, 2007

Plummer, D.A., McConnell, J.C., Neary, L., Kaminski, J., Benoit, R., Drummond, J., Narayan, J., Young, V., Hastie, D.R.: Assessment of emissions data for the Toronto region using aircraft-based measurements and an air quality model, *Atmospheric Environment*, 35, 6453-6463, 2001.

Yang, R.J., Xia, A.G., Michelangeli, D.V., Plummer, D.A., Neary, L., Kaminski, J.W., McConnell, J.C.: Evaluating a Canadian regional air quality model using ground-based observations in north-eastern Canada and United States, *J. Environ. Monit.*, 40-46, 2003.

Yang, R.J., Xia, A.G., Michelangeli, D.V., Plummer, D.A., Neary, L., Kaminski, J.W., McConnell, J.C.: Evaluating a Canadian regional air quality model using ground-based observations in north-eastern Canada and United States. *J Environ Monit.* Feb;5(1):40-6, 2003

Característiques Generals:

Tipus de model	- 3D - Mesoescala - Meteorològic i de transport químic acoblat online
Horitzó de pronòstic	Regional i urbà: curt termini
Variables meteorològiques pronosticades	$u, v, w, \zeta, T, p, q_v, q_t, q_f, q_{sc}, q_{lc}, q_{lr}, q_{ss}, q_{sh}, q_{sg}, E, K, N, z_i, \epsilon$
Resolució horitzontal	Variable
Nivells verticals	28 nivells des de la superfície fins a 25 km.
Aproximacions/Limitacions	- No Hidrostaticitat - Compressible
Inicialització i dades de contorn	Meteorologia: - Global Environmental Model (GEM) - Observacions Química: - EMEP
Assimilació de dades	Meteorologia: Tècnica de nudging Química: Tècnica de nudging
Niuament (Meteorologia/Química)	- Una direcció - Online - Intercanvi de dades per matrius
Sistema de coordenades	Horitzontal: longitud i latitud rotades Vertical: híbrides
Temps d'integració (Meteorologia/Química)	Semi-implícit
Espècies químiques pronosticades	SO ₂ , NO, NO ₂ , HNO ₃ , O ₃ , VOC, C ₆ H ₆ , HCHO, CO.
Feedbacks	Directes

Física del model:

Procés	Parametrització
Turbulència	Benoit et al., 1989 per resoldre l'equació predictiva de la TKE
Convecció	No en disposa.

Radiació	- Garand i Mailhot, [1990] per a tractar la radiació IR. - Fouquart-Bonnel, [1980] per a tractar la radiació solar.
Intercanvis a la superfície	- Deardorff, [1978] - Benoit et al., [1989] a partir de mètodes <i>force-restore</i> - ISBA (Noilhan i Planton, 1989) per a determinar les condicions de la part més baixa de la PBL per la difusió vertical de temperatura, humitat i moment
Advecció	- Difusió horitzontal implícita de quart ordre. - Semilagrangiana (Robert, 1981; 1982)
Núvols/Precipitació	Kong i Yau, [1997] per a la microfísica explícita de núvols (càlids + freds, incloent la categoria per a la pedra)
Fase gas química	ADOM-II (Atkinson, 1990; Lurmann, 1986)
Emissions	- Biogèniques: US Geological Survey - Antropogèniques: Umwelt Bundesamt, ESCOMPTE, CityDelta
Aerosols	No en disposa
Fotòlisi	S'utilitzen els valors pre-calculats a les taules, corresponents a cada espècie en condicions de cel serè. Per a corregir-los s'empra el mètode usat en el Regional Acid Deposition Model (RADM: Chang et al., 1987).
Deposició seca	Wesely, [1989]. Empra el mètode de l'analogia amb la resistència.
Deposició humida	Establerta a partir de coeficients d' <i>scavening</i> constants per les espècies seleccionades.

Referències:

Atkinson, R.: Gas-phase tropospheric chemistry of organic compounds: a review. *Atm. Env.* 24A, 1-41, 1990.

Chang, J.S., Brost, R.A., Isaksen, I.S.A., Madronich, S., Middleton, P., Stockwell, W.R., Walcek, C.J.: A three-dimensional eulerian acid deposition model: physical concepts and formulation, *J Geophys. Res.* 92 (D12): 14681-14700, 1987.

Kong, F., Yau, M. K.: An Explicit Approach of Microphysics in MC2. *Atmosphere-Ocean*, 35, 257-291, 1997.

Lurmann, F. W., Lloyd, A. C., Atkinson, R.: A chemical mechanism for use in long-range transport/acid deposition computer modelling. *J. Geophys. Res.*, 91, 10905-10936, 1986.

Mellor, G. L., Yamada, T.: A hierarchy of turbulence closure models for planetary boundary layers. *J. Atmos. Sci.*, 31, 1791-1806, 1974.

Robert, A.: A stable numerical integration scheme for the primitive meteorological equations. *Atmos. Ocean*, 19, 35-46, 1981.

Robert, A.: A semi-Lagrangian semi-implicit numerical integration scheme for the primitive meteorological equations. *J. Meteor. Soc. Japan*, 60, 319-324, 1982.

Sellers, P.J.; Mintz, Y.; Sud, Y.C., Dalcher, A.: A simple biosphere model (SiB) for use within general circulation models. *Journal of Atmospheric Science* 43 (43): 505-531, 1986.

Wesely, L., M.: Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models, *Atmospheric Environment*, 23, 1293-1304, 1989.

4.5 GEM-AQ

El *Global Environmental Multi-scale Air quality* (GEM-AQ) és un model online integrat d'escala global dissenyat a la Universitat de York, a Toronto. Està compost pel model operacional de predicció meteorològica de Canadà: el *Global Environmental Multiscale Model* (GEM) acoblat online amb un mòdul químic de la qualitat de l'aire, emprat tant per la investigació de processos atmosfèrics com per al pronòstic de la química atmosfèrica dins una àmplia varietat d'escals: des de la global fins a la meso-gamma (e.g. Hu *et al.*, 2005). Un cas particular de les seves aplicacions és el de realitzar un seguiment de la qualitat de l'aire sobre tota la regió nord del continent americà, amb una resolució global uniforme o variable per un horitzó de pronòstic de 48 hores.

El GEM és un model hidrostàtic d'escala global desenvolupat al Recherche en Prévision Numérique (RPN) conjuntament amb el *Canadian Meteorological Centre* (CMC), que pot treballar amb un nombre variable de nivells verticals en funció del tipus de pronòstic que es vulgui realitzar. Per a la majoria de pronòstics fets per Europa a mitjà i llarg termini és corrent establir 28 nivells verticals fins a un màxim de 10 hPa i treballar amb 0.5° de resolució horitzontal; en canvi, per a la predicció regional sobre Europa a curt termini una aplicació típica del model és establir 50 nivells verticals i treballar amb 15 km de resolució horitzontal. Per tal d'establir les condicions inicials i de contorn s'utilitzen els camps meteorològics pronosticats en prèvies simulacions amb el propi model (ooh)

El mecanisme de la fase gas química emprat en el model es basa en una modificació de la versió dos del Acid Deposition and Oxidants Model (ADOM Atkinson [1990], Lurmann [1986]). El constitueixen 50 espècies en fase gas (37 advectades), 116 reaccions químiques i 19 reaccions de fotòlisi. Totes les espècies són calculades mitjançant el mètode implícit de Newton. Per tal de tenir en compte la química troposfèrica s'hi han afegit 4 espècies químiques i 22 reaccions addicionals. Està compòs per un mòdul d'aerosols seccional amb 5 classes d'aerosols (partícules de sal marina, sulfat, carbó negre, carbó orgànic i pols), i serà mitjançant el *Canadian Aerosol Module* (CAM) que es podran calcular els processos microfísics responsables de la seva formació i transformació (nucleació, condensació, coagulació, sedimentació, deposició seca i oxidació del SO₂ a l'interior del núvol). El càlcul de la hidròlisi heterogènia del N₂O₅ es realitza a partir de la distribució online dels aerosols. Les dades per tal d'establir les condicions inicials i de contorn són obtingudes de models d'escala global com ara el i de prèvies simulacions realitzades pel propi model (12h), els inventaris d'emissions provenen de l'*Emission Database for Global Atmospheric Research* versió 3.2 (EDGAR3.2), el *Global Emissions Inventori Activity* (GEIA) i el *Global Fire Data* versió 2.1 (GFED2.1)

Pàgina web:

http://collaboration.cmc.ec.gc.ca/science/rpn/gef_html_public/

Pàgines web relacionades:

http://collaboration.cmc.ec.gc.ca/science/rpn/gef_html_public/ (GEM)

<http://131.224.244.83/en/themasites/edgar/index.html> (EDGAR)

<http://www.globalfiredata.org/> (GFED)

<http://www.geiacenter.org/> (GEIA)

Casos d'estudi del model:

Gong, S. L., Lavoue, D., Zhao, T. L., Huang, P., Kaminski, J. W.: GEM-AQ/EC, an on-line global multiscale chemical weather modelling system: model development and evaluations of global aerosol climatology, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 12, 9283–9330, 2012

Huang L., Gong, S.L., Jia, C.Q., Lavoué, D.: Importance of deposition processes in simulating the seasonality of the Arctic black carbon aerosol. *Journal of geophysical research*, vol. 115, D17207, 15 PP., 2010

Kaminski, J.W., Neary, L., Struzewska, J., McConnell, J. C., Lupu, A., Jarosz, J., Toyota, K., Gong, S. L., Côté, J., Liu, X., Chance, K., Richter, A.: GEM-AQ, an on-line global multiscale chemical weather modeling system: model description and evaluation of gas phase chemistry processes, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 3255–3281, 2008

Lupu, A., Kaminski, J. W., Neary, L., McConnell, J. C., Toyota, K., Rinsland, C. P., Bernath, P. F., Walker, K. A., Boone, C. D., Nagahama, Y., Suzuki, K.: Hydrogen cyanide in the upper troposphere: GEM-AQ simulation and comparison with ACE-FTS observations, 2009

Struzewska, J., Kaminski, J. W., Loboeki, L.: Application of MC2-AQ and GEM-AQ models to long-term air quality simulation over European contribution to CITYDELTA/EURODELTA Projects, 9th Int. Conf. on harmonisation within Atmospheric Dispersion Modelling for Regulatory Purposes, 7 Oct. 2005.

Struzewska, J., Kaminski, J. W.: Formation and transport of photooxidants over Europe during the July 2006 heat wave; observations and GEM-AQ model simulations, Atmos. Chem. Phys. Discuss., 7, 10 467 , 150;10 514, 2007.

Característiques Generals:

Tipus de model	- 3D - Escala global - Meteorològic i de transport químic acoblat online
Horitzó de pronòstic	- Regional: curt termini - Global: mitjà i llarg termini
Aproximacions/Limitacions	- Hidrostàtica - Anelàstica
Resolució horitzontal	Variable/ Uniforme
Nivells verticals	- Variable en funció de la regió i l'horitzó de pronòstic - Límit del model a 10 hPa
Sistema de coordenades	Horitzontal: Vertical: sistema híbrid (coordenades eta)
Inicialització i dades de contorn	Meteorologia: Simulacions prèvies del model (ooh) Química: Simulacions prèvies (12h)
Assimilació de dades	Meteorologia: 3D-VAR, 4D-VAR Química: 3D-VAR
Niuament (Meteorologia/ Química)	- Una direcció - Online - Offline - Intercanvi de dades per matrius
Variables meteorològiques pronosticades	$u, v, w, p, T, p, Gph, \rho, N, qv, qt, qlc, qlr, qss, E, z_i$
Espècies químiques pronosticades	SO ₂ , NO, NO ₂ , NOX, HNO ₃ , O ₃ , VOC, C ₆ H ₆ , HCHO, CO, CO ₂ , POP, PM ₁₀ , PM _{2.5} , PPM ₁₀ , PM _{0.1} , PM ₁ , SO ₄
Feedbacks	- Directes - Indirectes

Física del model:

Procés	Parametrització
Turbulència	Mellor, [1974]; Benoit, [1989]. A part ir de l'aproximació per a l'equació de la TKE
Convecció	- Mailhot, [1994] per a la convecció superficial. - Tiedtke, [1989] per a la convecció profunda.
Intercanvis a la superfície	- Deardorff, [1978] i Benoit et al., [1989] (Predicció de la temperatura superficial mitjançant el mètode de <i>Force-restore</i>) - ISBA (Noilhan i Planton, 1989) - CLASS (Verseghy, 2000) per tal de simular l'energia i els balanços aquosos de la vegetació, neu i sòl
Radiació	- Garand, [1983]; Garand i Mailhot, [1990]; Yu et al., [1997] per a la radiació IR. Inclou els efectes del vapor d'aigua, CO ₂ , O ₃ i núvols. - Fouquart i Bonnel, [1980]: per a la radiació solar.
Núvols/Precipitació	Sundqvist, [1988] per a la precipitació convectiva
Advecció	Semi-Lagrangiana (Robert, 1981; 1982)
Fase química gas	Acid Deposition and Oxidants Model v.2 (ADOM-II: Atkinson, 1990; Lurmann, 1986)
Emissions	EDGAR3.2, GEIA, GFED2.1
Aerosols	- Enfoc Seccional - CAM (Gong <i>et al.</i> 2002)
Fotòlisi	MESSY-J (Landgraf i Crutzen, 1998; Joeckel et al., 2006)
Deposició seca	Wesely, [1989]. Empra el mètode de l'analogia amb la resistència.
Deposició humida	Basada en l'intensitat i el tipus de precipitació.

Referències:

Atkinson, R.: Gas-phase tropospheric chemistry of organic compounds: a review. *Atm. Env.* 24A, 1-41, 1990.

Benoit, R., Côté, J., Mailhot, J.: Inclusion of a TKE boundary layer parameterization in the Canadian regional finite-element model. *Mon. Wea. Rev.*, **117**, 1726–1750, 1989.

Gong, S.L., Barrie, L.A., Blanchet, J.-P., Salzen, K.V., Lohmann U., Lesins, G., Spacek, L., Zhang, L.M., Girard, E., Lin, H., Leaitch R., Leighton, H., Chylek, P., Huang, P.: CAM: A Size Segregated Simulation of Atmospheric Aerosol Processes for Climate and Air Quality Models 1. Module Development, *J. Geophys. Res.*, 2002.

Hu, R.-M., Blanchet, J.-P., Girard E.: Evaluation of the direct and indirect radiative and climate effects of aerosols over the western Arctic. *J. Geophys. Res.* **110**, D11213, 2005.

- Lurmann, F. W., Lloyd, A. C., Atkinson, R.: A chemical mechanism for use in long-range transport/acid deposition computer modelling. *J. Geophys. Res.*, 91, 10905-10936, 1986.
- Mellor, G. L., Yamada, T.: A hierarchy of turbulence closure models for planetary boundary layers. *J. Atmos. Sci.*, 31, 1791-1806, 1974.
- Robert, A.: A stable numerical integration scheme for the primitive meteorological equations. *Atmos. Ocean*, 19, 35-46, 1981.
- Robert, A.: A semi-Lagrangian semi-implicit numerical integration scheme for the primitive meteorological equations. *J. Meteor. Soc. Japan*, 60, 319-324, 1982.
- Sundqvist, H.: Parameterization of condensation and associated clouds in models for weather prediction and general circulation simulation, in *Physically-based Modeling and Simulation of Climate and Climate Change*, Vol. 1, edited by M. E. Schlesinger, 433-461, Kluwer Academic, 1988.
- Tiedtke, M.: A comprehensive mass flux scheme for cumulus parameterization in large-scale models. *Mon. Wea. Rev.*, 117, 1779-1800, 1989.
- Verseghy D. L.: The Canadian Land Surface Scheme (CLASS): its history and future. *Atmosphere-Ocean*, vol. 38, no. 1, pp. 1-13, 2000.
- Wesely, M. L.: Parameterization of surface resistance to gaseous dry deposition in regional numerical models. *Atmos. Environment*, 16, 1293-1304, 1989.

4.6 MCCM

El *Mesoscale Climate Chemistry Model* (MCCM) és un model online integrat d'àrea limitada desenvolupat per l'*Institute of Meteorology and Climate Research-Atmospheric Environmental Research, Forschungszentrum Karlsruhe* (IMK-IFU) a Garmisch-Partenkirchen (Alemanya) per a realitzar pronòstic a curt i llarg termini (i.e., simulacions d'episodis greus de contaminació a la ciutat de Mèxic (Forkel et al., 2004) i estudis de simulacions químiques-climàtiques (Forkel i Knoche, 2006) respectivament. Pot ser emprat des de l'escala regional (milers de km amb una resolució horitzontal de 30-100 km) fins a l'escala urbana (100-200 km, resolució 1-5km). Resolucions horitzontals típiques són de 60 km per al domini d'Europa i de 15 km per a la regió d'Alemanya.

El mòdul meteorològic es tracta del model no hidrostàtic d'àrea limitada *NCAR/Penn MM5* (George et al., 1994) i ha estat desenvolupat a la *Pensilvania State University / National Center for Atmospheric Research (PSU/NCAR)* i presentat com un model de mesoescala comunitari amb contribucions d'usuaris d'arreu del món. El software del model és lliurament distribuït i elaborat pel grup de predicció meteorològica del NCAR. Les dades per inicialitzar el model provenen d'anàlisis efectuades per models d'escala global (climàtics i meteorològics), de simulacions del propi model MM5 i d'observacions.

El mòdul químic del MCCM inclou un preprocessador cinètic (KPP) i tres mecanismes detallats de la fase gasosa: el RADM2 (63 espècies químiques, 136 reaccions químiques i 21 reaccions de fotòlisi), el RACM (77 espècies químiques, 214 reaccions químiques i 23 reaccions de fotòlisi) i el RACM-MIM [Geiser et al., 2003] amb 84 espècies, 221 reaccions químiques i 23 reaccions de fotòlisi. Les reaccions de fotòlisi són executades online a cada pas de malla mitjançant el mòdul fotolític de Madronich considerant els valors de la temperatura, el contingut d'aigua líquida i de cristalls en els núvols, i l'ozó troposfèric (predit pel model). Les partícules d'aerosols són considerades mitjançant el mòdul MADE/SORGAM (Ackermann I.J et al., 1998, Schell B. et al., 2001) el qual té en compte les espècies: sulfats, nitrats, amoni, aigua i 4 compostos orgànics. Les emissions d'aerosols biogènics (NO i VOC's) són calculades online basant-se en l'ús de dades de radiació i de temperatura en superfície. Les emissions antropogèniques de contaminants primaris (NO_x, SO₂, hidrocarburs, aerosols) en canvi, són subministrades com a sets de dades ja en intervals horaris o anualment (e.g., GDF, EDO Mexico). Les condicions inicials i de contorn són establertes a partir de dades o camps extrets de simulacions prèvies del propi model.

Pàgina web oficial:

<http://imk-ifu.fzk.de/index.php>

Pàgines web relacionades:

<http://www.mmm.ucar.edu/mm5/> (MM5)

Casos d'estudi del model:

Haas, E., Forkel, R., Suppan, P.: Application, intercomparison of the RADM₂, RACM atmospheric chemistry mechanism including a new isoprene degradation scheme within the online-coupled regional meteorology chemistry model MCCM, Crete, 2005.

Forkel, R.: MCCM users guide, Version Juni 2002, page 109, 2002.

Forkel, R., Knoche, R.: Regional climate change and its impacts on photooxidant concentrations in southern Germany: Simulations with a coupled regional climate-chemistry model, *J. Geophys. Res.*, 10.1029/2005JD006748, 2006.

Grell, G.A., Emeis, S., Stockwell, W.R., Schoenemeyer, T., Forkel R., Michalakes, J., Knoche, R., Seidl, W.: Application of a multiscale, coupled MM5/Chemistry Model to the complex terrain of the VOTALP Valley Campaign. *Atmospheric Environment*, 34, 1435-1453, 1999.

Jazcilevich, A.D., Garcia A.R., Ruiz-Suarez L. G.: A study of air flow patterns affecting pollutant concentrations in the Central Region of Mexico. *Atmos. Environment*, 37, 183-193, 2003.

Suppan, P., Schädler, G.: The impact of highway emissions on ozone and nitrogen oxide levels during specific meteorological conditions, *Sci. Total Environ.*, 334-150;335, 215-150; 222, doi:10.1016/j.scitotenv.1016,2004.

Característiques generals:

Tipus de model	- 3D - Mesoescala - Meteorològic i de transport químic acoblat online
Horitzó de pronòstic	Regional i urbà: curt i llarg termini
Aproximacions/Limitacions/Limitacions	Model no hidrostàtic que utilitza l'equació de la conservació de la massa compressible. L'únic terme que no considera és el terme de l'escalfament adiabàtic que contribueix a l'equació de la tendència de pressió. S'aconsegueix treballar a resolucions de molt baixes (escala de núvols)
Resolució horitzontal	Flexible, des de 100 km fins a cents de metres
Nivells verticals	- Variable en funció de la regió i horitzó de pronòstic - Límit del model aproximadament a 100 hPa
Sistema de coordenades	Horitzontal: projecció de Lambert, estereogràfica polar o Mercator Vertical: sigma
Inicialització i dades de contorn	Meteorologia: Models d'escala global, MM5 i observacions Química: Simulacions prèvies del propi model
Assimilació de dades	Meteorologia: 4D-VAR Química: 3D-VAR
Niuament (Meteorologia/Química)	- Una o dos direccions/Una direcció - Intercanvi de dades per matrius - time step d'intercanvi definit per l'usuari
Variables meteorològiques pronosticades	$u, v, w, T, p, q_v, q_{ic}, q_{sc}, q_{lr}, q_{ss}, E$
Espècies químiques pronosticades	$SO_2, NO, NO_2, NH_3, HNO_3, O_3, VOC, C_6H_6, HCHO, CO, CO_2, CO, NH_4^+, SO_4$
Feedbacks	Directes

Física del model:

Procés	Parametrització
Turbulència	Burk-Thompson [1989], Blackadar, MRF (Hong i Pan, 1996) i Gayno-Seaman (Gayno, 1994) per tal de resoldre el transport turbulent a la capa límit.
Convecció	-
Intercanvis a la superfície	- Fluxos de moment, calor latent i sensible - Temperatura a la superfície mitjançant l'equació de conservació de l'energia - 5 capes de sòl - Pleim, [2006] per a la capa superficial

Radiació	- Refredament simple - Dudhia, [1989] per a la radiació d'ona curta - Mlawer et al., [1997] per a la radiació d'ona llarga
Núvols/Precipitació	- Kain-Fritsch, [1990] per a la convecció profunda, i una versió modificada d'aquesta que inclou la convecció superficial. - Betts-Miller, [1986]. Es basa en un ajust de relaxació referent a un perfil post-convectiu termodinàmic per un període donat. - Arakawa-Schubert, [1974]. Es basa en una població de núvols, permetent l'entrainment per a moviments verticals ascendents i descendents.
Advecció	Smolarkiewicz et al., [1990]
Fase química gas	RADM2 (Stockwell et al., 1990) RACM (Stockwell et al., 1997) RACM-MIM (Geiger et al., 2003)
Emissions	Biogèniques: calculades online Antropogèniques: GDF, EDO Mexico
Aerosols	MADE-SORGAM (Schell et al., 2001)
Fotòlisi	Wiscombe-Joseph, [1976] i Mandronich, [1987] per a calcular les freqüències de fotòlisi.
Deposició seca	- Wesely, [1989] per a calcular la resistència de la superfície a partir de les resistències del sòl i les plantes. - Per als sulfats es calcula mitjançant Erisman et al., [1994]
Deposició humida	Establerta a partir de coeficients d' <i>scavenging</i> constants propis de cada espècie

Referències:

- Arakawa, A., Schubert, H: Interaction of a cumulus cloud ensemble with large-scale environment. Part 1. *J. Atmos. Sci.*, 33, 674-701, 1974.
- Betts, A.K, Miller, M.J: A new convective adjustment scheme. Part II: Single column tests using GATE wave, BOMEX, ATEX and arctic air-mass data sets. *Quart. J.R. Met. Soc.* 112, 693-709, 2006.
- Burk, S. D., Thompson W. T.: A vertically nested regional numerical prediction model with second-order closure physics. *Mon. Wea. Rev.*, 117, 2305-2324, 1989.
- Dudhia, J. (1989). Numerical study of convection observed during the winter monsoon experiment using a mesoscale two-dimensional model. In: *J. Atmos. Sci.* 46, pp. 3077-3107. See pp. 22, 23, 25.
- Erisman, J. W., Van Pul, A., Wyers, P.: Parameterization of surface resistance for the quantification of atmospheric deposition of acidifying pollutants and ozone, *Atmos. Environ.*, 28, 2595-2607, 1994.
- George A., Dudhia J., Stauffer D.: A description of the fifth-generation enn State/NCAR mesoscale model (MM5), NCAR technical note, 1994.
- Gayno, G. A.: Forecasting visibility using a 1.5-closure boundary layer scheme in a 12-km nonhydrostatic model. In: Tenth Conference on Numerical Weather Prediction, pp. 18-20. American Meteor. Soc., Boston, MA, 1994.
- Hong, S.-Y., Pan, H.-L.: Nonlocal boundary layer vertical diffusion in a Medium-Range Forecast model. *Mon. Wea. Rev.*, 124, 2322-2339, 1996.

- Joseph, J. H., Wiscombe W. J., Weinman J. A.: The delta-Eddington approximation for radiative flux transfer, *J. Atmos. Sci.*, 33, 2452-2459, 1976.
- Kain, J. S., Fritsch J.M.: A one-dimensional entraining/detraining plume model and its application in convective parameterization. *J. Atmos. Sci.*, 47, 2784-2802, 1990.
- Schell, B., Ackermann, I.J., Hass, H., Binkowski, F.S., Ebel, A.: Modeling the formation of secondary organic aerosol within a comprehensive air quality model system, *J. Geophys. Res.*, 106, 28275-28293, 2001.
- Madronich, S.: Photodissociation in the atmosphere, 1, actinic flux and the effects of ground reflections and clouds. *J. Geophys. Res.*, 92, 9740-9752, 1987.
- Mlawer, E. J., Clough S. A.: On the extension of RRTM to the shortwave region. In Proceedings of the Sixth Atmospheric Measurement (ARM) Science Team Meeting, CONF-9603149, pp. 223-226, 1997.
- Pleim, J.E.: A Simple, Efficient Solution of Flux-Profile Relationships in the Atmospheric Surface Layer. *J. Appl. Meteor. Clim.*, 45, 341-347, 2006.
- Geiger, H., Barnes, I., Benjan I., Benter, Th., Spittler, M.: The tropospheric degradation of isoprene: an updated module for the regional atmospheric chemistry mechanism. *Atmos. Environment*, 37, 1503-1519, 2003.
- Smolarkiewicz, P., Grabowski, W. W.: The multidimensional positive definite advection transport algorithm: nonoscillatory option. *J. comp. Phys.* 86, 355-375, 1990.
- Stockwell, W. R., Middleton P., Chang J. S., Tang X.: The second generation regional acid deposition model chemical mechanism for regional air quality modeling. *J. Geophys. Res.*, 95, 16343-16367, 1990.
- Stockwell, R.W., Middleton P., J. Chang,: The Second Generation Regional Acid Deposition Model Chemical Mechanisms for Regional Air Quality Modeling, *J. Geophys. Res.*, Vol. 95, No. D10, pp. 16,343-16,367, 1990.
- Wesely, M. L.: Parameterization of surface resistance to gaseous dry deposition in regional numerical models. *Atmos. Environment*, 16, 1293-1304, 1989.

4.7 MESO-NH

El MESO-NH és un model online integrat de mesoescala, no hidrostàtic, per a predicció a curt termini desenvolupat pel *Laboratoire d'Aérodologie* de la *Université Paul Sabatier* i pel *Centre National de Recherches Météorologiques CNRM-GAME* (Meteo-France) a Toulusse, (França). El model meteorològic que el constitueix es troba acoblat online amb un mòdul químic que inclou parametritzacions per a tractar la fase química gas i els aerosols atmosfèrics, permetent d'aquesta manera aplicar el MESO-NH en una gran varietat de projectes de recerca relacionats amb l'estudi de la qualitat de l'aire i el seu impacte climàtic i meteorològic (AMMA, COPS, ESCOMPTE, FASTEC, FENNEC, GEWEX, HyMeX, MAP, TOGA COARE i TROCCINOX). Per aquest darrer exemple d'aplicació esmentat, el model opera sobre Brasil utilitzant una resolució horitzontal de 30 km i 72 nivells verticals, des dels 40 fins als 600 metres d'altitud.

Els camps generats pel model meteorològic poden ser calculats amb geometria Cartesiana o sobre una projecció estereogràfica Polar, de Lambert o Mercator; en la vertical es treballa amb coordenades Gal-Chen-Somerville. Les variables són representades amb una resolució horitzontal variable (1 m a cents de km). Per tal de millorar el post-processament, és possible generar camps 3D de tres classes: esfèrics, plans i d'ones. Pel que fa a la inicialització del model i establiment de les condicions de contorn, aquest utilitza dades de models d'escala superior (i.e., ECMWF, ARPEGE, ALADIN). Es tracta d'un model de codi obert; el seu ús amb fins de recerca per a usuaris externs als membres del centre requereix d'una llicència que pot ser obtinguda consultant la secció de suport a l'usuari a la web proposada¹.

El mòdul químic pot incorporar l'esquema RACM per calcular el mecanisme de la fase química gasosa, amb 67 espècies i 237 reaccions (Stockwell et al., 2007) o bé el ReLACS que incorpora 37 espècies i 188 reaccions (Crassier et al., 2000). La reactivitat de la fase aquosa i la transferència cinètica de massa d'espècies solubles entre la fase gas i la fase aquosa també es determina mitjançant el ReLACS (Leriche, M., 2012). El mòdul d'aerosols presenta l'esquema ReLACS₂, amb 82 espècies (Tulet et al., 2006) i el model ORILAM (Tulet et al., 2005) per a considerar la nucleació homogènia, la coagulació i la condensació, però si addicionalment es vol obtenir informació sobre aerosols secundaris (i.e., nitrats) cal utilitzar el CACM amb 189 espècies (Griffin, R.J., 2002). Les dades inicials i de contorn s'estableixen a partir de simulacions prèvies realitzades pels models químics i de transport MOCAGE o MOZART, les dades d'emissions antropogèniques són proporcionades pel *Generation of an Emission data base for Europe* (GENEMIS), i les biogèniques a partir dels algorismes de Guenther (Guenther et al., 1995) on els fluxos biogènics són expressats com a productes d'emissions potencials (normalitzats respecte condicions meteorològiques estàndard).

1 Pàgina web:

<http://mesonh.aero.obs-mip.fr/mesonh/>

Pàgines web relacionades:

<http://amma.mediasfrance.org/> AMMA (African Monsoon Multidisciplinary Analysis)

<http://mesonh.aero.obs-mip.fr/cops/> COPS (Convective and Orographically-induced Precipitation Study)

<http://medias.obs-mip.fr/escomppte/index> ESCOMPTE (Expérience sur Site pour CONTRaindre les Modèles de Pollution atmosphérique et de Transport d'Émissions)

<http://www.cnrn.meteo.fr/gcss/EUROCS/EUROCS.html> EUROCS (EUROpean Cloud Systems)

<http://www.cnrn.meteo.fr/dbfastex/> FASTEX (Fronts and Atlantic Storm Track Experiment)

<http://mesonh.aero.obs-mip.fr/fennec/> FENNEC (The Saharan Climate System)

<http://www.gewex.org/> GEWEX (Global Energy and Water Cycle Experiment)

<http://www.hymex.org/> HyMeX (Hydrological cycle in the Mediterranean Experiment)

<http://www.map.ethz.ch/> MAP (Mesoscale Alpine Program)

<http://www.ncdc.noaa.gov/coare/> TOGA COARE (Coupled Ocean Atmosphere Response Experiment)

<http://mesonh.aero.obs-mip.fr/troccinnox/> TROCCINOX (Tropical Convection, Cirrus and Nitrogen Oxides Experiment)

Casos d'estudi del model:

Barthe, C., Pinty, J.P.: Simulation of a supercellular storm using a three-dimensional mesoscale model with an explicit lightning flash scheme, *J. Geophys. Res.*, in press, 2006.

Bonnardot, F., Lac, C., Camail, C., Connan, O., Maro, D., Hébert, D., Rozet, M.: PERLE: an operational Meso-scale dispersion modelling system for accidental release. HARMO Conference, Sissi (Malia), Crete, Greece, 17-20 oct 2005.

Bravo M., Mira T., R. Soler M., Cuxart J.: Intercomparison and Evaluation of MM5 and Meso-NH mesoscale models in the stable boundary layer. *Boundary-Layer Meteorology* **128**:1, 77-101, 2008.

Chancibault, K., Anquetin, S., Ducrocq, V., Saulnier, G.-M.: Hydrological evaluation of high resolution precipitation forecasts of the Gard flash-flood event (8-9 september 2002), *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, **132**, 1091-1117, 2006.

Lafore, J. P., Stein, J., Asencio, N., Bougeault, P., Ducrocq, V., Duron, J., Fischer, C., Hérelil, P., Mascart, P. Masson V.: The Meso-NH Atmospheric Simulation System. Part I: adiabatic formulation and control simulations *Annales Geophysicae*. Volume 16, no 1, 90-109, DOI: 10.1007/s00585-997-0090-6, 1997.

Pinty J.-P., Mari C.: Lightning-produced NOx in an explicit scheme: a STERAO case study, *J. Geophys. Res.*, in press, 2006.

Característiques del model:

Tipus de model	- 3D - Mesoescala - Meteorològic i de transport químic acoblat online
Horitzó de pronòstic	Regional: curt termini
Aproximacions/Limitacions/Limitacions	Anelàstica (el model es basa en el sistema anelàstic de Lipps i Hemler)
Resolució horitzontal	Variable
Nivells verticals	Variable
Sistema de coordenades	Horitzontal: coordenades cartesianes o bé sobre una projecció estereogràfica Polar, Lambert o Mercator Vertical: coordenades Gal-Chen-Somerville
Inicialització i dades de contorn	Meteorologia: Dades del ECMWF, ARPEGE, o ALADIN Química: Dades del MOCAGE o MOZART
Assimilació de dades	Meteorologia: 3D-VAR Química: 3D-VAR
Niuament (Meteorologia/Química)	- Una i dos direccions - Online - Dades intercanviades per matrius
Variables meteorològiques pronosticades	$u, v, w, \theta, p, q_v, q_{lc}, q_{sc}, q_{lr}, q_{ss}, E$
Espècies químiques pronosticades	SO ₂ , NO, NO ₂ , NH ₃ , HNO ₃ , O ₃ , DMS, H ₂ O ₂ , VOC, C ₆ H ₆ , HCHO, CO, CO ₂ , POP, PM ₁₀ , PM _{2,5} , PM _{0,1} , PM ₁ , NH ₄ ⁺ , SO ₄ , pols, sal marina, BC, POM, SOA i NO ₃
Feedbacks	Directes

Física del model:

Procés	Parametrització
Difusió vertical	Cuxart, [2000]. Parametrització d'ordre 1,5 amb diferents longituds de camí de mescla
Convecció	- Pergaud, [2009] per a la convecció superficial - Bechtold, [2001] per a la convecció profunda
Intercanvis a la superfície	- ISBA: Noilhan et al., [1989] per a la vegetació - TEB: Masson, [2000] per a l'àrea urbana
Radiació	- Mlawer et al., [1997] per a la radiació d'ona llarga - Fouquart et al., [1980] per a la radiació d'ona curta
Núvols/Precipitació	- C ₂ R ₂ : Cohard et al., [2000a] per als núvols càlids - ICE ₃ i ICE ₄ : Pinty et al., [1998] i Lascaux et al., 2006 respectivament pel gel atmosfèric - Bougeault [1981] i Chaboureau et al., [2002]. Parametritzacions per a la condensació de la fase de càlida i la fase de gel respectivament
Fase química gas	- RACM: Stockwell et al., [1997] - ReLACS: Crassier et al., [2000]
Emissions	- GENEMIS per a les antropogèniques - Guenther et al., [1995] per les biogèniques. No són vàlides fora de França.
Aerosols	- ReLACS ₂ : Tulet et al., [2006] per als aerosols de pols i sal marina - CACM: Griffin et al., [2002] per als aerosols secundaris - OIRLAM: Tulet et al., [2005]
Fotòlisi	Mandronich, [1987]
Deposició seca	Wesely, [1989] i Tulet, [2003] a través del mètode de les resistències
Deposició humida	Mari et al., [2000] per a tractar l'scavenging generat per la precipitació convectiva

Referències:

Bechtold, P., Bazile, E., Guichard, F., Mascart, P., Richard E.: A mass flux convection scheme for regional and global models. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 127, 869-886, 2001.

Bougeault, P.: Modeling the trade-wind cumulus boundary layer. Part I: testing the ensemble cloud relations against numerical data, *J. Atmos. Sci.*, 38, 2414-2428, 1981

Chaboureau, J.-P., Bechtold, P.: A simple cloud parameterization derived from cloud resolving model data: Diagnostic and prognostic applications. *J. Atmos. Sci.*, 59, 2362- 2372, 2002.

Cohard, J.-M., Pinty J.-P.: A comprehensive two-moment warm microphysical bulk scheme. Part I: Description and selective tests. *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 126, 1815-1842, 2000a.

Crassier, V., Suhre K., Tulet P., Rosset R.: Development of a reduced chemical scheme for use in mesoscale meteorological models. *Atm. Env.*, 34, 2633-2644, 2000.

Cuxart, J., Bougeault, Ph., Redelsperger, J.L.: A turbulence scheme allowing for mesoscale and large-eddy simulations. *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 126, 1-30, 2000.

- Foucart, Y., Bonnel, B.: Computations of solar heating of the earth's atmosphere: A new parametrization. *Beitr. Phys. Atmosph.*, 53, 35-62, 1980.
- Griffin, R. J., Dabdub, D., Seinfeld J. H.: Secondary organic aerosol, 1, Atmospheric chemical mechanism for production of molecular constituents, *J. Geophys. Res.*, 107(D17), 4332, doi:10.1029/2001JD000541, 2002.
- Grini, A., P. Tulet, and L. Gomes, 2006: Dusty weather forecasts using the MesoNH mesoscale atmospheric model. *J. Geophys. Res.*, 111, D19205, doi:10.1029/2005JD007007.
- Lascaux, F., Richard, E., Pinty, J.-P.: Numerical simulations of three MAP IOPs and the associated microphysical processes. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 132, 1907-1926, 2006.
- Madronich, S.: Photodissociation in the atmosphere: 1. Actinic flux and the effects of ground reflections and clouds. *J. Geophys. Res.*, 92, D8, 9740-9752, 1987.
- Mari C., D.J. Jacob, P. Bechtold, 2000: Transport and scavenging of soluble gases in a deep convective cloud, *J. Geophys. Res.* 105, 22255-22263.
- Mlawer, E.J., Taubman, S.J., Brown, P.D., Iacono, M.J., Clough, S.A.: Radiative transfer for inhomogeneous atmospheres: RRTM, a validated correlated-k model for the longwave. *J. Geophys. Res.*, 102D, 16663-16682, 1997.
- Pinty, J.-P., Jabouille, P.: A mixed-phase cloud parameterization for use in mesoscale non-hydrostatic model: simulations of a squall line and of orographic precipitations. *Proc. Conf. of Cloud Physics, Everett, WA, USA, Amer. Meteor. soc.*, Aug. 1999, 217 – 220, 1998.
- Stockwell, R.W., Kirchner, F., Kuhn, M., Seefeld, S.: A new mechanism for regional atmospheric chemistry modeling, *J. Geophys. Res.*, 102(D22), 25847-25879, 1997.
- Tulet, P. V., Crassier, F., Cousin, K., Suhre, K., Rosset, R.: ORILAM, a three-moment lognormal aerosol scheme for mesoscale atmospheric model: online coupling into the Meso-NH-C model and validation on the Escompte Campaign. *J. Geophys. Res.*, 110, D18201, doi: 10.1029/2004JD005716, 2005.
- Wesely, M.: Parametrizations of surface resistance to gaseous dry deposition in regional scale, numerical models, *Atmos. Environ.*, 23, 12931304, 1989.

4.8 TAPM

El *The Air Pollution Model* (TAPM) és un model online acoblat integrat de mesoescala, desenvolupat al *CSIRO Atmospheric Research* (Austàlia) per a realitzar pronòstic meteorològic a curt i llarg termini (des d'un dia fins a un any o més) i estudis de la qualitat de l'aire sobre una escala local, urbana o regional. És aplicable en regions que presenten una orografia complexa, unes condicions de temps variables (i.e., cicle diürn) i en zones sotmeses a la presència de vents forts com ara brises marines i vents de drenatge. Actualment el model s'utilitza sota llicència, entrega pronòstic cada hora i ha estat executat per a predir la concentració de contaminants en ciutats com ara Illinois, Indianàpolis, Nova York (U.S) o a Victòria i al sud de Perth (Austràlia) les quals disposen de plantes químiques o complexos industrials importants.

El component meteorològic és conduït per una *Graphical User Interface* (GUI) i resol les equacions primitives de la dinàmica atmosfèrica assumint un espaiat de xarxa uniforme al llarg del domini, treballant típicament a 25 nivells (10 per sota de l'alçada de 1000 m). Les equacions del model negligeixen la curvatura de la Terra de manera que la grandària del domini es troba restringida a menys de 1000x1000km. L'altitud màxima és de 8 km, amb la qual cosa no considera l'estratosfera. Totes aquestes restriccions fan que no sigui un model adequat per a representar profundes circulacions atmosfèriques o fenòmens meteorològics extrems (i.e., huracans, ciclons). Les dades orogràfiques i meteorològiques d'entrada del model procedeixen del *Earth Resources Observation Systems* (EROS), del *Global Analysis and Prediction* (GASP) de la *Bureau of Meteorology* (BOM) i del ECMWF.

El mòdul de qualitat de l'aire consisteix en diversos sub-mòduls: l'*Eularian Grid Module* (EGM), el *Lagrangian Particle Module* (LPM), el *Plume Rise Module* (PRM) i el *Building Wake Module* (BWM). Al mateix temps, cada mòdul permet que el model s'executi en mode de traces, mode químic, o mode d'aerosols. El primer utilitza un mètode de resistència (Physick i Garratt, 1995) que li permet calcular la deposició seca de totes les espècies incloses dins la fase química; la humida en canvi, només és considerada per als gasos altament solubles. En el cas que s'executi en mode químic, la fase gas fotoquímica es basa en el *Generic Reaction Set* (GRS), el qual conté informació de 13 espècies químiques i 10 reaccions. En mode d'aerosols en canvi, és possible calcular la concentració de partícules de contaminants de quatre mides diferents: PM_{2,5}, PM₁₀, PM₂₀ i PM₃₀. Es tracta per tant d'un model molt versàtil que resulta adequat per a simular emissions d'aerosols i agents contaminants d'origen industrial (i.e., refineries, foses) i urbà (i.e., vehicles). Les dades d'inicialització i de contorn poden procedir d'anàlisis sinòptics globals o bé poden ser establertes per l'usuari.

Pàgina web oficial:

<http://www.cmar.csiro.au/research/tapm/>

Pàgines web relacionades:

<http://eros.usgs.gov/> (EROS)

<http://www.bom.gov.au/> (BOM)

Casos d'estudi del model:

Cope, M. E., Hess, G. D., Lee, S. H., Tory, K. J., Burgers, M., Dewundege, P., Johnson, M.: The Australian Air quality Forecasting System: exploring first steps towards determining the limits of predictability for short-term ozone forecasting. *Boundary-Layer Meteorology*, 116 (2): 363–384, 2005.

Countinho, M., Ribeiro, C. E, Borrego, C. - Validação Meteorológica de um modelo de Dispersão Atmosfera Portugal, 8ª Conferência Nacional do Ambiente, Lisboa, 27-29, 2004

Countinho, M., Ribeiro C. E, Borrego C. - Simulation of the plume emitted by a municipal waste incinerator located in the Madeira island - *International Journal of Environment and Pollution* (IJEP) Volume 24 – pg. 218-229 Issue 1/2/3/4 - 2005

Hurley, P.: TAPM V4. Part 1: Technical Description, CSIRO Marine and Atmospheric Research Paper No. 25. 59 pp, 2008.

Hurley, P., Physick, W., Luhar, A.: TAPM: A practical approach to prognostic meteorological and air pollution modelling', *Environmental Modelling & Software*, 20, 737-752, 2005a.

Hurley, P., Edward, M., Physick, W., Luhar, A.: TAPM V3: Model description and verification, Clean Air 39, 32–36, 2005b.

Hurley, P., Luhar, A.: An evaluation and inter-comparison of AUSPLUME, CALPUFF and TAPM. Part I: The Kincaid and Indianapolis field datasets, Clean Air, 39–1, 39-45, 2005.

Hurley, P., Manins, P., Lee, S., Boyle, R., Dewundege, P.: Year-long, hi-resolution, urban airshed modelling: Verification of TAPM predictions of smog and particles in Melbourne, Australia, Atmos. Environ., 37, 1899-1910, 2003.

Hurley, P., Blockley A., Rayner, K.: Verification of a prognostic meteorological and air pollution model for year-long predictions in the Kwinana region of Western Australia. Atmos. Environ., 35, 1871-1880, 2001.

Luhar, A.K., Hurley, P.J.: Evaluation of TAPM, a prognostic meteorological and air pollution model, using urban and rural point-source data. Atmos. Environ., 37, 2795–2810, 2003.

Característiques del model:

Tipus de model	- 3D - Mesoescala - Meteorològic i de transport químic acoblat online
Horitzó de pronòstic	Regional i urbà: curt termini
Aproximacions/Limitacions	Hidrostàtica/ Les equacions del model negligeixen la curvatura de la Terra de manera que la grandària del domini queda restringida a menys dels 1000kmx1000km. No s'inclouen parametritzacions per a la convecció a gran escala i per tant no resulta un model adequat per a representar fortes circulacions atmosfèriques o fenòmens severes.
Resolució horitzontal	Variable
Nivells verticals	Típicament 25 nivells fins a un màxim de 8km des de la superfície (no considera l'estratosfera)
Sistema de coordenades	Horitzontal: coordenades cartesianes Vertical: coordenades z
Inicialització i dades de contorn	Meteorologia: EROS, GASP, ECMWF. Química: Models d'escala global
Assimilació de dades	Meteorologia: Tècnica de nudging per a l'assimilació de les observacions del vent Química: 3-VAR
Niament (Meteorologia/Química)	- Una direcció - Dades intercanviades per matrius
Variabls meteorològiques pronosticades	$u, v, w, T, \theta, \theta_r, p, Gph, \rho, q_v, q_{ic}, q_{tr}, q_{lr}, q_{ss}, E, \epsilon, K, z_i$
Espècies químiques pronosticades	SO ₂ , NO, NO ₂ , NO _x , O ₃ , VOC, CO, PM ₁₀ , PM _{2,5} , PM ₂₀ , PM ₃₀
Feedbacks	Directes

Física del model:

Procés	Parametrització
Turbulència	Els termes turbulents són calculats resolent l'equació de pronòstic de la TKE i el grau de dissipació dels eddies, usant a continuació aquests en representació dels fluxos verticals emprant un mètode de difusió del gradient.
Convecció	No en disposa
Intercanvis a la superfície	Els fluxos turbulents són determinats a partir de variables d'escalat de Monin-Obukhov a la capa superficial.
Radiació	- Cel serè: Mahrer i Pielke, [1977] per a la radiació d'ona curta - Cel ennuvolat: Stephen, [1978] per a tenir en compte la modificació de la radiació incident en ona curta en dies de cel serè.
Núvols/Precipitació	No en disposa
Advecció	- Es combina la tècnica de McGregor, [1993] amb la conversió de Bermejo i Staniforth, [1992] per al càlcul de l'advecció horitzontal de totes les variables pronosticades. - Semi-Lagrangiana
Fase química gas	Genèric Reaction Set (Azzi, 1992)
Emissions	Establertes per l'usuari (admet inventaris d'emissions de diferents fonts antropogèniques i biogèniques com per exemple el MAQS).
Aerosols	Cada sub-mòdul: EGM, LPM, PRM, BWM els permet tenir en compte
Fotòlisi	Calculada online. Es basa en la utilització de l'angle zenital i la temperatura
Deposició seca	Wesely, [1989] per a considerar la deposició seca dels gasos i els aerosols mitjançant el càlcul de les resistències superficials.
Deposició humida	Basada en l'intensitat de la precipitació, i considerada només per les partícules de matèria, SO ₂ i H ₂ O ₂ .

Referències:

Azzi, M., Johnson, G.M., Cope, M.: An introduction to the generic reaction set photochemical smog mechanism, In Proceedings of the International Conference of Clean Air Soc. of Aust., 2, 451-462, 1992.

Bermejo, R., Staniforth, A.: The conversion of semi-Lagrangian schemes to quasimonotone schemes, Mon. Wea. Rev. 120, 2622-2632, 1992.

Mahrer, Y., Pielke, R.A.: A numerical study of the airflow over irregular terrain, Beitr. Phys. Atmosph., 50, 98-113, 1977.

McGregor J.: Economical determination of departure points for semi-Lagrangian Models, Mon. Wea. Rev. 121, 221-230, 1993.

Physick, W. L., Garratt J. R.: Incorporation of a High-Roughness Lower Boundary into a Mesoscale Model for studies of Dry Deposition over Complex Terrain. Boundary-Layer Meteorology 74(1-2): 55-71, 1995.

Wesely L., M.: Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models, Atmospheric Environment, 23, 1293-1304, 1989.

4.9 COSMO LM-ART

El *Consortium for Small Scale MOdelling Local Model*; i *ART = Aerosols and Reactive Traces Gases* (COSMO LM-ART) es tracta d'un model online integrat basat en l'antic model de mesoescala KAMM/DRAIS/MADEsoot. Ha estat desenvolupat pels serveis meteorològics que formen el consorci (DWD, MeteoSwiss, USAM, HNMS, IMGW, ARPA-SIMC, ARPS-Piemonte, CIRA, AGeoBW, NMA, RosHydroMet) per tal de simular la distribució espacial i temporal de gasos reactius i aerosols a escala continental (i.e., Europa i est d'Àfrica) i regional (Alemanya) amb pronòstics a 24 i 48 hores vista. Resolucions horitzontals típiques per avaluar les emissions de SO₂, NO₂, NO_x i PM(1, 2.5, 10) sobre Europa i el sud-est d'Alemanya són 14kmx14km i 7kmx7km respectivament, amb 35 nivells verticals des de la superfície fins als 24 km.

El mòdul meteorològic està format pel model 3D, no hidrostàtic i de pronòstic COSMO del *Deutscher Wetterdienst* (DWD). Les equacions primitives són formulades en un sistema de coordenades geogràfiques rotades i sobre un terreny generalitzat d'acord amb la coordenada vertical z. Ha estat dissenyat per treballar amb escales meso-alpha i meso-beta; la meso-alpha utilitza un espaiat de xarxa de 2.8 km mentre que la meso-beta n'utilitza un de 7 km. Per tal d'establir les condicions inicials i de contorn, s'interpolen dades de reanàlisis de models globals com ara el GME i el model operacional COSMO-DE. Disposa també de dades observacionals procedents de radiosondatges, avions i radars.

El model de qualitat de l'aire disposa actualment d'un preprocessador cinètic (KPP), el mòdul SCAV (Tost et al., 2006) per a tractar la fase aquosa, el mòdul RADMK per a tractar la fase química gasosa (versió estesa del RADM₂ que té en compte les reaccions de l'isopropè i l'hidròlisi del N₂O₅), el mòdul PAPA per a les reaccions de fotòlisi, el model MADEsoot (Riemer et al., 2003) per a tractar les partícules d'aerosols (VOC, NO, pols mineral, sal marina i pol·len), el mòdul SORGAM (Schell et al., 2001) pels aerosols secundaris i l'ISORROPIA II (Fountoukis et al., 2007) per a considerar l'equilibri termodinàmic d'aerosols inorgànics. Per una banda, el RADMKA inclou 56 espècies transportades i 172 reaccions; el mòdul d'aerosols MADEsoot de l'altra, té en compte la interacció de 9 modes (dos modes pel sulfat, nitrats, NH₄⁺, H₂O i SOA's; un pel sutge; tres modes per la pols mineral i dos per la sal marina i el pol·len. Les condicions inicials i de contorn s'estableixen a partir de dades observacionals, dades brutes de satèl·lit (MODIS) i de les bases de dades del TNO/MACC. Els inventaris de dades d'emissions són cedits per l' *Institute for Energy Economics and the Rational Use of Energy* (IER).

Pàgina web oficial: -

Pàgines web relacionades:

<http://www.cosmo-model.org> (COSMO)

http://www.meteociel.fr/modeles/gmee_cartes.php (GME)

<http://www.ier.uni-stuttgart.de/index.en.html> (IER)

http://www.tno.nl/content.cfm?context=kennis&content=expertise_euproject&laag1=2&laag2=12&item_id=1076&Taal=2 (TNO/MACC)

Casos d'estudi del model:

Hinneburg, D., Renner, E., Wolke, R.: Formation of secondary inorganic aerosols by power plant emissions exhausted through cooling towers in Saxony. *Environ Sci. Pollut Res.*, 16:25-35, doi:10.1007/s11356-008-0081-5, 2009.

Hoose, C.; Möhler, O.; Niemand, M.; Steinke, I., Heterogeneous ice nucleation parameterizations based on laboratory experiments. *EGU General Assembly 2012*, p.8743held 22-27 April, 2012.

Knote, C.; Brunner, D.; Vogel, H.; Allan, J.; Asmi, A.; Äijälä, M.; Carbone, S.; van der Gon, H. D.; Jimenez, J. L.; Kiendler-Scharr, A.; Mohr, C.; Poulain, L.; Prévôt, A. S. H.; Swietlicki, E.; Vogel, B., Towards an online-coupled chemistry-climate model: evaluation of COSMO-ART. *Geoscientific Model Development Discussions*, Volume 4, Issue 3, pp.1809-1874, 2011.

Renner, E., Wolke, R.: Modelling the formation and atmospheric transport of secondary inorganic aerosols with special attention to regions with high ammonia emissions. " *Atmos. Environ.* 44(15): 1904-1912, 2010.

Stanelle, T., Vogel B., Vogel H., Bäumer D., Kottmeier C.: Feedback between dust particles and atmospheric processes over West Africa during dust episodes in March 2006 and June 2007. *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 10771-10788, 2010.

Stern, R., Builtjes, P., Schaap, M., Timmermans, R., Vautard, R., Hodzic, A., Memmesheimer, M., Feldmann, H., Renner, E., Wolke, R., Kerschbaumer, A.: A model intercomparison study focussing on episodes with elevated PM₁₀ concentrations. *Atmos. Environ.*, 42:4567–4588, 2008.

Vogel, B., Hoose, C., Vogel, H., Kottmeier, Ch.: A model of dust transport applied to the Dead Sea area, *Meteorologische Zeitschrift*, 14, 611-624, 2006a.

Vogel, H., Vogel, B., Kottmeier, Ch.: Modelling of pollen dispersion with a weather forecast model system, *Proceedings of 28th NATO/CCMS Int. Meeting on Air Pollution Modelling and its Application*, Leipzig, 2006b.

Vogel, B., Vogel, H., Bäumer, D., Bangert, M., Lundgren, K., Rinke, R., and Stanelle, T.: The comprehensive model system COSMO-ART – radiative impact of aerosol on the state of the atmosphere on the regional scale, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 9, 14483-14528, doi:10.5194/acpd-9-14483-2009, 2009

Característiques del model:

Tipus de model	- 3D - Mesoescala - Meteorològic i de transport químic acoblat online
Horitzó de pronòstic	Regional: curt termini
Aproximacions/Limitacions	-
Resolució horitzontal	Variable
Nivells verticals	Variable
Sistema de coordenades	Horitzontal: coordenades latitud i longitud rotades Vertical: coordenades sigma
Inicialització i dades de contorn	Meteorologia: GME, COSMO LM Química: GME, IFS
Assimilació de dades	Meteorologia: 3D-VAR Química: 3D-VAR
Temps integració (Meteorologia/Química)	- Split-explicit - Semi-implícit
Niuament (Meteorologia/Química)	- Una direcció - Variables niuades - Niuament offline/online - Dades intercanviades per arxius/matrius
Variables meteorològiques pronosticades	$u, v, w, T, p, q_v, q_{ic}, q_{sc}, q_{lr}, q_{ss}, q_{sg}, E, \epsilon, K, z_i$
Espècies químiques pronosticades	$SO_2, NO, NO_2, NO_x, NO_3^-, VOC, HCHO, CO, N_2O_5, \text{pols mineral, sal marina, pol·len, } NH_4^+, BC, OC, SOA$
Feedbacks	- Directes - Indirectes

Física del model:

Procés	Parametrització
Turbulència	- Aproximació de segon ordre i mig per tractar l'equació de pronòstic de la TKE - Aproximació K de segon ordre per als fluxos turbulents verticals
Convecció	- Tiedtke, [1989] per a la convecció del flux de massa amb l'aproximació d'equilibri basada en la convergència del flux d'humitat. - Per a la convecció superficial s'utilitza una versió reduïda de l'anterior.
Superfície	- Teoria de semblança (Louis, 1979) per al càlcul de fluxes de moment, calor i humitat - Versió multi-capes del sòl (Jacobsen i Heise, 1982)
Radiació	Ritter i Geyley [1992] per a la radiació d'ona curta i llarga (amb set intervals espectrals)
Núvols/Precipitació	- Condensació de l'aigua en els núvols i evaporació tractades per l'ajust de saturació - Formació de la precipitació tractada mitjançant una parametrització de bulk incloent el vapor d'aigua, contingut d'aigua líquida/cristalls de gel en el núvol, precipitació i neu. - Opció d'una nova parametrització per a tenir en compte la pedra
Química	- RADMK (versió millorada del RADM2 [Stockwell et al., 1990] per a la fase química gas) - SCAV (Tost et al., 2006) per a la fase aquosa
Emissions	IER
Aerosols	- Enfoc modal - MADEsoot (Riemer et al., 2003) - SORGAM (Schell et al., 2001) per als aerosols orgànics secundaris - ISORROPIA II (Fountoukis et al., 2007) per l'equilibri termodinàmic
Fotòlisi	PAPA: càlcul online de la freqüència de les reaccions de fotòlisi
Deposició seca	Wesely, [1989]. Determinació de la velocitat de deposició mitjançant el mètode de l'analogia amb la resistència superficial
Deposició humida	Establerta a partir de coeficients d' <i>scavenging</i> constants per les espècies seleccionades

Referències:

Fountoukis, C.; Nenes, A.: Interactive comment on "ISORROPIA II: a computationally efficient thermodynamic equilibrium model for K⁺,Ca²⁺,Mg²⁺,NH₄⁺,Na⁺,SO₂,NO₃⁻,Cl⁻,H₂O aerosols", Atmos. Chem. Phys. Discuss., 7, S2097–S2101, 2007.

Jacobsen, I., Heise, E.: A new economic method for the computation of the surface temperature in numerical models. Beitr. Phys. Atm., 55, 128-141, 1982.

Louis, J-F: A parametric model of vertical fluxes in the atmosphere. Bound. Layer Meteor 17, 187-202,1979.

Ritter, B. and J. F. Geyley: A comprehensive radiation scheme for numerical weather prediction models with potential applications in climate simulations. Monthly Weather Review, 120, 303-325, 1992.

Schell, B., Ackermann, I.J., Hass, H., Binkowski, F.S., Ebel A.: Modeling the formation of secondary organic aerosol within a comprehensive air quality model system, J. Geophys. Res., 106, 28275-28293, 2001.

Stockwell W., Middelto, P., Chang, J.: The Second Generation Regional Acid Deposition Model – chemical Mechanism for Regional Air Quality Modelling. *J. of Geophys. Res.*, 95, 16343-18367, 1990.

Tiedtke, M.: A comprehensive mass flux scheme for cumulus parameterization in large-scale models. ECMWF, Reading, England pp. 1779, 1989.

Tost H., Jöckel P., Kerkweg, A., Sander, R., Lelieveld, J.: Technical note: A new comprehensive SCAVenging submodel for global atmospheric chemistry modelling, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 565–574, 2006

Wesely, L. M.: Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models, *Atmospheric Environment*, 23, 1293-1304, 1989.

4.10 COSMO LM-MUSCAT

El model online integrat *Model of the Consortium for Small Scale Modeling & Multi-Scale Atmospheric Transport Model* (COSMO LM-MUSCAT) està compost pel model meteorològic COSMO LM acoblat online amb el model químic de transport *Multi-Scale Chemistry Aerosol Transport* (MUSCAT), i ha estat desenvolupat per l' *Institute for Tropospheric Research* (IfT) a Leipzig (Alemanya) amb la finalitat de dur a terme pronòstic operacional de contaminants gasosos i partícules d'aerosols dins una escala tan local com regional a 24 i 48 hores vista. Un domini típic d'aplicació del model es troba sobre l'àrea del Sàhara amb una resolució horitzontal de 28kmx28km i 46 nivells verticals (des de la superfície fins a 200 hPa) per tal de calcular les emissions, el transport i la deposició de la pols mineral així com els seu efecte radiatiu (Heinold et al., 2007).

El model meteorològic és el COSMO (ja ha estat revisat en l'apartat anterior).

El model químic de transport MUSCAT s'encarrega de tractar el transport atmosfèric així com les transformacions químiques de diverses espècies en fase gas i partícules d'aerosols (i.e., formació de foto-oxidants). Tota la informació necessària per a computació dels mecanismes de les reaccions químiques és realitzada via fitxes ASCII, de manera que qualsevol canvi en el mecanisme RACM-MIM2 (Karl et al., 2006) per a tractar la fase química gas (95 espècies, 248 reaccions químiques i 25 reaccions fotolítiques) es pot realitzar d'una manera senzilla i completa. Té en compte els processos de deposició seca i humida, i per tal de tractar les partícules d'aerosols (descripció de la distribució de les mides i els processos dinàmics) s'empra el mòdul M7 (Vignati et al., 2004). Alternativament a aquest mòdul, el model també pot treballar amb el mòdul MADMACs (Wilck i Stratmann, 1997). Les condicions inicials i de contorn s'estableixen a partir de perfils climatològics o dades procedents de models d'escala global, i els inventoris d'emissions són proporcionats per l' EMEP o el TNO/GEMS.

Pàgina web oficial:

http://projects.tropos.de/cosmo_muscat/

Pàgines web relacionades:

<http://www.cosmo-model.org> (COSMO)

<http://www.EMEP.int> (EMEP)

Casos d'estudi del model:

Heinold, B., Helmert, J., Hellmuth, O.: Regional modeling of Saharan dust events using LM-MUSCAT: Model description and case studies, *J. Geophys. Res.*, 112, D11204, doi:10.1029/2006JD007443, 2007.

Hinneburg D., Renner E., Wolke R.: Formation of secondary inorganic aerosols by power plant emissions exhausted through cooling towers in Saxony. *Environ Sci. Pollut Res.*, 16:25-35, doi:10.1007/s11356-008-0081-5, 2009.

Schrödner, R.; Wolke, R.; Tilgner, A. Regional modelling of the tropospheric multiphase system using COSMO-MUSCAT. EGU General Assembly 2012, p.8637, held 22-27 April, 2012.

Stern R., Builtjes P., Schaap M., Timmermans R., Vautard R., Hodzic A., Memmesheimer M., Feldmann H., Renner E., Wolke R., Kerschbaumer A.: A model intercomparison study focussing on episodes with elevated PM10 concentrations. *Atmos. Environ.*, 42:4567-4588, 2008.

Renner E., Wolke R.: Modelling the formation and atmospheric transport of secondary inorganic aerosols with special attention to regions with high ammonia emissions. *Atmos. Environ.* 44(15): 1904-1912, 2010.

Wolke, R., Hellmuth O., Knoth O., Schröder W., Heinrich B., and Renner E.: The chemistry-transport modeling system LM-MUSCAT: Description and CITYDELTA applications. Proceedings of the 26-th International Technical Meeting on Air Pollution and Its Application. Istanbul, May 2003, 369-379, 2003.

Wolke, R., Knoth O., Hellmuth O., Schröder W. and Renner E.: The parallel model system LM-MUSCAT for chemistry-transport simulations: Coupling scheme, parallelization and application. Walter, Eds. Amsterdam, The Netherlands, 363-370, 2004a.

Característiques del model:

Tipus de model	- 3D - Mesoescala - Meteorològic i de transport químic acoblat online
Horitzó de pronòstic	Regional: curt i llarg termini
Aproximacions/Limitacions	-
Resolució horitzontal	Variable
Nivells verticals	Variable
Sistema de coordenades	Horizontal: coordenades longitud i latitud rotades Vertical: híbrid (sigma en els nivells més baixos, z o pressió en els nivells més alts)
Inicialització i dades de contorn	Meteorologia: GME, COSMO LM Química: Models d'escala global
Assimilació de dades	Meteorologia: 3-D VAR Química: 3-D VAR
Niuament (Meteorologia/Química)	- Una direcció/dues direccions - Niuament offline/online - Variables niuades - Dades intercanviades per arxius/matrius
Variables meteorològiques pronosticades	$u, v, w, T, p, q_v, q_{lc}, q_{sg}, q_{lr}, q_{s5}, E$
Espècies químiques pronosticades	$SO_2, SO_4, NO_x, NO_3, CO, NH_3, PM_{2.5}, PM_{10}, CH_4, NMVOC$, pols mineral, sal marina, BC, SOA, N_2O_5
Feedbacks	Directes

Física del model:

Procés	Parametrització
Turbulència	- Aproximació de segon ordre i mig per tractar l'equació de pronòstic de la TKE - Aproximació K de segon ordre per als fluxos turbulents verticals
Convecció	- Tiedtke, [1989] per a la convecció del flux de massa amb l'aproximació d'equilibri basada en la convergència del flux d'humitat. - Per a la convecció superficial s'utilitza una versió reduïda de l'anterior.
Intercanvis a la superfície	- Teoria de semblança (Louis, 1979) per al càlcul de fluxes de moment, calor i humitat - Versió multi-capes del sòl (Jacobsen i Heise, 1982)
Radiació	Ritter i Geylen, [1992] per a la radiació d'ona curta i llarga (amb set intervals espectrals)

Núvols/Precipitació	<ul style="list-style-type: none"> - Condensació de l'aigua en els núvols i evaporació tractades per l'ajust de saturació - Formació de la precipitació tractada mitjançant una parametrització de bulk incloent el vapor d'aigua, contingut d'aigua líquida/cristalls de gel en el núvol, precipitació i neu. - Opció d'una nova parametrització per a tenir en compte la pedra
Fase química gas	RACM-MIM2 (Karl et al., 2006)
Emissions	EMEP, TNO/GEMS
Aerosols	<ul style="list-style-type: none"> - Enfoc modal - M7 (Vignati et al., 2004) - MADMAcs (Wilck i Stratmann, 1997) - Tegen et al., [2002] per a tractar les emissions de pols mineral
Fotòlisi	Les freqüències de les reaccions de fotòlisi són calculades mitjançant el System for Transfer of Atmospheric Radiation (STAR)
Deposició seca	S'utilitza l'aproximació de la resistència superficial de Wesely, [1989] i estableix una grandària de distribució fixada per a la sedimentació gravitacional de les partícules
Deposició humida	Mari et al., [2000] per a tractar l'scavenging de les partícules de pols mineral generat per la precipitació convectiva

Referències:

Hundsdoerfer W., Koren B., Van Loon M., Verwer J. G.: A Positive Finite-Difference Advection Scheme, *Journal of Computational Physics*, Volume 117, Issue 1, 1 March 1995, Pages 35–46, 1995.

Jacobsen, I., Heise E.: A new economic method for the computation of the surface temperature in numerical models. *Beitr. Phys. Atm.*, 55, 128-141, 1982.

Karl, M., Dorn, H.-P., Holland, F., Koppmann, R., Poppe, D., Rupp, L., Schaub, A., Wahner, A.: Product study of the reaction of OH radicals with isoprene in the atmosphere simulation chamber, SAPHIR. *Journal of Atmospheric Chemistry* 55, 167–187, 2006.

Louis J-F: A parametric model of vertical fluxes in the atmosphere. *Bound. Layer Meteor* 17, 187-202, 1979.

Ritter, B., Geleyn J. F.: A comprehensive radiation scheme for numerical weather prediction models with potential applications in climate simulations. *Monthly Weather Review*, 120, 303-325, 1992.

Mari C., Jacob D.J., Bechtold P.: Transport and scavenging of soluble gases in a deep convective cloud, *J. Geophys. Res.* 105, 22255-22263, 2000.

Tegen, I., Harrison, S. P., Kohfeld, K., Prentice, I. C., Coe, M., and Heimann, M.: Impact of vegetation and preferential source areas on global dust aerosol: Results from a model study, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 107, 4576, doi:10.1029/2001JD000963, 2002.

Tiedtke, M.: A comprehensive mass flux scheme for cumulus parameterization in large-scale models. ECMWF, Reading, England pp. 1779, 1989.

Vignati, E., Wilson, J. and Stier P.: M7: An efficient size-resolved aerosol microphysics module for large-scale aerosol transport models, *J. Geophys. Res.* 109, 2004.

Wesely L., M.: Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models, *Atmospheric Environment*, 23, 1293-1304, 1989.

Wilck, M., Stratmann F.: A 2-D multicomponent aerosol model and its application to laminar flow reactors. *J. Aerosol Sci.*, 28, 959–972, 1997.

4.11 WRF-Chem

El *Weather Research and Forecasting Chemistry model* (WRF/Chem) és un model online integrat desenvolupat pels components del grup W11 al *National Centre for Atmospheric Research* (NCAR: <http://ruc.fsl.noaa.gov/wrf/WG11/>). Es basa en el model de mesoescala *Weather Research and Forecasting* (WRF) acoblat online amb diversos mecanismes químics, i és emprat essencialment per al pronòstic meteorològic i de la qualitat de l'aire en temps real i l'estudi dels *feedbacks* dels aerosols a la radiació i microfísica dels núvols a diverses regions dels Estats Units, amb resolucions horitzontals i verticals ben variables. Un exemple d'aplicació del model el trobem sobre la regió de Houston durant l'agost del 2008 per tal d'estudiar els nivells d'espècies gasoses (i.e., O₃, SO₂, NO_x, PM_{2,5}, VOC i BC) i els *feedbacks* de la capa límit planetària. Per aquest cas es va establir una resolució horitzontal de 12 km i 57 nivells verticals des de la superfície fins a la tropopausa.

El WRF, successor del model MM5, és un sistema numèric de previsió emprat tant per a tasques operatives com d'investigació que inclouen múltiples escales espacial-temporals. És de domini públic, flexible, i es troba constantment actualitzat ja que disposa d'una gran comunitat d'usuaris (*The Mesoscale and Microscale Meteorology Division* a l'NCAR, serveis meteorològics, universitats, centres de recerca, etc.). Les condicions inicials i de contorn són establertes a partir de simulacions fetes per models d'escala superior (i.e., GFS, GEM, NAM, ECMWF) i models de reanàlisi. Les equacions primitives que resol es basen en un fluid compressible, no hid i Eulerià amb la possibilitat d'operar en mode hidrostàtic o no hidrostàtic segons el nucli dinàmic establert.

El mòdul químic consisteix en dos mecanismes per calcular la fase química gas: el RADM2 el qual inclou 63 espècies (136 reaccions químiques i 21 reaccions de fotòlisi), (Stockwell et al., 1990) i el CBMZ amb 64 espècies i 164 reaccions (Zaveri, 1999) i un mecanisme de fotooxidació del dimetil sulfat (DMS) per simular la formació del SO₂ i H₂SO₄ en funció de la temperatura. A la vegada també incorpora una sèrie de mecanismes que tractaran la fase química gas a través d'un pre-processador cinètic (KPP): el RACM amb 77 espècies (214 reaccions químiques i 23 reaccions de fotòlisi) [Geiger et al., 2003], el RACM-MIM amb 84 espècies (221 reaccions químiques i 23 reaccions de fotòlisi) [Stockwell et al., 1997], el CBM-V, el SAPRC99 per a la química extensiva dels VOC's i el MOZART per a la química de l'ozó. Les reaccions de fotòlisi són calculades online i per al tractament dels aerosols tan primaris com secundaris els següents mòduls són utilitzats: MADE/SORGAM (Schell, 2001), MOSAIC (Zaveri et al., 2008), MADRID (Zhang et al., 2004) i el *Goddard Chemistry Aerosol Radiation and Transport* (GOCART [Chin, 2000]). Mentre que el MOSAIC i el MADE/SORGAM simulen els efectes tan directes com indirectes dels aerosols, el GOCART en canvi, només inclou els *feedbacks* directes. Les dades d'inicialització i de contorn són proporcionades per models d'escala global o també de simulacions prèvies del propi model, i les dades d'emissions biogèniques i antropogèniques de contaminants són especificades per l'usuari (i.e., *EPA Biogenic Emissions Inventory System* [BEIS]) i també poden ser calculades online des del *Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature* (MEGAN).

Pàgina web oficial:

<http://www.acd.ucar.edu/wrf-chem;>
<http://cprm.acd.ucar.edu/Models/WRF-Chem/index.shtml>

Pàgines web relacionades:

<http://www.wrf-model.org/index.php> (WRF)
<http://www.mmm.ucar.edu/wrf/users/> (WRF recursos per a l'usuari)

Casos d'estudi del model:

Barnard, J., Fast, J., Paredes-Miranda, G., Arnott, W., Laskin, A.: Technical Note: Evaluation of the WRF-Chem, Aerosol Chemical to Aerosol Optical Properties. Module using data from the MILAGRO campaign. *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 7325-7340. 2010

Chapman, E.G, Gustafson W.I., Barnard J.C, Ghan S.J, Pekour M.S, and Fast J.D.: Coupling aerosol-cloud-radiative processes in the WRF-Chem model: Investigating the radiative impact of large point sources. *Atmos. Chem. Phys.* 9:945-964. 2009

Eder, B., Kang, D., Stein, A., McHenry, J., Grell G., Peckham, S.: The New England Air Quality Forecasting Pilot Program: Development of an Evaluation Protocol and Performance Benchmark. *Journal of the Air and Waste Management Association*, 55, 20-27, 2005.

- Fast, J. D., Gustafson W. I., Easter R. C., Zaveri R. A., Barnard J. C., Chapman E. G., Grell G. A., Peckham S. E.: Evolution of ozone, particulates, and aerosol direct radiative forcing in the vicinity of Houston using a fully-coupled meteorology-chemistry-aerosol model, *J. Geophys. Res.*, 111, D21305, doi:10.1029, 2005.
- Frost, G. J., McKeen S. A., Trainer M., Ryerson T. B., Holloway J. S., Sueper D. T., Fortin T., Parrish D. D., Fehsenfeld F. C., Peckham S. E., Grell G. A., Kowal D., Cartwright J., Auerbach N., Habermann T.: Effects of Changing Power Plant NOx Emissions on Ozone in the Eastern United States: Proof of concept, *J. Geophys. Res.*, 111, D12306, 2006.
- Grell, G. A., Peckham S. E., Schmitz R., McKeen S. A., Frost G., Skamarock W. C., Eder B.: Fully coupled online chemistry within the WRF model, *Atmos. Environ.*, 39, 6957-6975, 2005.
- Grell G. A., Freitas S. R., Stuefer M., and Fast J.: Inclusion of biomass burning in WRF-Chem: impact of wildfires on weather forecasts. *Atmos. Chem. Phys.* doi:10.5194, acpd-10-30613, 2010.
- Gustafson W.I., Chapman E.G., Ghan S.J., Fast J.D.: Impact on modeled cloud characteristics due to simplified treatment of uniform cloud condensation nuclei during NEAQS 2004. *J. Geophys. Res. Lett.*, 34, L19809, 2007.
- Kang, D., Eder B. K., Stein A. F., Grell G. A., Peckham S. E., McHenry J.: The New England Air Quality Forecasting Pilot Program: Development of an evaluation protocol and performance benchmark. *J. of Air and Waste Manag. Assoc.*, 2004.
- Kim, S.W; Heckel, A; McKeen, S.A; Frost, G.J; Hsie, E.Y; Trainer, M.K; Richter, A; Burrows, J.P; Peckham, S.E; Grell, G.A.: Satellite-observed US power plant NOx emission reductions and their impact on air quality. *Geophys. Res. Lett.*: Vol. 33, 2006.
- Monache, L.D., Wilczak, McKeen S., Grell G., Pagowski M., Peckham S., Stoll R., McHenry J., McQueen J.: A Kalman-filter bias correction method applied to deterministic, ensemble averaged, and probabilistic forecasts of surface ozone. *Tellus*, 60, doi: 10.1111/j.1600-0889.2007.00332.x, 2007.
- McKeen, S.A., Chung S. H., Wilczak J., Grell G., Djalalova I., Peckham S., Gong W., Bouchet V., Moffet R., Tang Y., Carmichael G. R., Mathur R., Yu S.: The Evaluation of Several PM2.5 Forecast Models Using Data Collected During the ICARTT/NEAQS 2004 Field Study. *J. Geophys. Res.*, 112, D10S20, doi: 10.1029/2006JD007608, 2007.
- McKeen, S., Wilczak J., Grell G., Djalalova I., Peckham S., Hsie E.-Y., Gong W., Bouchet V., Menard S., Moffet R., McHenry J., McQueen J., Tang Y., Carmichael G. R., Pagowski M., Chan A., Dye T.: Assessment of an ensemble of seven real-time ozone forecasts over Eastern North America during the summer of 2004. *J. Geophys. Res.*, 110, D21307, 2005.
- Pagowski, M., Grell, G. A., McKeen, S. A., Devenyi, D., Wilczak, J. M., Bouchet, V., Gong, W., McHenry, J., Peckham, S., McQueen, J., Moffet, R., Tang, Y.: A Simple method to improve ensemble-based ozone forecasts, *Geophys. Res. Letters*, 32, L07814, 2005.
- Pagowski, M., Grell G.A., Devenyi D., Peckham S.E., McKeen S.A., Gong W., Delle Monache L., McHenry J.N, McQueen J., Lee P.: Application of dynamic linear regression to improve the skill of ensemble-based deterministic ozone forecasts, *Atmos. Environ.*, 40, 3240-3250, 2006
- Pagowski, M; Grell, G.A.: Ensemble-based ozone forecasts: Skill and economic value. *J. Geophys. Res.-Atmos.*: Vol. 111, 2006.
- Wilczak, J; McKeen, S; Djalalova, I; Grell, G; Peckham, S; Gong, W; Bouchet, V; Moffet, R; McHenry, J; McQueen, J; Lee, P; Tang, Y; Carmichael, G.R.: Bias-corrected ensemble and probabilistic forecasts of surface ozone over eastern North America during the summer of 2004, *J. Geophys. Res.* D23S28, doi:10.1029/2006JD007598, 2006.

Característiques del model:

Tipus de model

- 3D
- Mesoescala
- Meteorològic i de transport químic acoblat online

Horitzó de pronòstic	Regional: curt termini i llarg termini
Aproximacions/Limitacions	L'algoritme fotolític no té en compte els <i>feedbacks</i> de tot els gasos fotoíticament actius
Resolució horitzontal	Variable segons l'organització/usuari
Nivells verticals	Variable segons l'organització/usuari
Sistema de coordenades	Depèn del nucli dinàmic establert
Inicialització i dades de contorn	<p>Meteorologia:</p> <ul style="list-style-type: none"> - Models d'escala global (GFS, GEM, NAM, ECMWF) - Models de reanàlisi <p>Química:</p> <ul style="list-style-type: none"> - Dades d'un model d'escala global, escala més gran, o de simulacions prèvies pel propi WRF/Chem.
Assimilació de dades	<p>Meteorologia:</p> <ul style="list-style-type: none"> - Tècnica de nudging - 3D-VAR <p>Química: 3D-VAR</p>
Niuament (Meteorologia/Química)	<ul style="list-style-type: none"> - Una direcció - Dues direccions - Variables niuades - Nesting online - Intercanvi de dades per matrius
Variables meteorològiques pronosticades	$u, v, w, \theta, q_v, q_t, q_{scr}, q_{lr}, q_{shr}, q_{sg}, q_{ss}, N, E, K$
Espècies químiques pronosticades	$SO_2, NO, NO_2, NH_3, HNO_3, O_3, CH_4, VOC, C_6H_6, HCHO, PM_{10}, PM_{2.5}, PPM_{10}, PM_{0.1}, PM_{1}, NH_4^+, SO_4, NO_3$
Feedbacks	<ul style="list-style-type: none"> - Directes - Indirectes

Física del model:

Procés	Parametrització
Turbulència	MYJ (Janjic, 1990, 1996b, 2002) basada en l'aproximació de segon ordre i mig de Mellor-Yamada, [1982].
Convecció	<ul style="list-style-type: none"> - Versió millorada de Kain-Fritsch (1990, 1993) per tal de tenir en compte els corrents verticals ascendents i descendents així com els efectes d'entrainment i detrainment. - Betts-Miller, [1986] permet considerar l'eficiència dels núvols per tal de determinar-ne els perfils de calor i humitat.
Superfície	<ul style="list-style-type: none"> - Teoria de semblança per a la capa superficial. - OSU/MM5 (Chen-Dudhia, 2000). Es tracta d'un model de 4 capes de sòl per a tenir en compte la humitat i la temperatura a la superfície.

Radiació	<ul style="list-style-type: none"> - RRTM (Mlawer et al., 1997). Utilitza taules pre-establertes per tal de representar els processos d'ona llarga degut al vapor d'aigua, ozó, CO₂ i traces de gasos. - ETA GFDL basada en Fels-Scwarzkopf, [1975] i Scwarzkopf-Fels, [1991] per calcular les bandes espectrals associades al CO₂, vapor d'aigua i ozó. - <i>Simple short wave</i> (Dudhia, 1989). Integra el flux solar incident per a representar l'efecte de l'scattering en dies de cel serè, l'absorció pel vapor d'aigua i l'albedo dels núvols. - <i>Goddard short wave</i> basat en Chou i Suarez, [1994].
Núvols/Precipitació	<ul style="list-style-type: none"> - Kessler, [1969] per als núvols càlids. Inclou el vapor d'aigua, el contingut d'aigua líquida i la precipitació. Inclou els processos de caiguda i evaporació de les gotes així com el creixement d'aquestes des de la condensació. - Lin, [1983]. Inclou l'efecte de sedimentació del gel, i tres classes d'hidrometeors: vapor, gotes de núvols/cristalls, precipitació/neu. - NCEP fase mixta (Hong et al., 1998), a diferència de l'anterior, els cristalls i les gotes de núvol es troben en categories diferents permetent l'existència de l'aigua supercongelada.
Fase química gas	<ul style="list-style-type: none"> - RADM₂, RACM, RACM-MIM - CBMZ, CB-V, SAPRC₉₉, MOZART
Emissions	BEIS, MEGAN
Aerosols	<ul style="list-style-type: none"> - MADE/SORGAM: Utilitza l'enfoc modal per a la coagulació, amb 3 modes log-normal per a simular la distribució de les mides dels aerosols. Incorpora el mòdul d'equilibri per a aerosols inorgànics: Model for an Aerosol Reacting System versió A (MARS-A) - MOSAIC i MADRID: Utilitzen l'enfoc seccional. El primer incorpora el mòdul d'equilibri per a aerosols inorgànics: Multicomponent Equilibrium Solver for Aerosols (MESA), i el darrer l'ISORROPIA. - GOCART: Simula la majoria d'aerosols troposfèrics (sulfats, pols, BC, OC i sal marina)
Fotòlisi	<p>Fast-J (Wild et al., 2000)</p> <p>Madronich, [1987] acoblat amb hidrometeors, aerosols i parametritzacions convectives</p> <p>F-TUV (és més ràpid però a diferència dels anteriors, no funciona amb tots els aerosols)</p>
Deposició seca	Wesely, [1989] per a considerar la deposició seca dels gasos i els aerosols mitjançant el càlcul de les resistències superficials.
Deposició humida	Basada en l'intensitat de la precipitació

Referències:

Betts, A. K., Miller, M. J.: A new convective adjustment scheme. Part II: Single column tests using GATE wave, BOMEX, and arctic air-mass data sets. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 112, 693-709, 1986.

Carter, W.: A detailed mechanism for the gas-phase atmospheric reactions of organic compounds. *Atmos. Environ.* 24A; 481-518, 1990.

Chen, F., Dudhia J.: Coupling an advanced land-surface hydrology model with the Penn State/NCAR MM5 modeling system. Part I: Model description and implementation. *Mon. Wea. Rev.*, 2000.

Chin, M., Rood R. B., Lin S.-J., Muller J. F., Thomson A. M.: Atmospheric sulfur cycle in the global model GOCART: Model description and global properties, *J. Geophys. Res.*, 105, 24,671-24,687, 2000.

Chou M.-D., Suarez M. J.: An efficient thermal infrared radiation parameterization for use in general circulation models. *NASA Tech. Memo.* 104606, 3, 85pp, 1994.

- Dudhia, J.: Numerical study of convection observed during the winter monsoon experiment using a mesoscale two-dimensional model. *J. Atmos. Sci.*, 46, 3077-3107, 1989.
- Geiger, H., Barnes, I., Benjan, I., Benter, T., Splitter, M.: The tropospheric degradation of Isoprene: an updated module for the regional chemistry mechanism. *Atm. Env.*, 37, 1503-1519, 2003.
- Hong, S.-Y., Juang, H.-M. H., Zhao, Q.: Implementation of prognostic cloud scheme for a regional spectral model, *Mon. Wea. Rev.*, 126, 2621-2639, 1998.
- Janjic, Z. I.: The step-mountain coordinate: physical package. *Mon. Wea. Rev.*, 118, 1429-1443, 1990.
- Janjic, Z. I.: The surface layer in the NCEP Eta Model. Eleventh Conference on Numerical Weather Prediction, Norfolk, VA, 19-23 August 1996; *Amer. Meteor. Soc.*, Boston, MA, 354-355, 1996a.
- Janjic, Z. I.: Nonsingular Implementation of the Mellor-Yamada Level 2.5 Scheme in the NCEP Meso model. NCEP Office Note No. 437, 61 pp, 2002.
- Kain, J. S., Fritsch, J. M.: A one-dimensional entraining/ detraining plume model and its application in convective parameterization. *J. Atmos. Sci.*, 47, 2784-2802, 1990.
- Kain, J. S., Fritsch, J.M.: Convective parameterization for mesoscale models: The Kain-Fritsch scheme. The representation of cumulus convection in numerical models, K. A. Emanuel and D.J. Raymond, Eds., *Amer. Meteor. Soc.*, 246 pp, 1993.
- Kessler, E.: On the distribution and continuity of water substance in atmospheric circulation. *Meteor. Monogr.*, No. 32, *Amer. Meteor. Soc.*, 84pp, 1969.
- Lin, Y.-L., Farley, R. D., Orville, H. D.: Bulk parameterization of the snow field in a cloud model. *J. Climate Appl. Meteor.*, 22, 1065-1092, 1983.
- Mlawer, E. J., Taubman, S. J., Brown, P. D., Iacono, M. J., Clough, S. A.: Radiative transfer for inhomogeneous atmosphere: RRTM, a validated correlated-k model for the long-wave. *J. Geophys. Res.*, 102(D14), 16663-16682, 1997.
- Madronich, S.: Photodissociation in the atmosphere, 1, actinic flux and the effects of ground reflections and clouds. *J. Geophys. Res.*, 92, 9740-9752, 1987.
- Schell B., Ackermann, I.J., Hass, H., Binkowski F.S., Ebel A.: Modeling the formation of secondary organic aerosol within a comprehensive air quality model system, *J. Geophys. Res.*, 106, 28275-28293, 2001.
- Stockwell, W., Kirchner, F., Kuhn, M., Seefeld, S.: A new mechanism for regional atmospheric chemistry modelling. *J. Geophys. Res.*, 102, 847-879, 1997.
- Wesely L., M.: Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models, *Atmospheric Environment*, 23, 1293-1304, 1989.
- Wild, O., Zhu, X., Prather, M.J.: Fast-J: Accurate Simulation of In-and Below-Cloud Photolysis in Tropospheric Chemical Models, *J. Atmos. Chem.*, 37, 245-282, 2000.
- Zaveri, R. A., Peters, L. K.: A new lumped structure photochemical mechanism for large-scale applications. *J. Geophys. Res.*, 104, 387 -415, 1999.
- Zaveri, R. A., Easter, R. C., Fast, J. D., Peters, L. K.: Model for Simulating Aerosol Interactions and Chemistry (MOSAIC). *J. Geophys. Res.*, doi: 10.1029/2007jd008782, 2008.
- Zhang, Y., Pun, B., Vijayaraghavan, K., Wu, S.-Y., Seigneur, C., Pandis, S., Jacobson, M., Nenes, A., Seinfeld, J. H.: Development and application of the model for aerosol dynamics, reaction, ionization and dissolution (MADRID). *J. Geophys. Res.*, 109, D01202, doi: 10.1029/2003JD003501, 2004.

4.12 ICLAMS

L' *Integrated Community Limited Area Modeling System* (ICLAMS) és el model emprat a la *National & Kapodistrian University of Athens* resultat de l'integració del *Regional Atmospheric Modeling System* (RAMS) amb una sèrie de mòduls químics per tal de pronosticar la meteorologia i els processos atmosfèrics (*feedbacks* directes/indirectes) relacionats amb les emissions de gasos contaminants i partícules d'aerosols (especialment els associats amb l'aviació) amb un horitzó de pronòstic de 48 hores. És utilitzat per operar sobre tres dominis diferents: el primer i més ampli, abarca tota la regió d'Europa i ho fa amb una resolució horitzontal de 36x36 km; el segon s'estableix sobre Grècia amb una resolució horitzontal de 6x6 km i el tercer niuament ofereix poder focalitzar-se sobre Atenes amb una resolució horitzontal de 3x3km.

Els RAMS (Cotton et al., 2003) és un model meteorològic no hidrostàtic de codi obert desenvolupat per científics de la *Colorado State University* capaç de simular circulacions atmosfèriques d'un hemisferi sencer fins a processos de transport dels remolins a la capa límit planetària. En els cas dels tres dominis esmentats anteriorment, treballa amb 32 nivells verticals des de la superfície fins als 50 hPa. Les dades inicials i de contorn són preses del ECMWF, del *National Meteorological Center* (NMC), de radiosonadatges i de simulacions prèvies realitzades pel propi model (a les 06 i les 18 UTC).

El mòdul químic inclou el mecanisme per a la fase química gas SAPRC99 (Carter, 1990, 2000a) el qual permetrà tenir en compte l'impacte dels compostos orgànics volàtils (aproximadament 500 espècies de VOC's) així com dels hidrocarburs no aromàtics i oxigenats en presència d'òxids de nitrogen (NOx) principalment sobre l'ozó troposfèric i la radiació. També conté el mòdul d'equilibri pels aerosols inorgànics: ISORROPIA (Fountoukis, 2007) considerant d'aquesta manera els aerosols de pols mineral i de sal marina entre els més destacats. Les dades d'emissions associades a l'aviació són proporcionades pel *Joint Research Center* (JRC), però també compte amb inventaris globals d'emissions antropogèniques (CO₂, NH₃, CH₄, SO₂, NOx, CO, N₂O, VOC's, OC i BC) i biogèniques (Gunther et al., 1995), així com parametritzacions per tal de calcular online el grau de formació de les reaccions de fotodissociació.

Pàgina web oficial:

<http://forecast.uoa.gr/ICLAMS/info.php>

Pàgines web relacionades:

<http://www.atmet.com/> (RAMS software per a l'usuari)

Casos d'aplicació del model:

Fay, B., Neunhäuserer, L., Baklanov, A., Kukkonen, J., Oedegaard, V., Palau, J.L., Perez-Landa, G., Rantamäki, M., Rasmussen, A., Valkama, I.: Evaluating and inter-comparing NWP and mesoscale models for forecasting urban air pollution episodes in FUMAPEX. EMS Annual meeting Abstracts, Vol I, 00401, 2004.

Kallos, G.B., Solomos, S., Kushta, J., Mitsakou, C., Athanasidis, P., Spyrou C., Tremback, C.: Aerosol-radiation-cloud and precipitation processes during dust events. American Geophysical Union, 53A-1252, 2010.

Kushta J., Solomos S., Kallos G.: Contribution of Aviation Emissions on the Air Pollution Levels of the Mediterranean Region with the Use of an Online Coupled, Fully Integrated Modeling System. Air Pollution Modeling and its Application XXI, NATO Science for Peace and Security Series C: Environmental Security, Volume 4, Part 2, 327-332, 2012.

Solomos S., Kallos G., Kushta J., Astitha M., Tremback C., Nenes A., Levin Z.: An integrated modeling study on the effects of mineral dust and sea salt particles on clouds and precipitation. Atmos. Chem. Phys., 11, 873-892, 2011.

Palau, J.L.; Pérez-Landa, G.; Dieguez, J.J.; Monter, C. and Millán, M.M.: The importance of meteorological scales to forecast air pollution scenarios on coastal complex terrain. Atmos. Chem. Phys., 5, 2771-2785, 2005.

Característiques del model:

Tipus de model	- 3D - Mesoescala - Meteorològic i de transport químic acoblat online
Horitzó de pronòstic	Regional i urbà: curt termini
Aproximacions/Limitacions	Boussinesq
Resolució horitzontal	Variable (3 dominis típics de 36x36km, 6x6km i 3x3km)
Nivells verticals	Variable (32 nivells verticals amb un màxim als 50 hPa per als dominis anteriors)
Sistema de coordenades	Horilatzontal: coordenades latitud i longitud rotades Vertical: coordenades isentròpiques i sigma
Inicialització i dades de contorn	Meteorologia: - NMC - ECMWF - Dades observacionals (radiosondatges) Química: Emissions: EINECS (European INventory of Existing Commercial chemical Substances) del JRC
Assimilació de dades	Meteorologia: - 4D-VAR, - Tècnica de nudging Química: 3D-VAR
Niuament (Meteorologia/Química)	- Dues direccions - Niuament online - Intercanvi de dades per fitxers
Variabls meteorològiques pronosticades	$u, v, w, \theta, p, Gph, q_v, q_t, q_{lc}, q_f, q_{sc}, q_{lr}, q_{sh}, q_{sg}, q_{ss}, E, K$
Espècies químiques pronosticades	NO, NO ₂ , CO ₂ , SO ₂ , HSO ₃ , CO, H ₂ O, H ₂ O ₂ , H ₂ , CH ₄ , HONO, N ₂ O, NMVOC, BC, OC, pols mineral, sal marina
Feedbacks	- Directes - Indirectes

Física del model:

Procés	Parametrització
Turbulència	- Smagorinsky, [1963]. Modificació de l'aproximació de la teoria K amb canvis estables basats en Lilly, [1962] i Hill, [1974] - Mellor-Yamada, [1982] - Parametrització isotròpica de la TKE per a simulacions d'alta resolució

Convecció	Tremback, [1990] (modificació dels esquemes Kuo, [1974] i Fritsch-Chappell, [1980a])
Superfície	- Inclou dos tipus de superfícies: sòl nu i sòl amb vegetació. La primera és tractada segons Tremback i Kessler, [1985] i la segona segons Avissar, [1989]
Radiació	- Mahrer i Pielke, [1977] descriu la radiació d'ona curta i llarga. Té en compte l'scattering produït per l'oxigen, ozó i diòxid de carboni a la vegada que tracta l'absorció i emissió de radiació IR pel vapor d'aigua. No considera els núvols. - Chen i Cottong, [1983] per a la radiació d'ona curta i llarga, ara tenint en compte els efectes de la condensació.
Núvols/Precipitació	- S'inclouen 5 espècies de cristalls de gel - Walko et al., [1995] i Meyers et al. [1997]. Dues parametritzacions de bulk de segon ordre per a tenir en compte els processos en els núvols càlids - Nenes i Seinfeld [2003] per a incloure l'activació de les gotes de núvols
Fase química gas	- SAPRC99 (Carter, 1990) per a la fase química gas
Emissions	- Inventaris globals d'emissions antropogèniques - Gunther et al., [1995] per a les emissions biogèniques
Aerosols	- ISORROPIA (Fountakis et al., 2007) per a l'equilibri termodinàmic i aerosols secundaris
Fotòlisi	Reaccions calculades online
Deposició seca	Wesely, [1989]. Tracta els processos d'eliminació de primer ordre (pols mineral i sal marina) mitjançant el càlcul de les resistències superficials.
Deposició humida	Establerta a partir de coeficients d' <i>scavenging</i> constants específics de cada espècie.

Referències:

Avissar, R., Pielke R.A.: A parameterization of heterogeneous land surfaces for atmospheric numerical models and its impact on regional meteorology. *Mon. Wea. Rev.*, 117, 2113-2136, 1989.

Carter, W.: A detailed mechanism for the gas-phase atmospheric reactions of organic compounds. *Atmos. Environ.* 24A; 481-518, 1990.

Carter, W.: Documentation of the Saprc-99 chemical mechanism for VOC reactivity assessment, Final Report to California Air Resources Board, no. 92-329, 2000a.

Chen, C., Cotton, W.R.: A one-dimensional simulation for the stratocumulus-capped mixed layer. *Boundary-Layer Meteorol.*, 25, 289-321, 1983.

Fountoukis, C.; Nenes, A.: *Interactive comment on "ISORROPIA II: a computationally efficient thermodynamic equilibrium model for K⁺, Ca²⁺, Mg²⁺, NH₄⁺, Na⁺, SO₂, NO₃⁻, Cl⁻, H₂O aerosols"*, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 7, S2097-S2101, 2007.

Hill, G. E.: Factors controlling the size and spacing of cumulus clouds as revealed by numerical experiments, *J. Atmos. Sci.*, 31, 646-673, 1974.

Kain, J. S., Fritsch, J.M.: A one-dimensional entraining/detraining plume model and its application in convective parameterization. *J. Atmos. Sci.*, 47, 2784-2802, 1990.

Lilly, D. K.: On the numerical simulation of buoyant convection, *Tellus XIV*, 148-172, 1962.

- Mahrer, Y., Pielke, R.A.: A numerical study of the airflow over irregular terrain. *Beirage zur Physik der Atmosphere*, 50, 98-113, 1977.
- Mellor, G. L., Yamada, T.: A hierarchy of turbulence closure models for planetary boundary layers. *J. Atm. Sci.*, 31, 1971-1806, 1974.
- Meyers, M. P., Walko, R. L., Harrington, J. Y., and Cotton, W. R.: New RAMS cloud microphysics parameterization, Part II: The two-moment scheme, *Atmos. Res.*, 45, 3-39, 1997.
- Nenes, A., Seinfeld, J. H.: Parameterization of cloud droplet formation in global climate models, *J. Geophys. Res.*, 108, 4415, doi:10.1029/2002JD002911, 2003.
- Schell B.: Modeling the formation of secondary organic aerosol within a comprehensive air quality model system, *J. of Geophys. Res.*, 106 (D22), 28, 275-28,293, 2001.
- Smagorinsky, J.: General circulation experiments with the primitive equations, Part I: The basic Experiment, *Mon. Weather Rev.*, 91, 99-164, 1963.
- Tremback, C.J., Tripoli G.J., Cotton W.R.: A regional scale atmospheric numerical model including explicit moist physics and hydrostatic time-split scheme. Preprints, 7th conference on numerical weather prediction, Montreal, Quebec, 1985.
- Tremback, C. J.: Numerical simulation of a mesoscale convective complex: Model development and numerical results, PhD Diss., Atmos Sci Paper No. 465, Colorado State University, Department of Atmospheric Science, Fort Collins, CO 80523, 1990.
- Walko, R. L., Cotton, W. R., Meyers, M. P., and Harrington, J. Y.: New RAMS cloud microphysics parameterization, Part I: The single-moment scheme, *Atmos. Res.*, 38, 29-62, 1995.
- Wesely, M. L.: Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models, *Atmos. Environ.*, 23, 1293-1304, 1989.

4.13 IFS-MOZART

L'acoblament online del model de predicció numèrica *Integrated Forecast System* (IFS) amb el model global de transport químic *Model for Ozone and Related chemical Tracers*, version 3 (MOZART₃) mitjançant l'interfície OASIS₄ es duu a terme durant el projecte europeu GEMS i posteriorment millorat durant el projecte MACC a càrrec del ECMWF. Presenta una resolució horitzontal variable i pot operar sobre diversos dominis i generar pronòstic a 12, 24 i 48 hores; un exemple d'aplicació pràctic del model però, el trobem durant els mesos de juliol i agost de l'any 2003 sobre l'àrea d'Europa central per tal d'estudiar-ne els perfils verticals d'ozó i diòxid de carboni i el seu impacte sobre la radiació i el cicle hidrològic (Ordóñez et al., 2010).

El model meteorològic IFS, es un model no hidrostàtic de gran escala capaç de treballar amb múltiples resolucions (la T₁₅₉ o 128 km, T₁₀₆ o 125km, T₂₁₃ o 63 km, T₃₁₉ o 63km, T₅₁₁ o 39km, T₇₉₉ o 25km, T₁₂₇₉ o 16km i de cara al 2015 i 2020 s'espera poguer operar ja a 10 km i entre 1-10 km respectivament) i de generar pronòstic meteorològic operatiu a curt i llarg termini. Durant el projecte europeu MACC (2011), l'IFS va ser actualitzat mitjançant la integració d'inventoris d'emissions (particularment de crema de biomassa) i mòduls d'aerosols amb el propòsit de computar el transport de certes espècies reactives i considerar-ne els feedbacks atmosfèrics desencadenats d'una manera més detallada que l'actual IFS-MOZART₃. Aquest sistema innovador però està encara sota vies de desenvolupament i no serà fins a finals del 2014 que es preveu que estigui ja completament finalitzat.

El MOZART₃ (actualment ja hi ha disponible la versió 4 amb múltiples millores)¹ conté mecanismes que permeten el tractament detallat dels processos químics i físics que governen a la troposfera (e.g., intercanvis a la capa límit, transport convectiu, cicle hidrològic) i estratosfera (e.g., sulfat estratosfèric i núvols estratosfèrics polars [PSCs] representants del processos heterogenis i la subseqüent pèrdua d'O₃), i de manera força acurada els que els que tenen lloc des de la mesosfera fins a la baixa termosfera. Els camps dinàmics per establir el transport dels compostos químics i el cicle hidrològic són proveïts en aquest cas pel model IFS, però sovint poden ser establerts per models climàtics globals com ara el *Whole Atmosphere Community Climate Model*, versió 1b (WACCM1b). El mecanisme químic per estudiar la fase química gas és el mateix del MOZART₄ el qual inclou 85 espècies fase gas, 12 bulks d'aerosols, 39 reaccions de fotòlisis i 157 reaccions en fase gas. Les emissions de contaminants provenen del l'inventori global d'emissions RETRO i del GFED versió 2.

Pàgina web oficial: -

Pàgines web relacionades:

<http://gems.ecmwf.int/> (GEMS)

<http://www.gmes-atmosphere.eu/> (MACC)

<http://www.ecmwf.int/research/> (IFS)

<http://web3.acd.ucar.edu/gctm/> (MOZART)

¹ <http://www.acd.ucar.edu/gctm/mozart/models/m4/> (MOZART₄)

http://retro.enes.org/data_emissions.shtml (RETRO)

http://daac.ornl.gov/cgi-bin/dsviewer.pl?ds_id=849 (GFED2)

Casos d'aplicació del model:

Ordóñez C., Elguindi N., Stein O., Huijnen V., Flemming J., Inness A., Flentje H., Katragkou E., Moinat P., Peuch V.-H., A. Segers, V. Thouret, G. Athier, M. van Weele, C. S. Zerefos, J.-P. Cammas, M. G. Schultz: Global model simulations of air pollution during the 2003 European heat wave, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 789–815, 2010

Flemming J., A. Inness, L. Jones, H. J. Eskes, V. Huijnen, M. G. Schultz, O. Stein, D. Cariolle, D. Kinnison⁶, G. Brasseur: Forecasts and assimilation experiments of the Antarctic ozone hole 2008. *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 1961–1977, 2011

Flemming, J., Inness, A., Flentje, H., Huijnen, V., Moinat, P., Schultz, M. G., and Stein, O.: Coupling global chemistry transport models to ECMWF's integrated forecast system, *Geosci. Model Dev.*, 2, 253–265, doi:10.5194/acp-2-253-2009, 2009.

Stein, O., Flemming, J., Inness, A., Kaiser, J.W., Schultz M.G.: Global reactive gases and reanalysis in the MACC project, in press at *Journal of Integrative Environmental Science*, 2012a

Característiques del model:

Tipus de model	- 3D - Mesoescala - Meteorològic i de transport químic acoblat online
Horitzó de pronòstic	Regional: curt termini i llarg termini
Aproximacions/Limitacions	Compostos amb un temps de vida curt, com ara el radical l'hidroxil (OH), no són adequats degut a que la seva escala temporal és menor que l'interval d'acoblament d'una hora. D'altra banda, el sistema tampoc sembla ser del tot òptim computacionalment per a espècies amb un temps de vida massa llarg com ara el metà
Resolució horitzontal	Variable
Nivells verticals	60 nivells verticals des de la superfície fins als 0,1 hPa
Sistema de coordenades	Horitzontal: latitud i longitud rotades Vertical: híbrid, coordenades sigma-pressió
Inicialització i dades de contorn	Meteorologia: observacions, dades de satèl·lit (MODIS, GNOME-2, EUMET SAT), i simulacions de reanàlisis prèvies del mateix model Química: IFS o altres models meteorològics/climàtics globals
Assimilació de dades	Meteorologia: 4D-VAR Química: 4D-VAR
Niuament (Meteorologia/Química)	- Dues direccions - Intercanvi de dades per matrius
Variables meteorològiques pronosticades	$u, v, w, \theta, q_v, q_{tr}, q_{scr}, q_{lr}, q_{shr}, q_{sg}, q_{ss}, N, E, K$
Espècies químiques pronosticades	CO ₂ , CO, CH ₄ , C ₂ H ₆ , CH ₃ CHO, NO _x , HCHO, SO ₂ , O ₃ , N ₂ O, N ₂ O ₅ , SO ₂ , HSO ₃ , H ₂ SO ₄ , HNO ₃ , HO ₂ NO ₂ , NMVOC, BC, OC, NH ₃ , pols mineral, sal marina
Feedbacks	- Directes - Indirectes

Física del model:

Procés	Parametrització
Turbulència	El transport vertical turbulent de les diferents variables és descrit utilitzant una Eddy Difusivity Mass Flux framework (EDMF) i resolt mitjançant una aproximació de primer ordre
Convecció	- Hack, [1994] per a la convecció superficial i mitjanament profunda - Zhang i McFarlane, [1995] per a la convecció profunda
Superfície	El fluxes superficials són computats utilitzant la teoria de semblança de Monin-Obukhov

Radiació	- McRad, Morcrette et al., [2008a] basat en el Rapid Radiation Transfer Model (RRTM) per a la radiació d'ona curta (Mlawer i Clough, [1997]) amb 14 bandes espectrals i llarga (Mlawer et al., 1997) amb 16 bandes espectrals - Monte-Carlo Independent Column Approximation (McICA) per a calcular els efectes dels núvols sobre la radiació
Núvols/Precipitació	Modificació de Tiedtke, [1993] amb la possibilitat de considerar de manera independent el contingut d'aigua líquida i gel obtenint així una representació més realista de l'aigua super congelada. També permetrà determinar la velocitat terminal de caiguda de les gotes de precipitació i flocs de neu
Fase química gas	- Mecanisme SO _x /NH ₃ /NH ₄ del MOZART ₄ (Park et al., 2009) - JPL-o ₃ i JPL-o ₆ (Sander et al., 2006) descrit a Kinnison et al., [2007]
Emissions	RETRO i GFEDv ₂ (Schultz et al., 2009) i (van der Werf et al., 2006) respectivament
Aerosols	- Mòdul GLOMAP-mode pels aerosols integrat dins l'IFS
Fotòlisi	S'empra el Tropospheric Ultraviolet and Visible (TUV) Radiation Model
Deposició seca	Wesley, [1989] mitjançant el càlcul de les resistències superficials
Deposició humida	Establerta a partir de coeficients d' <i>scavenging</i> específics de cada espècie

Referències:

Hack, J. J.: Parameterization of moist convection in the NCAR community climate model (CCM₂), *J. Geophys. Res.*, 99, 5551-5568, 1994.

Kinnison, D. E., Brasseur, G. P., Walters, S., Garcia, R. R., Marsh, D. R., Sassi, F., Harvey, V. L., Randall, C. E., Emmons, L., Lamarque, J. F., Hess, P., Orlando, J. J., Tie, X.X., Randel, W., Pan, L. L., Gettelman, A., Granier, C., Diehl, T., Niemeier, U., Simmons, A. J.: Sensitivity of Chemical Tracers to Meteorological Parameters in the MOZART-3 Chemical Transport Model, *J. Geophys. Res.*, 112, 2007.

Mlawer, E. J., Taubman, S. J., Brown, P. D., Iacono, M. J. and Clough, S. A.: Radiative transfer for inhomogeneous atmospheres: RRTM, a validated correlated-k model for the longwave. *J. Geophys. Res.*, 102D, 16663-16682, 1997.

Mlawer, E. J., Clough, S.: Shortwave and longwave enhancements in the rapid radiative transfer model. In Proc. 7th Atmospheric Radiation Measurement (ARM) Science Team Meeting, U.S. Department of Energy, CONF-9603149, 1997.

Parker, M., Randel, W. J., Emmons, L. K., Livesey, N. J.: Transport pathways of carbon monoxide in the Asian summer monsoon diagnosed from Model of Ozone and Related Tracers (MOZART), *J. Geophys. Res.*, 114, D08303, doi:10.1029/2008JD010621, 2009.

Sander, S. P., Golden, D. M., Kurylo, M. J.: Chemical Kinetics and Photochemical Data for Use in Atmospheric Studies, Evaluation Number 15, JPL Publication 06-02, Jet Propulsion Laboratory, Pasadena, CA, USA, 2006.

Schultz, M. G., Pulles, T., Brand, R., van het Bolscher, M., Dalsøren, S. B.: A global data set of anthropogenic CO, NO_x, and NMVOC emissions for 1960–2000, 2009.

Tiedtke, M.: Representation of clouds in large-scale models. *Mon. Weather Rev.*, 121, 3040–3061, 1993.

van der Werf, G. R., Randerson, J. T., Giglio, L., Collatz, G. J., Kasibhatla, P. S., Arellano Jr., A. F.: Interannual variability in global biomass burning emissions from 1997 to 2004, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 3423–3441, 2006

Zhang, G. J., McFarlane, N. A.: Sensitivity of climate simulations to the parameterization of cumulus convection in the Canadian climate centre general circulation model, *Atmos. Ocean*, 33, 407–446, 1995.

Wesely, M. L.: Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models, *Atmos. Environ.*, 23, 1293–1304, 1989.

4.14 CAM3

El *Community Atmospheric Model* versió 3 (CAM3) és la cinquena generació de l'*NCAR Community Climate Model* (CCM) que reflecteix completament el rol d'un sistema completament acoblat online per a l'estudi del clima i la meteorologia considerant els feedbacks directes/indirectes relacionats amb el transport d'espècies contaminants i aerosols. En contrast amb les anteriors versions del model, aquesta darrera ha estat dissenyada per l'*Atmospheric Model Working Group* (AMWG) sota un procés col·laboratiu d'usuaris, científics de l'NCAR i laboratoris del govern. El CAM3 incorpora una sèrie de nuclis dinàmics: és possible que pugui ser executat sota una dinàmica Euleriana i semi-Lagrangiana. És capaç d'operar amb diversos dominis, amb una resolució horitzontal variable i treballar amb 26 nivells verticals des de la superfície fins als 3,5 hPa oferint pronòstic operatiu cada 24-48 hores.

El model de transport químic integrat dins el model meteorològic CAM3 presenta diversos mecanismes que permeten tractar la fase química gas: el més simple inclou el tractament de les espècies de metà (CH₄), òxid de nitrogen (N₂O), clorofluorocarbons (CFC's), radicals (OH, HO₂ i NO₃), diòxid de sofre (SO₂) i dimetilsulfòxid (DMS). El més complex (amb 167 reaccions químiques i 63 espècies) permet simular la química del sulfat en equilibri amb les espècies en dissolució: SO₂, peròxid d'hidrogen (H₂O₂), O₃ i àcid sulfúric, així com les reaccions cinètiques en fase aquosa dels compostos de sofre en estat d'oxidació IV amb l' H₂O₂ i O₃ (2 reaccions cinètiques i 4 en equilibri). També disposa d'un mecanisme que permet simular la química del sulfur amb 14 reaccions. El mòdul per a tractar els aerosols és el MOZART versió 4 (Parker et al., 2009), el qual utilitza règim d'equilibri per al sulfat, amoni i nitrat tenint en compte si la concentració de sulfats és baixa, mitjana o elevada. A diferència d'altres models que simulen la condensació dinàmica basant-se en lleis de creixement per condensació utilitzant diferents algorismes numèrics, el CAM3 assumeix condensació instantània a la vegada que no tracta el creixement per coagulació.

Les emissions de sulfur antropogèniques inclouen les espècies de SO₂ i SO₄⁻ així com les emissions de DMS oceàniques provenen de Smith et al., (2001); l'alliberament d'aerosols via fonts volcàniques i crema de biomassa en són excluides. Les emissions de DMS són obtingudes de l'inventari d'emissions de sulfur biogènic de Kettle et al., [1999]. Les concentracions de radicals de temps de vida curt (OH, NO₃ i HO₂) són simulades a partir de concentracions mensuals mitjanes del *Intermediate Model of Global Evolution of Species* (IMAGES), (Müller i Brasseur, 1995). El grau de formació de les reaccions de fotòlisi del H₂O₂ és determinada via un mètode de taules pre-establertes en el qual el grau de formació d'aquesta depèn del promitg de l'angle zenital diürn assumint un albedo del 30% per la radiació UV.

Pàgina web oficial:

<http://www.cesm.ucar.edu/models/atm-cam/>

Pàgines web relacionades:

<http://www.cesm.ucar.edu/models/atm-cam/docs/description/node26.html> (IMAGES)

<http://www.cgd.ucar.edu/cms/ccm3/> (CCM)

Casos d'aplicació del model:

Liu, X, Penner, J.E, Wang M.: Influence of anthropogenic sulfate and black carbon on upper tropospheric clouds in the NCAR CAM3 model coupled to the IMPACT global aerosol model. *JOURNAL OF GEOPHYSICAL RESEARCH*, VOL. 114, D03204, 19 PP., 2009

Wang M., Penner J.E., Liu X.: Coupled IMPACT aerosol and NCAR CAM3 model: Evaluation of predicted aerosol number and size distribution. *JOURNAL OF GEOPHYSICAL RESEARCH*, VOL. 114, D06302, 30 PP., 2009

Rasch, P. J., Boville, B. A., Brasseur, G. P.: A threedimensional general circulation model with coupled chemistry for the middle atmosphere, *J. Geophys. Res.*, 100(D5), 9041–9072, doi:10.1029/95JD00019, 1995.

Rasch, P. J., Coleman, D. B., Mahowald, N., Williamson, D. L., Lin, S.-J., Boville, B. A., Hess, P.: Characteristics of atmospheric transport using three numerical formulations for atmospheric dynamics in a single GCM framework, *J. Climate*, 19, 2243–2266, 2006a.

Kiehl, J. T., Hack, J. J., Bonan, G. B., Boville, B. B., Williamson, D. L., and Rasch, P. J.: The National Center for Atmospheric Research Community Climate Model: CCM3, *J. Climate*, 11, 1131–1149, 1998.

Collins, W. D., Rasch, P. J., Boville, B. A., Hack, J. J., McCaa, J. R., Williamson, D. L., Kiehl, J. T., and Briegleb, B.: Description of the NCAR Community Atmosphere Model (CAM3), Tech.Rep. NCAR/TN-464 STR, National Center for Atmospheric Research, Boulder, CO, 226 pp., 2004.

Collins, W. D., Rasch, P. J., Boville, B. A., Hack, J. J., McCaa, J. R., Williamson, D. L., Briegleb, B. P.: The Formulation and Atmospheric Simulation of the Community Atmosphere Model, Version 3 (CAM3), *J. Climate*, 19, 2144–2161, 2006a.

Collins, W. D., Bitz, C. M., Blackmon, M. L., Bonan, G. B., Bretherton, C. S., Carton, J. A., Chang, P., Doney, S. C., Hack, J.J., Henderson, T. B., Kiehl, J. T., Large, W. G., McKenna, D. S., Santer, B. D., Smith, R. D.: The Community Climate System Model version 3 (CCSM3), *J. Climate*, 19, 2122–2143, 2006b.

Característiques del model:

Tipus de model	- 3D - Global - Meteorològic i de transport químic acoblat online
Horitzó de pronòstic	Regional: curt i llarg termini
Aproximacions/Limitacions	-
Resolució horitzontal	variable
Nivells verticals	26 nivells verticals des de la superfície fins els 3,5 hPa
Sistema de coordenades	Horitzontal: coordenades longitud i latitud Vertical: sistema híbrid de coordenades sigma i pressió
Inicialització i dades de contorn	Meteorologia: NCEP/NCAR reanàlisis Química: Data Assimilation Research Testbed (DART) de l'UCAR
Assimilació de dades	Meteorologia: 3D-VAR Química: 3D-VAR
Niuament (Meteorologia/Química)	- Una i dos direccions - Niuament online - Intercanvi de dades per matrius
Variables meteorològiques pronosticades	u, v, w, T, p, Gph, q _{lc} , q _{lr} , E
Espècies químiques pronosticades	H ₂ O, CO ₂ , O ₃ , CH ₄ , N ₂ O, CFC ₁₁ , and CFC ₁₂ PM ₁₀ , PM _{2,5} , NH ₄ ⁺ , SO ₄ ⁻
Feedbacks	- Directes - Indirectes

Física del model:

Procés	Parametrització
Capa límit	La física de la capa límit és calculada seguint una parametrització vertical no local (Giorgi F. et al., 1993a)

Convecció	- Modificació de Zhang i McFarlane, [1995] per a la convecció profunda
Superfície	Els processos superficials són descrits via el Biosphere-Atmosphere Transfer Scheme (BATS)
Radiació	La transferència radiativa és calculada utilitzant el paquet de l'NCAR Community Climate Model, versió 3 (CCM3) (Giorgi F. et al., 1999). Descriu l'efecte de diversos gasos contaminants (incloent el vapor d'aigua), l'aigua i cristalls de gel dels núvols i els aerosols atmosfèrics.
Núvols/Precipitació	- Sundqvist, [1988] per a calcular l'evaporació de la precipitació convectiva - Rasch i Kristjánsson, 1998 per a tractar la conversió de la condensació a la precipitació - Kristjánsson, [1998] i Zhang et al., [2003] per a descriure els processos no-convectius dels núvols - Zhang et al., 2003 per a tractar la condensació i evaporació sota el forçament de processos de gran escala
Química	- Química del sulfur - metà, òxid de nitrogen, CFCs/MOZART ₄ per a la fase química gas - compostos de sofre en estat d'oxidació IV per a la fase química aquosa
Emissions	Smith et al., [2001] per a les emissions antropogèniques Kettle et al., [1999] per les emissions de DMS IMAGES: Müller i Brasseur, [1995] per a les concentracions de radicals
Aerosols	MOZART ₄ : Parker et al., [2009]
Fotòlisi	Calculades online mitjançant taules pre-establertes calculades a partir de l'angle zenital
Deposició seca	Benkovitz et al., [1994] i Wesely, [1989]. Càlcul de la deposició seca de H ₂ O ₂ , SO ₂ i aerosols de sulfat mitjançant el càlcul de les resistències superficials
Deposició humida	Càlcul de la deposició humida de H ₂ O ₂ , SO ₂ i aerosols de sulfat. Sota el núvols és tractada segons Dana i Hales, [1976] i Balkanski et al., [1993].

Referències:

Balkanski, Y., Jacob, D., Gardner, G., Graustein, W., Turekian, K.: Transport and residence times of tropospheric aerosols inferred from a global three-dimensional simulation of 210Pb. *Journal of Geophysical Research* 98(D11), doi: 10.1029/93JD02456, 1993.

Benkovitz, C. M., Berkowitz C. M., Easter R. C., Nemesure S., Wagener R., Schwartz S. E.: Sulfate over the North Atlantic and adjacent continental regions: Evaluation for October and November 1986 using a three-dimensional model driven by observation-derived meteorology, *JGR*, 99, 20,725–20,756, 1994.

Dana, M.T., Hales, J.M.: Statistical aspects of the washout of polydisperse aerosols. *Atmos. Environ.* 10:45-50 Dana, M.T., J.M. Hales, and M.A. Wolf, 1976.

Giorgi, F., Marinucci M.R., Bates G. T.: Development of a second generation regional climate model (RegCM2). Part I Boundary layer and radiative transfer processes. *Mon. Weather Rev.*, 121, 2794-2813, 1993a.

Kettle, A. J., Andreae M. O., Amouroux D., Andreae T. W.: A global database of sea surface dimethylsulfide (DMS) measurements and a procedure to predict sea surface DMs as a function of latitude, longitude, and month, *Glob. Biogeochem. Cycles*, 13, 399–444, 1999.

- Kristjánsson, J. E., Kristiansen J.: Impact of a new scheme for optical properties of ice crystals on climates of two gcms, *J. Geophys. Res.*, 105, 10063–10079, 2000.
- Müller, J.-F., Brasseur, G. P.: IMAGES: A three-dimensional chemical transport model of the global troposphere, *Jgr*, 100, 16445–16490, 1995.
- Parker, M., Randel, W. J., Emmons, L. K., Livesey, N. J.: Transport pathways of carbon monoxide in the Asian summer monsoon diagnosed from Model of Ozone and Related Tracers (MOZART), *J. Geophys. Res.*, 114, D08303, doi:10.1029/2008JD010621, 2009.
- Rasch, P. J., Kristjánsson J. E.: A comparison of the CCM3 model climate using diagnosed and predicted condensate parameterizations, *J. Climate*, 11, 1587–1614, 1998.
- Smith, S. J., Pitcher, H., Wigley, T.M.L.: Global and regional anthropogenic sulfur dioxide emissions, *Glob. Biogeochem. Cycles*, 29, 99–119, 2001.
- Sundqvist, H.: Parameterization of condensation and associated clouds in models for weather prediction and general circulation simulation, in *Physically-based Modeling and Simulation of Climate and Climate Change*, Vol. 1, edited by M. E. Schlesinger, 433–461, Kluwer Academic, 1988.
- Wesely, M. L.: Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models, *Atmos. Environ.*, 23, 1293–1304, 1989.
- Zhang, G. J., McFarlane, N. A.: Sensitivity of climate simulations to the parameterization of cumulus convection in the Canadian Climate Centre general circulation model, *Atmosphere-Ocean*, 33, 407–446, 1995.
- Zhang, M., Lin W., Bretherton, C. S., Hack, J. J., Rasch, P. J.: A modified formulation of fractional stratiform condensation rate in the NCAR community atmospheric model CAM2, *J. Geophys. Res.*, 108 (D1), 2003.

5. Casos d'estudi

A continuació s'exposen dos casos d'estudi realitzats amb el model Weather Research and Forecasting integrat online (WRF/Chem) per tal d'il·lustrar la importància dels feedbacks dels aerosols als diversos paràmetres i processos meteorològics discutits anteriorment. Corresponen a: Chapman, (2009); i Zhang, (2010), respectivament.

5.1 WRF/Chem:

Avaluació de l'impacte dels aerosols a la regió de Nord Amèrica durant un episodi de tres dies, l'any 2004.

El WRF/Chem va ser aplicat per a simular un episodi de 3 dies (des del 9 d'agost del 2004 a les 06:00 UTC fins al dia 11 d'agost a les 21:00 UTC) per tal d'estudiar l'impacte local i regional de la presència de plantes industrials emissores d'aerosols i gasos precursors en punts determinats de Nord Amèrica. Per tal de calcular els feedbacks directes i semi-directes (forçament sobre la radiació solar i les interaccions núvol-aerosols, incloent la propietats òptiques) es va seguir el següent mètode: inicialment es va dur a terme una primera simulació base comparant els resultats obtinguts del model amb dades observacionals procedents de l'aircraft G-1 i d'estacions meteorològiques en superfície, i a continuació es van comparar els resultats de la simulació base amb els d'una segona simulació en la qual les emissions a tots els nivells per sobre de la superfície van ser establertes a zero.

El WRF/Chem va ser configurat sobre tres dominis niuats usant xarxes de 18, 6 i 2 km i operant amb una resolució vertical de 57 nivells des de la superfície fins als 100 hPa. El domini més gran (D1) cobria l'est dels Estats Units i l'oest del nord Atlàntic, els dominis 2 (D2) i 3 (D3) en canvi cobrien la regió de l'est de Pensilvània. Les dades d'emissions per ambdues simulacions van ser extretes del *US Environmental Protection Agency's 1999 (EPA's) National Emissions Inventori (NEI99)* modificat segons el recomanat per Fost et al., (2006) i actualitzat cada hora amb dades de NOx i SO2 per mitjà del *Continuous Emissions Monitoring System (CEMS)*.

El mòdul químic del model compta amb una fase química atmosfèrica basada en el mecanisme CBM-Z amb 64 espècies i 167 reaccions, amb una versió anterior del *Model for Simulating Aerosol Interactions and Chemistry (MOSAIC)* per tal de simular la química dels aerosols (els aerosols secundaris no han estat tractats en aquesta investigació) i el mecanisme per a tractar la fase química aquosa: Fahey i Pandis (2001) amb 50 espècies, 17 equilibris iònics, 21 reaccions reversibles (fase gas-fase aquosa) i 109 reaccions cinètiques. A la taula següent (taula 3) es resumeixen les parametritzacions usades en aquest estudi per a simular els principals processos atmosfèrics tractats.

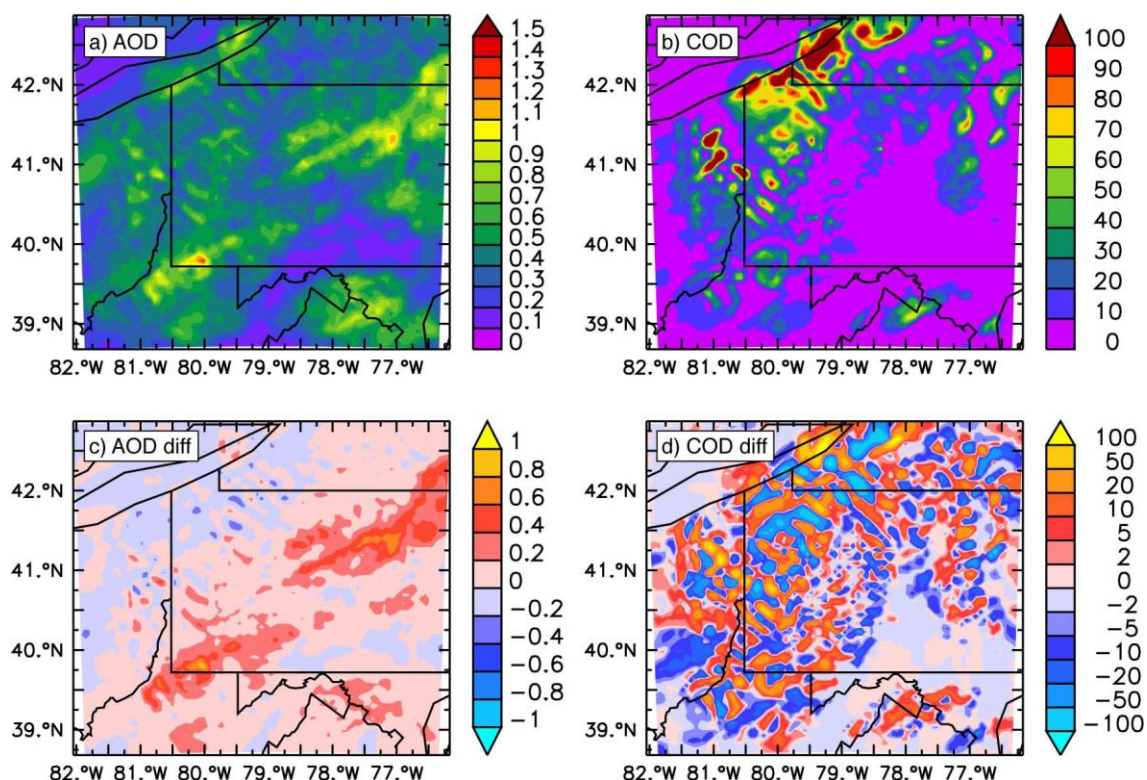
La comparació de resultats de la simulació base amb les dades observacionals disponibles mostren que el model representa de manera força realista les variacions dels paràmetres meteorològics (velocitat i direcció del vent, temperatura, humitat relativa, radiació solar incident, núvols i espessor òptic) i químics (ozó, aerosols d'amoni i distribució de mides d'aerosols) però amb una lleugera tendència a sobre-valorar les concentracions de PM_{2,5} i gasos precursors, especialment SO₂. Aquestes diferències s'atribueixen a una sobre-estimació de la concentració de SO₂ als inventoris de la US EPA CEMS, i a incerteses en les condicions de contorn.

Taula 3: principals parametritzacions utilitzades en aquest estudi

Procés	Parametrització
Radiació onal llarga	RRTM (Mlawer et al., 2000)
Radiació onal curta	Goddard (Chou i Suarez, 1994)
Capa superficial	Monin-Obukov
Capa límit	YSU (Hong i Dudhia 2003)
Advecció	Skamarock, 2006
Núvols	Kain-Fritsch, 1990
Microfísica de núvols	Lin et al., 1983
Fase química gas	CBM-Z (Zaveri i Peters, 1999)
Fase química aquosa	Fahey i Pandis, 2001
Química d'aerosols	MOSAIC (Zaveri et al., 2008)
Activació d'aerosols	Ghan i Easter, 2006
Fotòlisis	Fast-J (Wild et al., 2000)

Mitjançant la comparació dels resultats obtinguts per la simulació base amb els obtinguts per la simulació sense emissions es pot observar que, per al període estudiat, l'eliminació de les fonts d'emissió sí que presenten un impacte radiatiu important en la majoria de paràmetres analitzats, representats pel domini 2 i pel domini 3. Així per exemple, a la figura 16 es mostra la variació en l'espessor òptic dels aerosols i dels núvols pel dia 10 d'agost en funció de si les fonts hi són o no hi són considerades. El que s'observa és que la presència d'una gran emissió d'aerosols antropogènics a l'atmosfera resultarà, al llarg de tot el domini, en una menor quantitat de radiació transmesa cap a la superfície degut a un increment en l'espessor òptic de les partícules d'aerosols tot i una disminució en l'espessor òptic dels núvols. Tal i com es mostra a la taula 4, la radiació solar incident en superfície calculada pel domini 3 és consistent amb aquests resultats (existeix una diferència de 5 Wm^{-2}). D'altra banda, el nombre de cel·les del model exhibint núvols primis ($0 < \text{COD} \leq 1$) és aproximadament el 4% més gran en la simulació base però en canvi, núvols més gruixuts ($\text{COD} > 1$) s'observen majoritàriament en la simulació sense fonts. Si ens centrem ara en la quantitat de precipitació, tal i com s'esperava, aquesta es veu incrementada (quasi un 31%) en el cas d'un ambient no contaminat per la presència d'aerosols (a la simulació base s'obtenen 633 cm de precipitació mentre que a la simulació on s'inhibeix l'emissió de les fonts industrials la precipitació total és de 483 cm).

Figura 16: Simulació pel domini 2 de (a) l'espessor òptica dels aerosols (AOD) i (b) de l'espessor òptica dels núvols (COD) a la simulació base pel dia 10 d'agost a les 22:00 UTC. AOD (c) i COD (d) resultants de la diferència entre la simulació base i la simulació sense considerar les fonts d'emissió (calculat com: punt base-punt sense font).



Taula 4: Comparació de les propietats dels núvols a la simulació base i a la simulació sense tenir en compte les fonts d'emissió. Els valors són representats pel domini 3 i representen: l'espessor òptic mitjà en cel·les que contenen núvols ($COD_{COD>0}$); l'espessor òptic mitjà en cel·les que contenen núvols gruixuts ($COD_{COD>1}$); número de cel·les que contenen núvols ($N_{COD>0}$); número de cel·les que contenen núvols gruixuts ($N_{COD>1}$); aigua total condensada (TCW); precipitació total (TP); espessor òptic mitjà d'aerosols (AOD); i radiació solar mitjana incident en superfície (SWR).

	Baseline	NPS	Baseline	NPS	Baseline	NPS	Baseline	NPS
	9 Aug	9 Aug	10 Aug	10 Aug	11 Aug	11 Aug	Overall	Overall
Mean $COD_{COD>0}$	7	8	21	21	19	18	18	17
Mean $COD_{COD>1}$	13	14	37	36	24	22	26	25
$N_{COD>0}$	30 250	30 769	60 571	59 185	74 616	74 964	165 437	164 945
$N_{COD>1}$	15 685	16 392	33 968	34 464	61 352	61 815	111 005	112 671
$N_{(0<COD\leq 1)}$	14 565	14 377	26 603	24 721	13 264	13 149	54 432	52 274
TCW (cm)	73	78	650	707	537	540	1260	1325
TP (cm)	0.01	0.01	429	595	54	38	483	633
Mean AOD	0.42	0.36	0.49	0.39	0.45	0.39	0.46	0.38
SWR ($W m^{-2}$)	521	522	403	408	342	350	423	428

5.2- WRF/Chem:

Estudi dels efectes dels aerosols a diversos punts d'Amèrica del nord durant els mesos de gener i juliol de l'any 2001

En aquest segon cas d'estudi, el WRF/Chem ha estat aplicat per simular l'efecte dels feedbacks directes, se-directes i indirectes dels aerosols sobre l'àrea dels Estats Units al llarg dels mesos de gener i juliol del 2001. Per tal d'analitzar-ne les variacions climàtiques estacionals les simulacions van ser conduïdes sobre una xarxa horitzontal de 36 km cobrint Nord Amèrica, una porció de Canadà i el nord de Mèxic amb una resolució vertical de 34 nivells des de la superfície (~40 m) fins als 100 mb (~16 km) amb una resolució més detallada per a la PBL (<~2,9km, definida com el cim de la PBL definida en aquest treball). Per tal d'establir les condicions inicials i de contorn meteorològiques el model utilitza dades de reanàlisi del *National Center for Environmental Prediction* (NCEP) *Final Analysis* (FNL); per les condicions inicials i de contorn químiques, el model utilitza dades de simulacions prèvies del model global GEOS-Chem (Park et al. 2003, 2004); i les dades d'emissions pels gasos i les PM són proporcionades pel *EPA's National Emissions Inventories (NEI) 2001* (o també anomenat NEI 1999 versió 3).

A la taula de la dreta (taula 5) es resumeixen de manera esquematitzada les parametritzacions que el WRF/Chem ha utilitzat per tal de calcular els diversos paràmetres i processos atmosfèrics tractats en aquest estudi. L'efecte directe dels aerosols a la radiació solar és calculat mitjançant la teoria de Mie seguint l'aproximació de Fast et al., 2006. Els feedbacks indirectes dels aerosols a la formació dels núvols en canvi, són simulats considerant els efectes dels núvols sobre la radiació d'ona curta, l'activació/resuspensió dels aerosols i el nombre de nuclis de condensació formats tal i com es descriu a Chapman et al., 2009 i a Skamarock et al., 2005.

Taula 5: principals parametritzacions utilitzades en aquest estudi

Procés	Parametrització
Radiació ona llarga	RRTM (Mlawer et al., 2000)
Radiació ona curta	Goddard (Chou i Suarez, 1994)
Capa superficial	Monin-Obukov
Capa límit	YSU (Hong i Dudhia 2003)
Advecció	Skamarock, 2006
Núvols	Grell i Devenyi (2002)
Microfísica de núvols	Lin et al., (1983); Chen i Sun (2002)
Fase química gas	CBM-Z (Zaveri i Peters, 1999)
Fase química aquosa	Fahey i Pandis, 2001
Química d'aerosols	MOSAIC (Zaveri et al., 2008)
Activació d'aerosols	Abdul-Razzak i Ghan, 2002
Fotòlisi	Fast-J (Wild et al., 2000)

Per tal de poder avaluar els feedbacks entre la meteorologia i els aerosols es duen a terme dues simulacions diferents per a cada mes: inicialment es realitza una simulació base en la qual tots els processos químics i meteorològics dels gasos i les PM hi són considerades, i a la segona simulació en canvi, es mantenen tots els tractaments i condicions de la simulació base amb l'excepció que les emissions de les PM i les PM secundàries no hi són considerades. Bàsicament, les diferències entre ambdues simulacions sorgeixen degut a la presència de partícules d'aerosols addicionals resultants de l'emissió de contaminants per fonts d'origen antropogènic i les posteriors conversions gas-partícula sota aquestes condicions atmosfèriques. Estudiant-ne els paràmetres simulats permetrà obtenir coneixament dels efectes dels aerosols sobre la radiació solar incident, la capa límit planetària i la formació dels núvols a les regions seleccionades. Així doncs, després de comparar els resultats de la primera simulació amb dades observacionals de l'U.S EPA 2007 es conclou que el model opera correctament en termes de la seva gran capacitat de representar, amb els mínims errors, paràmetres com la temperatura, la humitat relativa, l'AOD, la precipitació, i les concentracions dels gasos emesos (O_3 , NO_2 , CO) amb una certa tendència dominant a la sobre predicció de les concentracions de les $PM_{2,5}$ a quatre regions diferents (Jefferson Street [JST]; Atlanta, GA i Yorkville [YRK]; nord de Birmingham [BHM]; i Centreville [CTR]). Aquest fet s'atribueix a la sobre estimació de les emissions de OM primària al mes de gener i a la sobre estimació de PM secundàries al mes de juliol.

Mitjançant la comparació dels resultats obtinguts amb la simulació base i els obtinguts inhibint l'emissió de les PM s'obté que per una banda la presència d'aerosols pot reduir la radiació solar incident a la superfície via scattering uns $11,3 \text{ Wm}^{-2}$ (-9,1%) el mes de gener i uns $39,5 \text{ Wm}^{-2}$ (-16,1%) el mes de juliol a la major part de la regió nord del continent Americà. Conseqüència d'aquesta disminució de la radiació, els valors de temperatura assolits en superfície es redueixen uns $0,16^\circ$ pel primer mes i uns $0,37^\circ$ pel segon. A les regions del sud-est de Canadà, en àrees oceàniques i al nord-est del Pacífic la presència d'aerosols absovents de la radiació solar (BC i OC majoritàriament) contra restra el refredament ocasionat pels primers mitjançant l'emissió de radiació infraroja, incrementant d'aquesta manera l'energia en ona llarga uns 3 Wm^{-2} (1,1%) el gener i uns $10,3 \text{ Wm}^{-2}$ (3,1%) a la majoria d'àrees. Aquestes alteracions de la radiació solar i la temperatura a la vegada afecten la velocitat de les reaccions de fotòlisi del NO_2 i de la formació de l'ozó. Així, el grau de formació del diòxid de nitrogen es veu reduït un 8,2% sobre l'àrea central i est dels U.S durant el mes de juliol però s'incrementa un 6,9% al mateix mes sobre l'oest. Aquest fet és argumentable ja que la velocitat de la reacció de fotòlisi del N_2O depèn a la vegada d'altres factors com ara l'albedo i cobertura nuvolosa. Com a resultat de l'escalfament causat pel carbó negre i orgànic a la capa límit

planetària i al refredament assolit en superfície, el gruix d'aquesta minva un -23% (~22,4 m) al gener i un -24% (~92,4m) al juliol, liderant a un augment de la seva estabilitat i conduint a un agreujament de la contaminació. A la figura 17 següent apareixen representats els feedbacks directes (modificació de la radiació solar incident en superfície) i semi-directes (alteració de la temperatura a 2m, canvis de la reacció de fotòlisi del N₂O i l'alçada de la PBL) durant els mesos de gener i juliol.

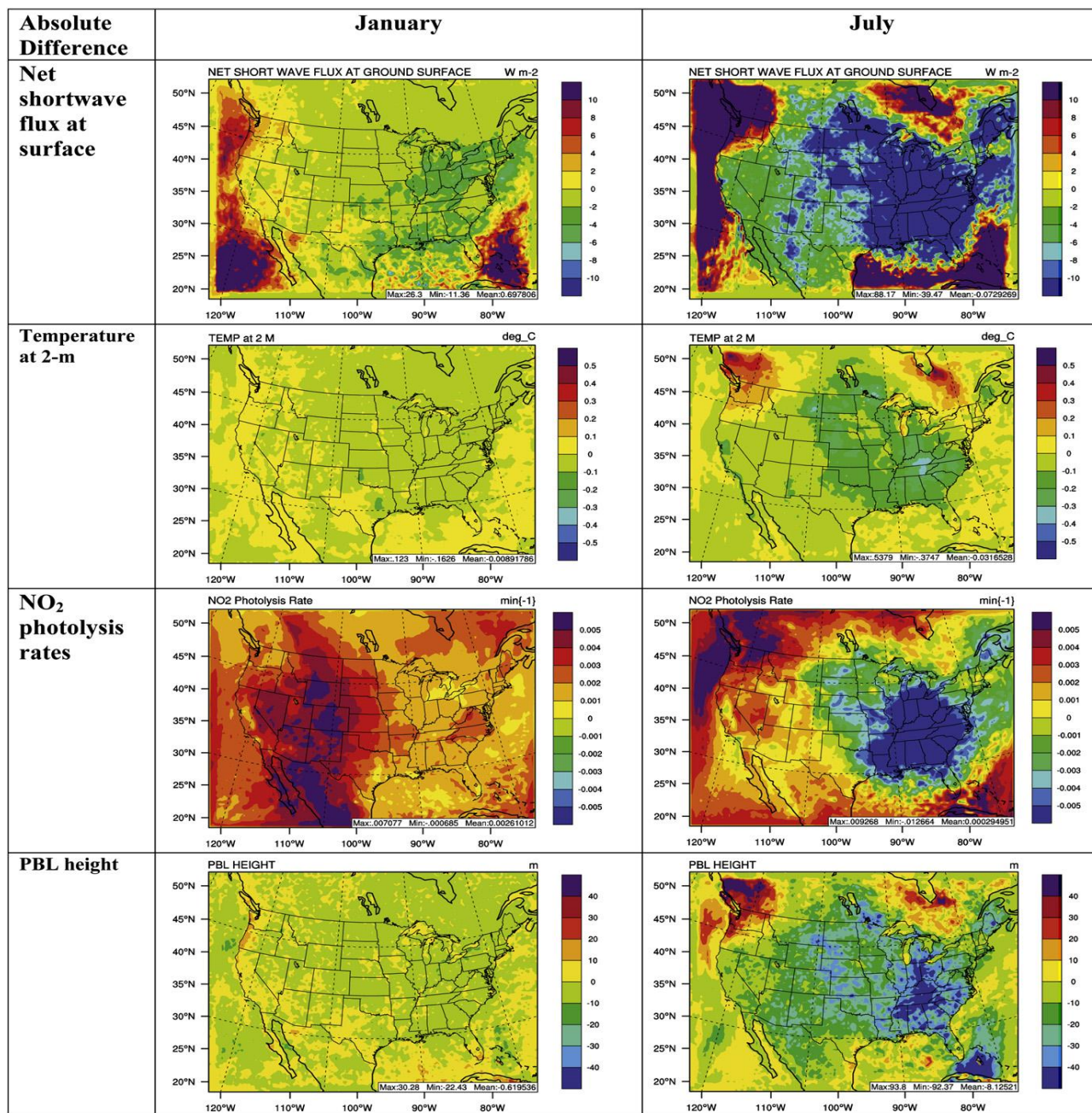


Figura 17: Simulació dels canvis en la radiació solar incident a la superfície, grau de formació de la reacció de fotòlisi del N₂O i espessor de la PBL pels mesos de gener i juliol.

D'altra banda, una vegada estudiats els efectes indirectes, es determina que la presència dels aerosols actuant com a nuclis de condensació (amb concentracions al 1% de sobresaturació entre 500-50000 cm⁻³ sobre la major part de la superfície continental i entre 10-500 cm⁻³ sobre oceà en ambdós mesos) genera una disminució de l'espessor òptic dels núvols al mes de gener i un increment durant el mes de juliol a la major part de les àrees del nord del continent. El núvols de gel no són simulats en aquest treball, però seguit a la presència de núvols càlids durant el juliol, la precipitació diària es veu afectada negativament uns 19,4 mm sobre la major part de les àrees en superfície degut a la formació de petits CNs; sobre àrees oceàniques en canvi, s'observa un augment de l'efectivitat de la precipitació degut a la formació de CNs més grans. A la figura de la pàgina següent (figura 18) es mostren representats els canvis simulats en l'espessor òptic dels núvols i de la quantitat de precipitació degut a la presència d'aerosols antropogènics durant els mesos de gener i juliol.

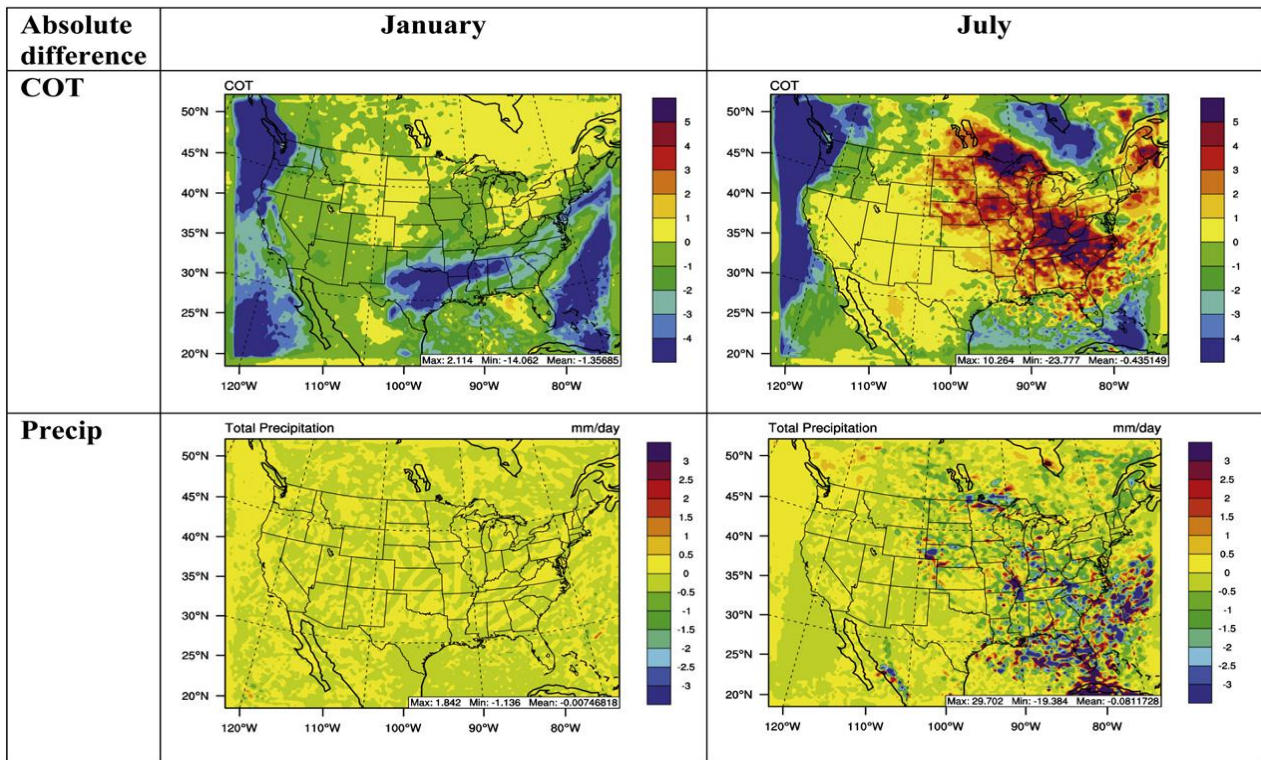


Figura 18: Simulació de l'espessor òptic dels núvols i de la quantitat de precipitació pels mesos de gener i juliol.

6. Conclusions

La necessitat d'estudiar l'estat químic de l'atmosfera i determinar-ne el seu impacte sobre el canvi climàtic mitjançant la interacció en dues direccions entre els processos meteorològics i les transformacions químiques de les espècies emeses, ja siguin d'origen biogènic o antropogènic, ha conduït al desenvolupament d'una nova metodologia dels sistemes de predicció de la qualitat de l'aire que permet considerar els feedbacks resultants a la presència dels aerosols i els seus gasos precursors d'una manera més efectiva: els **models online integrats**.

Aquests models online integrats no només lideraran una nova generació de models de predicció del transport químic atmosfèric sinó que també permetran millorar els camps de la predicció meteorològica (e.g., en àrees urbanes, fenòmens meteorològics severos, boires i visibilitat, canvis en la radiació solar, etc.), la predicció bio-meteorològica, model·lització del canvi climàtic i anàlisis de la qualitat de l'aire a curt i a llarg termini, entre els més destacats.

Entre els principals avantatges d'aquests models respecte la modalitat offline s'inclouen: (i) L'ús d'una única xarxa pel model meteorològic i el model de transport químic sense interpol·lació espacial i temporal (ii) Totes les variables 3-D meteorològiques i químiques són calculades al mateix pas d'integració (iii) No hi ha restriccions en la variabilitat dels camps meteorològics (iv) Possibilitat de considerar la interacció en dues direccions entre la meteorologia i la química (v) No necessitat d'ús de pre/post processadors meteorològics.

Degut a la presència d'aerosols contaminants a l'atmosfera es pot parlar de feedbacks directes, semi-directes, i indirectes. S'entén per efecte directe la interacció dels aerosols amb la radiació solar tot absorbint-la i emetent radiació infraroja (pols mineral, carbó negre i orgànic) o bé dispersant-la (sulfats, nitrats, sal marina) en funció de les seves propietats químiques i físiques. Gràcies a la seva gran capacitat higroscòpica els aerosols inorgànics solen ser partícules de major grandària capaces de dispersar la radiació solar de manera molt més efectiva que les orgàniques. Certs paràmetres i processos com ara la temperatura, els vents en superfície, la velocitat de la reacció de fotòlisi del N₂O per a la formació d'ozó així com l'alçada de la capa límit planetària també es veuran negativament afectats (disminuïts) per aquests canvis en la radiació solar i per l'alteració de l'estabilitat atmosfèrica en funció de la radiació en ona curta incident a la superfície.

L'efecte semi-directe consisteix en la reducció de la cobertura nuvolosa i del contingut d'aigua líquida atmosfèrica resultants d'una banda per l'escalfament de l'ambient i evaporació de les gotes de núvol ja formades a càrrec dels aerosols absorbents (emissor de radiació infra roja), i de l'altra per la manca d'evaporació d'aigua en superfície degut al refredament originat pels aerosols dispersants. Reb aquest nom ja que es tracta del resultat de la interacció directa dels aerosols amb la radiació solar i a la vegada influencia indirectament el clima alterant la composició dels núvols.

Pel cas dels aerosols purament dispersants, aquests redueixen la quantitat de radiació solar incident en superfície conduint a una reducció dels fluxos superficials de calor sensible i per tant de la temperatura prop del sòl liderant per una banda a una menor empenya tèrmica vertical per estabilització de la capa límit planetària i per l'altra a un augment de la força de la capa d'inversió. El resultat serà una disminució del gruix de la capa límit i una menor entrada d'aire sec i calent que afavorirà la formació de nuvulositat o guany de cobertura nuvolosa (en funció de la humitat relativa existent). Pel cas dels aerosols fortament absorbents, el gran escalfament generat per l'emissió d'ona llarga provocarà que l'alçada de la capa límit es vegi incrementada (tot i la reducció de l'activitat convectiva associada al refredament en superfície) a la vegada que afeblirà la força de la capa d'inversió. El resultat serà un augment de l'alçada de la capa límit planetària i una major entrada de masses d'aire més seques i calentes que conduiran a una disminució de la humitat relativa i a una pèrdua de la cobertura nuvolosa.

Algunes espècies d'aerosols com ara els sulfats resulten molt efectius actuant com a nuclis de condensació permetent que el vapor d'aigua dipositi amb facilitat sobre la seva superfície augmentant ràpidament la seva velocitat de creixement i grandària. Els aerosols capaços de formar nuclis grans o gegants de condensació afavoriran la precipitació a la vegada que disminuirà el temps de vida mitjà del núvol. Contràriament, els aerosols que retardin aquest creixement, com per exemple els compostos orgànics volàtils, formaran nuclis petits de condensació que inhibiran la precipitació a la vegada que s'allargarà el temps de vida mitjà del núvol. Aquest és l'anomenat efecte indirecte o més concretament segon efecte indirecte. El primer efecte indirecte o efecte Twomey (1977) fa referència al canvi en l'albedo dels núvols en funció del nombre de gotes d'aigua líquida de menor grandària contingudes en el seu interior. Així, l'emissió de grans concentracions d'aerosols contaminants a l'atmosfera conduirà a la formació de gotes més petites a l'interior del núvol ja que totes elles es trobaran competint per les molècules d'aigua disponibles. El resultat serà un increment de l'albedo del núvol i en conseqüència un forçament radiatiu negatiu a la vegada que l'eficiència de la precipitació també es veurà negativament afectada.

Tenint en compte que les interaccions entre els aerosols i els processos meteorològics tenen lloc a través d'una diversitat considerable de vies i mecanismes, resulta encara molt necessari la millora dels models online integrats per tal de dur a terme estudis futurs més sensibles i detallats que permetin entendre més acuradament la importància relativa dels diferents feedbacks per a les diferents espècies, escales i condicions atmosfèriques rellevants a la interacció entre la meteorologia i la química de l'aire.

Apèndix A

Importància de les parametritzacions en el model inetgrat online

La idea principal alhora de desenvolupar un model online integrat és fer que el sistema global sigui capaç de resoldre les equacions de govern primitives que descriuen la dinàmica de l'atmosfera alhora que també resolgui l'equació de transport per a cada contaminant de manera simultània i pel mateix pas d'integració. Això es fa possible incloent termes no lineals (resolts a partir de mètodes numèrics) a cada una de les equacions per tal de poder tenir en compte les interaccions entre la meteorologia i la química sense necessitat d'una interfície que les emuli (cas dels models online acoblats). Alhora de resoldre les equacions primitives serà també necessari l'ús de parametritzacions (aproximacions numèriques que permeten el càlcul de fenòmens que tenen lloc a una escala temporal i espacial més petita que la del model) per tal de tenir en compte els diferents processos físics (radiació, turbulència, convecció, microfísica de núvols..) i els diferents processos físico-químics associats a la presència de contaminants (interacció amb la radiació, deposició, emissions i transformacions químiques..).

Parametritzacions per a la convecció

La parametrització per a calcular el procés de la convecció es tracta d'un punt important per dos motius: el primer és que la morfologia i l'evolució dels sistemes convectius dependran fortament de la parametrització escollida. Per exemple, Bukovsky et al., (2006) mostra que l'ús de la parametrització Betts-Miller-Janjic en un model operacional simula força sovint les línies corbes convectives però no les inicialitza en la posició i temps correctes. En canvi, la parametrització Kain-Fritsch no les genera tan freqüentment però sí les situa bé espacialment i temporalment. En segon lloc, la manera en què la parametrització canvia l'atmosfera del model pot no representar exactament la realitat. Per exemple, Baldwin et al., (2002) mostra que la Betts-Miller-Janjic no simula correctament les zones fredes en comparació amb les observades en les ones dels sistemes convectius i presenta una certa tendència a eliminar la inhibició convectiva més ràpidament del que succeeix a la realitat.

Existeixen dues classes de parametritzacions convectives. Degut que una bon part d'aquestes parametritzacions són desenvolupades per dur a terme recerca en latituds tropicals, solen estar programades per alliberar la inestabilitat condicional gairebé al mateix moment de ser formada, mantenint així la neutralitat convectiva. Són anomenades també parametritzacions estadístiques d'equilibri (Emanuel, 1994 i Mapes, 1997) i entre elles s'inclouen: la Kuo (1965, 1974), Arakawa-Schubert (1974), Betts-Miller (1986) i the Betts-Miller-Janjic (Janjic, 1994), i Tiedke (1989). La convecció a mitjanes i altes latituds en canvi, no es comporta de la mateixa manera (la inestabilitat pot perdurar hores o fins i tot dies) i per tant ha de ser tractada diferent. Aquestes parametritzacions reben el nom d'activades (Emanuel, 1994 i Mapes, 1997), i entre elles s'inclouen la Kain-Fritsch (Kain i Fritsch, 1990, 1993; Kain, 2004) i els seus derivats (e.g. Bechtold et al., 2001).

Parametritzacions per a l'advecció

Les parametritzacions per a calcular l'advecció poden ser classificades principalment en quatre categories: flux, diferències finites, semi-Lagrangianes i espectrals. El criteri més important alhora de seleccionar la parametrització resulta ser la fiabilitat de l'algoritme (e.g., la garantia de que la massa romandrà positiva després del pas de l'advecció) i la monotomia (e.g., capacitat de minimitzar les fluctuacions d'elevada freqüència del camp). Ambdós criteris poden optimitzar-se, però a cost d'un guany de la viscositat numèrica (perquè domini la viscositat física i obtenir així una bona resolució de les estructures a petita escala, aquesta ha de ser el més petit possible) resultant en un problema típic de les parametritzacions que segueixen un enfoc Eulerià. Només la Galperin, (1999, 2000) té viscositat numèrica nul·la a canvi però d'un elevat requeriment de memòria addicional. És important també que la parametrització presenti certa capacitat de minimitzar l'error de fase (e.g., la correcta representació de la velocitat de transport) i sobretot que sigui eficient en termes de temps computacional i memòria.

La parametrització per flux es basa en l'avaluació del fluxos de mescla als contorns de les cel·les de la xarxa mitjançant processos d'interpolació per tal de determinar-ne les concentracions i la velocitat del vent. Probablement, la parametrització més utilitzada per al càlcul de l'advecció és la Bott, (1989, 1992, 1993) i les seves derivades (Syrov, 1996; Syrov i Galperin, 1997, 2000). Tot i les seves limitacions (e.g., presenten problemes per mantenir la conservació de la massa), solen ser millors que les parametritzacions per diferències finites.

La parametrització per diferències finites inclou la directe discretització de l'equació de dispersió i vàries classes de funcions d'interpolació per tal de determinar la distribució de les concentracions temporals del plomall. Sovint aquestes parametritzacions es troben limitades per la viscositat numèrica i l'estabilitat, les quals afecten al número de Courant (coeficient entre el pas de temps i el temps de residència d'una partícula en un volum finit). Exemples d'aquestes parametritzacions són van Leer, (1974, 1977) i Russel-Lerner, (1981). Per raons pràctiques, les parametritzacions de flux i semi-Lagrangianes solen ser les més utilitzades.

Les parametritzacions semi-Lagrangianes representen les concentracions com un conjunt de masses distribuïdes a l'interior de les cel·les de la xarxa i s'advecen com a partícules Lagrangianes, tot i que algunes propietats hi són conservades. Exemples d'aquestes són: Crowley, (1967, 1968); Egan i Mahoney, (1972); Pedersen i Prahm, (1974); Smolarkiewicz, (1982); Prather, (1986); Williamson i Rasch, (1989); Staniforth i Côté, (1991). Una subclasse d'aquesta parametrització inclou les parametritzacions purament Lagrangianes (Eliassen, [1978]; Eerola, [1990]; Stohl et al., [2005]) en les quals les masses són totalment independents i són transportades individualment. Solen presentar més estabilitat i una millor viscositat numèrica (pot ser exactament zero). Tot i així, la majoria d'aquestes parametritzacions exhibeixen distorsions alhora de transportar els camps fet que comporta disposar de recursos computacionals addicionals per mantenir-les sota control i per tant, no acaben de ser del tot adients per resoldre càlculs de composició química.

Les darreres, les parametritzacions espectrals (e.g. Kreiss i Olinger, 1972; Prahm i Christensen, 1977; Zlatev i Berkowicz, 1988) utilitzen la transformació de Fourier per tal de convertir les equacions diferencials a equacions algebraïques les quals, sovint ja poden ser resoltes analíticament. Aquestes parametritzacions solen ser més utilitzades en models meteorològics que en els de transport químic.

Parametritzacions per a la difusió

Per una banda, la simulació de la difusió horitzontal segueix en la major part dels models meteorològics el mètode descrit per Smagorinsky, (1963) el qual presenta una fórmula útil per a simular la viscositat dels eddies turbulents (Boussinesq, 1877) basada en les derivades locals de la velocitat del vent i en la resolució del model. Sovint, l'algoritme utilitzat en el model combina Smagorinsky, (1963) amb un terme per tal que la difusió numèrica es vegi minimitzada (Byun i Schere, 2006). De l'altra, per al càlcul de la difusió vertical, la parametrització de la difusió mitjançant la teoria K és la més emprada tot i que no presenta gaires similituds entre els diferents models. El model MOCAGE per exemple simula la difusió vertical d'acord amb Louis, (1979) el qual fa ús del nombre de Richardson i de la longitud de mescla; l'OPANA, implementa dues parametritzacions diferents per a la capa límit convectiva: Blackadar i Pleim-Chang, 1992, incloent la difusió local, l'integració vertical contínua, una transició suau de la capa estable a la convectiva i una parametrització millorada per a la simulació de la viscositat dels eddies; i el WRF/Chem en canvi, utilitza la parametrització de la *Yonsey University* (YSU). Sovint, la parametrització de la difusió K també és combinada amb la longitud de mescla (en el model RCG) i amb l'aproximació de Genikhovich et al., (2004) (en el SILAM).

Parametritzacions per a la difusió

La deposició seca i humida són processos que s'encarreguen d'eliminar contaminants de l'atmosfera via sedimentació per gravetat o per precipitació respectivament. No només es tracta de parametritzacions acurades per tal de simular concentracions realistes d'aquests agents sinó que també han de tenir en compte que els contaminants depositats poden afectar a la vegada al sòl i a la vegetació (e.g., acidificació) i als cossos aquosos (e.g., eutrofització).

Una bona parametrització per al càlcul de la deposició seca ha de ser capaç de reproduir tant els fluxos turbulents a la capa límit com la interacció entre el contaminant i la superfície. Usualment és formulada en els models Eulerians com una condició de contorn a la superfície pel terme de la difusió vertical. En aquest terme, la concentració de l'espècie en el flux vertical es pot expressar com el producte de la velocitat de deposició V_d per la concentració de l'espècie a la superfície. Dues parametritzacions àmpliament utilitzades per al càlcul de la deposició seca de gasos i aerosols són la Wesely, (1989) i la Seinfeld i Pandis, (1998) les quals es basen en l'analogia amb la resistència superficial on la inversa de la velocitat de deposició és la suma de tres resistències en sèrie diferents: l'aerodinàmica deguda a la difusió turbulenta, la quasi-laminar deguda a la difusió molecular, i la *canopy* deguda a l'absorció de

Els càlcul de les diferents resistències pot variar d'un model a l'altre, però tots els models online integrats i alguns models offline ho fan a partir de paràmetres proporcionats pel *driver* meteorològic (e.g., flux de moment superficial).

Química

La selecció d'una parametrització química és sempre un compromís entre la complexitat, els requeriments, les restriccions del sistema de modelització i la disponibilitat dels recursos computacionals. Una base inorgànica bàsica és sempre inclosa en els models i les parametritzacions solen ser força similars ja que la química atmosfèrica inorgànica es troba ben establerta.

Un mecanisme fotoquímic d'oxidació dels VOCs antropogènics és completament necessari en els models per tal de predir les concentracions d'ozó (els models diferiran entre sí segons el grau de complexitat i les diferents parametritzacions per a calcular-ho). És important incloure també un mecanisme per al càlcul de les oxidacions biogèniques o naturals dels VOCs, especialment si el model cobreix una zona de boscos o terres on s'hi desenvolupa l'agricultura. Si el sistema és utilitzat per a dur a terme estudis relacionats amb l'acidificació/eutrofització del sòl resulta necessari disposar d'un mecanisme per a tractar la química en fase aquosa del sulfur i, per tal de predir la concentració de les partícules atmosfèriques serà necessari un mecanisme que permeti representar les diferents fases del procés de partició de les partícules gasoses. Els mecanismes més comuns utilitzats per a calcular la química en fase gas són: el CBM-IV, el RACM, el RADM₂ (RADM versió 2), el SAPRC-99, el NWP-Chem i l'ISORROPIA.

El *Carbon Box Mechanism* (CBM-IV, Gery et al., 1989) amb 30 espècies i 85 reaccions químiques, tracta les reaccions de 4 classes d'espècies diferents: inorgàniques, orgàniques, espècies orgàniques representades per substituents de carboni i espècies orgàniques representades per substituents moleculars. Actualment ja es disposa d'una nova versió del mecanisme: el CBM-V, que entre d'altres canvis, incorpora 156 reaccions i 52 espècies, constants de velocitat actualitzades, un paquet actualitzat de reaccions inorgàniques per condicions urbanes a troposfèriques i un mecanisme per tal de calcular el cicle de formació dels NO_x i el seu transport al llarg de múltiples dies. El trobem per exemple en els models Bolchem, Enviro-Hirham i OPANA.

El *second generation Regional Acid Deposition Model* (RADM₂, Stockwell et al., 1990) va ser desenvolupat a partir del mecanisme RADM anterior (Stockwell, 1986) i treballa amb 63 compostos i 156 reaccions químiques. Altres millores de la nova versió van ser l'actualització de les constants de velocitat d'algunes reaccions, la incorporació de nous grups funcionals i la reactivitat de compostos amb grups hidroxil (OH) així com un nou mecanisme per a tractar les reaccions de condensació dels compostos biogènics (Carter et al., 1995). El podem trobar en els models Enviro-Hirham, MCCM, COSMO LM-ART, OPANA i WRF/Chem.

El mecanisme químic desenvolupat al *Statewide Air Pollution Research Centre a California* (SAPRC-99) es tracta d'una versió millorada del seu predecessor: el SAPRC-90 (Carter et al., 1990) amb 35 espècies i 131 reaccions químiques, incorporant ara un mecanisme detallat per a tractar les reaccions atmosfèriques en fase gas d'unes 400 classes diferents de VOCs i els òxids de nitrogen (NO_x) en àrees urbanes i regionals. Permet determinar la reactivitat absoluta i relativa amb les molècules d'ozó d'una gran quantitat de VOCs emesos a l'atmosfera, ja d'origen biogènic com antropogènic. També inclou un sistema computacional capaç de generar la reactivitat d'una gran majoria d'hidrocarburs no aromàtics i oxigenats en presència de NO_x. Actualment ja s'esta desenvolupant una nova versió: el SAPRC-07, però de moment encara no ha estat incorporada en cap model, tanmateix, el SAPRC-99 sí que el podem trobar en els models OPANA i CMAQ, entre d'altres.

El submodel NWP-Chem (Korshom et al., 2008) consisteix en el mecanisme NWP-Chem per a la fase gas i el model NWP-Chem-Liquid. Permet tenir en compte 17 espècies i 32 reaccions químiques, describint la química bàsica de la fotooxidació dels VOC a radicals peroxi, les principals reaccions dels NO_x, les reaccions més importants de formació de l'ozó, i la química del sulfur (s'inclou el dimetil sulfòxid), la química de l'isopropè (emissions biogèniques d'isopropè que afecten la formació de l'ozó i de certs aerosols). La seva versió més actual la podem trobar en el model Enviro-Hirham.

L'ISORROPIA ("equilibri" en grec) es tracta d'un mòdul termodinàmic i d'equilibri d'aerosols dissenyat per al càlcul de les concentracions en equilibri de compostos inorgànics semi-volàtils (Nenes et al., 1998a, b; Fountakis i Nenes, 2007). Tracta la fase gas, líquida i sòlida en espècies com ara el sulfat, nitrat, amoni, sodi, clorur i aigua. S'assumeix que totes les partícules de la mateixa grandària presenten la mateixa composició i és capaç de calcular també el contingut d'aigua dissolta continguda a l'interior de les partícules. El podem trobar en els models COSMO LM-ART i ICLAMS, entre d'altres.

Química i microfísica dels aerosols

Les partícules atmosfèriques es presenten en una gran varietat de classes tractant-se des d'emissions de partícules primàries (pols mineral i pol·len) fins a aerosols més complicats involucrant processos en fase gas, fase líquida i reaccions superficials. Les espècies tractades per la majoria de models són la sal marina, la pols mineral, el carbó elemental i l'orgànic, el nitrat, l'amoni, els aerosols orgànics secundaris biogènics i antropogènics. Els diferents mètodes per a tractar les característiques i els processos dels aerosols poden classificar-se en funció de a) com el model representa la distribució de les mides i b) la microfísica dels aerosols inclosa en el model.

En funció de com el model representa la distribució de les mides es parlarà de parametritzacions de bulk, parametritzacions modals o parametritzacions seccionals. Les primeres poden modelitzar la massa total de les partícules suspeses així com la massa a un cert interval de mides o bé la massa a certs intervals de mides de manera independent. Els intervals són típicament: PM₁, PM_{2,5} i PM₁₀ o bé la combinació d'alguns d'aquests. Aquesta parametrització resulta computacionalment eficient però tanmateix presenta greus limitacions quan es pretén estudiar processos que depenen de la interacció entre diverses mides (e.g., deposició). En les parametritzacions modals (Whitby i MacMurry, 1997) la distribució dels tamanys de les partícules és representada per un petit nombre de modes o categories de mides les propietats de les quals són simulades en funció de l'espai i el temps. Aquestes parametritzacions són en comparació amb les de bulk més eficients però més cares i consumeixen menys recursos que les seccionals. És per aquest motiu que sovint són emprades en models globals i regionals. En les parametritzacions seccionals (Jacobson, 2005) la distribució contínua de les mides és reemplaçada per un nombre discret de grups de manera que a cada un d'ells el model resoldrà les equacions per a la concentració de les partícules i la composició química. Aquesta parametrització és més flexible i precisa però resulta ser també la més cara de les tres.

Els principals processos microfísics que afecten la distribució de la grandària dels aerosols són la nucleació, la condensació/evaporació, la coagulació i la deposició. La nucleació es tracta d'una font important de formació de noves partícules a l'atmosfera a través d'una sèrie de canvis de la fase gas, i al mateix temps es troba fortament influenciada per factors com ara la temperatura, la humitat relativa i el grau d'ionització de les partícules i la seva composició superficial. El creixement d'aquestes es produeix per condensació de gasos a la seva superfície i malgrat que no se'n modifica el nombre, sí que se n'altera la grandària i la massa de cada una d'elles. La coagulació atmosfèrica és típicament un procés de col·lisió que té lloc entre partícules d'Aikten (0.001 - 0.1 µm de diàmetre), partícules grans (0.1 - 1 µm diàmetre) i partícules gegants (> 1 µm de diàmetre) per tal de formar noves partícules de grandària superior. La coagulació no canvia la massa però sí que en redueix el nombre de les partícules.

Al llarg d'aquest treball s'han vist diversos mòduls per a tractar les característiques i la microfísica dels aerosols, entre ells trobem: el Canadian Aerosols Module (Gong et al., 2003) al Air Quality in the Unified Model (AQUM); el M7 en el Bolchem i el COSMO LM-MUSCAT; el Chemistry-Aerosol-Cloud (CAC [Gross i Backlanov, 2004]), el Model for Simulating Aerosol Interactions and Chemistry (MOSAIC [Zaveri et al., 2007]) i el Modal Aerosol Dynamics Model for Europe (MADE [Ackerman et al., 1998]) al Enviro-Hirlam; el Canadian Aerosol Module (CAM [Gong et al., 2002]) al GEMS-AQ, el MADE/SORGAM (Schell et al., 2001) al MCCM; el ReLACS (Tulet et al., 2006) al Meso-NH, l'ISORROPIA II (Fountoukis et al., 2007) en el COSMO LM-ART i el GOCART (Chin, 2000) i el MOSAIC en el WRF/Chem.

Apèndix B

Llista d'acrònims

ρ	Densitat
Z	Alçada capa límit
Θ	Temperatura potencial
θ_i	Temperatura potencial de l'aigua líquida
3D	Tri-dimensional
ADOM-II	Acid Deposition and Oxidants Model II
AgeoBW	Amt für Geoinformationswesen der Bundeswehr
AMMA	African Monsoon Multidisciplinary Analysis
AMWG	Atmospheric Model Working Group
AOD	Espessor òptica de l'aerosol
ARPA-SIMC	Agenzia Regionale per la Protezione Ambientale dell'Emilia-Romagna Servizio Idro Meteo Clima
ARPA-Piemonte	Agenzia Regionale per la Protezione Ambientale de Piemonte
AQUM	Air Quality in the Unified Model
BC	Carbó negre
BHM	Birmingham
BEIS	Biogenic Emissions Inventory System
BOLCHEM	Bologna Limited area model for meteorology and Chemistry
BOM	Bureau of Meteorology
BWM	Building Wake Module
CAC	Chemistry-Aerosols-Cloud
CAM	Canadian Aerosol Module
CAM ₃	Community Atmospheric Model versió 3
CACM	Caltech Atmospheric Chemistry Mechanism
CBM-IV	Carbon Bond Mechanism versió 4
CBM-V	Carbon Bond Mechanism versió 5
CBMZ	Carbon-Bond Mechanism version Z
CCM	Community Climate Model de l'NCAR
CEMS	Continuous Emissions Monitoring System
CEPMEIP	Co-ordinated European Programme on Particulate Matter Emission Inventories, Projections and Guidance
CFCs	Clorofluorocarbons
CH ₄	Metà
CIRA	Centro Italiano Ricerche Aerospaz
CMAQ	Community Multiple Air Quality
CMC	Canadian Meteorological Centre
CN	Nuclis de condensació
CO	Monòxid de carboni
COD	Espessor òptic del núvul
COD _{COD>0}	Espessor òptic mitjà en cel·les que contenen núvols
COD _{COD>1}	Espessor òptic mitjà en cel·les que contenen núvols gruixuts
CO ₂	Diòxid de carboni
COOH	Grup carboxílic dels àcids
COPS	Convective and Orographically-induced Precipitation Study
COSMO LM-ART	Consortium for Small Scale MOdelling Local Model- Aerosols and Reactive Traces Gases
COSMO LM-MUSCAT	Model of the Consortium for Small Scale Modeling & Multi-Scale Atmospheric Transport Model
CTM	Model químic de transport
CTR	Centreville
CWF	Model químic de predicció
D	Domini
DMS	Dimetil sulfòxid
DWD	Deutscher Wetterdienst, Offenbach
E	Energia cinètica turbulenta
ECMWF	European Centre for Medium-Range Weather Forecast

EDGAR	Emission Database for Global Atmospheric Research
EGM	Eularian Grid Module
EMEP	European Monitoring and Evaluation Programme
EMEP-CEIP	European Monitoring and Evaluation Programme-Centre on Emission Inventories and Projections
EPA's	US Environmental Protection Agency's
EROS	Earth Resources Observation Systems
ESCOMPTE	Expérience sur Site pour COntreindre les Modèles de Pollution atmosphérique et de Transport d'Emissions
EUROCS	EUROpean Cloud Systems
FASTEX	Fronts and Atlantic Storm Track EXperiment
FCM	Flexible Chemical Mechanism
FDP	Funció de probabilitat
FENNEC	The Saharan Climate System
FNL	Final Analysis
GASP	Global Analysis and Prediction
Gph	Alçada de geopotencial
GCM	Model de circulació general
GEIA	Global Emissions Inventori Activity
GEM	Global Environmental Multiscale Model
GEM-AQ	Global Environmental Multi-scale Air quality
GEMS-GRG	Global Environment Multiscale-Global Reactive Gases
GEIA	Global Emissions Inventori Activity
GEWEX	Global Energy and Water Cycle Experiment
GFED2	Global Fire Emissions Data versió 2
GOCART	Goddard Chemistry Aerosol Radiation and Transport
GUI	Graphical User Interface
HIRLAM	Hight Resolution Limited Area Model
H₂	Hidrogen (gas)
H₂O	Aigua
H₂O₂	Peròxid d'hidrogen
HO₂	Radical hidroperoxi
H₂SO₃	Àcid sulfurós
H₂SO₄	Àcid sulfúric
HNMS	Hellenic National Meteorological Service
HONO	Àcid nítrós
HyMeX	HYdrological cycle in the Mediterranean EXperiment
ICLAMS	Integrated Community Limited Area Modeling System
IER	Institute for Energy Economics and the Rational Use of Energy
IFS	Integrated Forecast System
IFT	Institute for Tropospheric Research
ISAC	Istituto di Scienze dell'Atmosfera e del Clima
IMAGES	Intermediate Model of Global Evolution of Species
IMGW	Institute of Meteorology and Water Management
IMK-IFU	Institute of Meteorology and Climate Research - Atmospheric Environmental Research, Forschungszentrum Karlsruhe
IN	Nuclis de gel
IPCC	Intergovernmental Panel on Climate Change
IR	Radiació infraroja
ISORROPIA	Mòdul termodinàmic ISSORROPIA
JST	Jefferson Street
K	Coefficient d'intercanvi
KPP	Preprocessador cinètic
LES	Large-Eddy-Simulation
LPM	Lagrangian Particle Module
MADE/SORGAM	Modal Aerosol Dynamics Model for Europe (MADE) amb el Secondary Organic Model (SORGAM)
MADRID	Model of Aerosol Dynamics, Reaction, Ionization, and Dissolution
MAP	Mesoscale Alpine Program

MARS-A	Model for an Aerosol Reacting System (MARS) – versió A
MAQS	Metropolitan Air Quality Study
MC2-AQ	Mesoscale Compressible Community-Air Quality
MCCM	Mesoscale Climate Chemistry Model
MEGAN	Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature
MetM	Models meteorològics
MetUM	Unified Model
MOCAGE	Modélisation de la Chimie Atmosphérique Grande Echelle
MOSAIC	Model for Simulating Aerosol Interactions and Chemistry
MOZART₄	Model for Ozone and Related Chemical Tracers version 4
M-SYS	Multiscale Model System
MUSCAT	Multi-Scale Chemistry Aerosol Transport
NARE	North Atlantic Regional Experiment
NAE	Met Office North Atlantic and European Model
NAEI	National Atmospheric Emissions Inventory
N_{COD>0}	Número de cel·les que contenen núvols
N_{COD>1}	Número de cel·les que contenen núvols gruixuts
NCAR	National Center for Atmospheric Research
NCEP	National Center for Environmental Prediction
NEI₉₉	National Emissions Inventori (1999)
NH₃	Amoníac
NH₄⁺	Catió amoni
NH₄NO₃	Nitrat d'amoni
(NH₄)₂SO₄	Sulfat d'amoni
N_{ij}	Concentració del nombre de gotes
NMA	National Meteorological Administration
NMHC₉	Non methane Hydrocarbons Chemistry
NMMB/BSC-CTM	NMMB/BSC Chemical Transport Model
NMVOC	Non methane volatile organic compounds
N₂O	Òxid nitrós
NOAA	National Oceanic and Atmospheric Administration
NO	Monoxide de nitrogen
NO₂	Diòxid de nitrogen
NO₃⁻	Nitrat (aerosol)
NO_x	Òxids de nitrogen
NWP	Model numèric de predicció
NWP-Chem-Gas	Numerical Weather Prediction
NWP-CTM	Model numèric de predicció integrat amb el model de transport químic
O₃	Ozó
OC	Carbó orgànic
OH	Radical hidroxil
OM	Material orgànica
N	Cobertura nuvolosa
NMC	National Meteorological Center
P	Pressió
PAN	Nitrat peroxiacetil
PBL	Capa limit planetària
PM	Partícules de matèria
PM_{2.5}	Partícules amb un diàmetreaerodinàmic inferior o igual a 2.5 µm
PM₁₀	Partícules amb un diàmetre aerodinàmic inferior o igual a 10 µm
PM₃₀	Partícules amb un diàmetre aerodinàmic inferior o igual a 30 µm
POM	Matèria orgànica particulada
PRM	Plume Rise Module
PSCs	Polar Stratospheric Clouds
PSU/NCAR	Pensilvania State University / National Center for Atmospheric Research
p_v	Vorticitat potencial
q_f	Aigua total congelada
q_{lc}	Aigua líquida en núvols
q_{lr}	Gotes de pluja en núvols

q_{sc}	Cristalls de gel en núvols
q_{sg}	Pedra
q_{sh}	Calamarsa
q_{ss}	Neu
q_t	Total d'aigua líquida
q_v	Vapor d'aigua
RADM	Regional Acid Deposit ion Model
RADM2	Regional Acid Deposit ion Model, 2nd generat ion
RACM	Regional Atmospheric Chemistry Mechanism
RACM-MIM	Mainz Isoprene Mechanism
RACM-ESRL	Regional Atmospheric Chemistry Mechanism - Earth System Research Laboratory
RAMS	Regional Atmospheric Modeling System
RegAQ	Regional Air Quality
RETRO	REanalysis of the TROpospheric chemical composit ion
RHs	Humitats relatives
RosHydroMet	Hydrometeorological Centre of Russia.
RPN	Recherche en Prévision Numérique
RRTM	Rapid Radiat ive Transfer Model
SAPRC90	Statewide Air Pollut ion Research Center (1990)
SAPRC99	Statewide Air Pollut ion Research Center (1999)
SOA	Aerosols orgànics secundaris
SO₂	Diòxid de sofre
SO₄⁻	Sulfat (aerosol)
STC	Standard Tropospheric Chemistry
SWR	Radiació solar mitjana incident en superfície
T	Temperatura
TAPM	The Air Pollut ion Model
TCW	Aigua total condensada
TKE	Energia cinètica turbulenta
TOGA COARE	Coupled Ocean Atmosphere Response Experiment
TP	Precipitació total
TROCCINOX	Tropical Convect ion, Cirrus and Nitrogen Oxides Experiment
u	Component zonal de la velocitat
USAM	Ufficio Generale Spazio Aero e Meteorologia
UV	Radiació ultraviolada
UKCA	United Kingdom Chemistry and Aerosols
v	Component meridional de la velocitat
VOC	Components orgànics volàtils
w	Component vertical de la velocitat
WACCM1b	Whole Atmosphere Community Climate Model, versió 1b
WAF	Weighted Average Flux Tracers
WRF/Chem	Weather Research Forecast model with Chemistry
YRK	Yorkville
YSU	Yonsei University (YSU) PBL Scheme
Z_i	Alçada de la capa límit de mescla

Bibliografía (no contemplada en el capítulo 4)

- Abdul-Razzak, H., Ghan S.:** A parametrization of aerosol activation 2. Multiple aerosol types. *J. Geophys. Res.*, 105, 6837-6844, 2000.
- Abdul-Razzak, H., Ghan S., Rivera-Carpio C.:** A parametrization of aerosol activation 1. Single aerosol type. *J. Geophys. Res.*, 103, 6123-6131, 1998.
- Ackerman, S., Toon, O. B., Stevens, D. E., Heymsfield, A. J., Ramanathan, V., and Welton, E. J.:** Reduction of tropical cloudiness. *Science*, 288, 1042-1047, 2000.
- Adams, P.J., Seinfeld, J.H., Koch, D.M.:** Global concentrations of tropospheric sulphate, nitrate and ammonium aerosol simulated in a general circulation model. *J. Geophys. Res.*, 104, 13791-13823, 1999.
- Albrecht, B.:** Aerosols, cloud microphysics and fractional cloudiness. *Science*, 245, 1227-1230, 1989.
- Andreae, M.O.:** Climatic effects of changing atmospheric aerosol levels. In: *World Survey of Climatology. Vol. 16: Future Climates of the World*, A. Henderson-Sellers (ed). Elsevier, Amsterdam, pp. 341-392, 1995.
- Baklanov, A.:** Numerical Modelling in Mine Aerology, Apatity: USSR Academy of Science, 200 pp., 1988.
- Baklanov, A., Sørensen, J.:** Parameterisation of Radionuclide Deposition in Atmospheric Long-Range Transport Modelling, *Phys. Chem. Earth. (B)*, 26, 787-799, 2001.
- Baklanov, A., Rasmussen, A., Fay, B., Berge, E., Finardi, S.:** Potential and Shortcomings of Numerical Weather Prediction Models in Providing Meteorological Data for Urban Air Pollution Forecasting. *Water, Air and Soil Poll.: Focus*, 2(5-6):43-60, 2002.
- Baklanov, A., Gross, A., Sørensen, J. H.:** Modelling and forecasting of regional and urban air quality and microclimate, *J. Computational Technologies*, 9, 82-97, 2004.
- Baklanov A., Hänninen, O., Slørdal, L. H., Kukkonen, J., Bjergene, N., Fay B., Finardi, S., Hoe, S. C., Jantunen, M, Karppinen, A., Rasmussen, A., Skouloudis, A., Sokhi, R. S., Sørensen, J. H., Ødegaard, V.:** Integrated systems for forecasting urban meteorology, air pollution and population exposure. *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 855-874, 2007.
- Baklanov, A., Korsholm, U., Mahura, A., Petersen, C., and Gross, A.:** ENVIRO-HIRLAM: on-line coupled modelling of urban meteorology and air pollution, *Adv. Sci. Res.*, 2, 41-46, 2008a.
- Baklanov, A., Mestayer, P.G., Clappier, A., Zilitinkevich, S., Joffre, S., Mahura, A., Nielsen, N. W.:** Towards improving the simulation of meteorological fields in urban areas through updated/advanced surface fluxes description, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 523-543, 2008.
- Baldwin, M. E., Kain, J. S., Kay, M. P.:** Properties of the convection scheme in NCEP's Eta model that affect forecast sounding interpretation, *Weather Forecast.*, 17, 1063-1079, 2002.
- Bartzis, J. G., Venetsanos, A., Varvayani, M., Catsaros, N., Megaritou A.:** ADREA-I: A three-dimensional transient transport code for complex terrain and other applications. *Nucl. Technol.*, 94, 135-148, 1991.
- Bechtold, P., Bazile, E., Guichard, F., Mascart, P., Richard, E.:** A mass flux convection scheme for regional and global models, *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 127, 869-886, doi:10.1256/smsqj.57308, 2001.
- Blanchet, J.-P., Girard E.:** Water vapor and temperature feedback in the formation of continental Arctic air: Its implications for climate, *Sci. Total Environ.*, 160-161, 793-802, 1995.
- Bluth, J. S., Rose, W. I.:** Observations of eruptive activity at Santiaguito volcano, Guatemala. *J. Volcanol Geotherm Res*, 136:297-302, 2004.

- Bukovsky, M. S., Kain, J. S., Baldwin, M. E.:** Bowing convective systems in a popular operational model: are they for real?, *Weather Forecast.*, 21, 307–324, 2006.
- Byun, D.W., Ching, J.K.S.:** Science Algorithms of the EPA Models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) Modeling System. U.S. Environmental Protection Agency, Office of Research and Development. EPA/600/R-99/030, 1999.
- Carter, W. P. L.:** A detailed mechanism for the gas-phase atmospheric reactions of organic compounds, *Atmos. Environ.*, 24A, 481–518, 1990.
- Cervený, R.S., Bailing, Jr., R.C.:** Weekly cycles of air pollutants, precipitation and tropical cyclones in the coastal NW Atlantic region. *Nature* 394, 561e563, 1998.
- Chenevez, J., Baklanov A., J. H.: Sørensen,** Pollutant Transport Schemes Integrated in a Numerical Weather Prediction Model: Model Description and Verification Results. *Meteorological Applications* 11, 265-275, 2004.
- Chapman, E.G., Gustafson Jr, Easter R.C; Barnard, J.C., Ghan, S.J., Pekour, M.S., Fast, J.D.:** Coupling aerosol-cloud-radiative processes in the WRF-Chem model: Investigating the radiative impact of elevated point sources. *Atmos.Chem.Phys.*, 9, 945-964, 2009.
- Charlson, R. J., Schwartz, S. E., Hales, J. M., Cess, R. D., Coakley, Jr., J. A., Hansen, J. E., and Hofmann, D. J.:** Climate Forcing by Anthropogenic Aerosols, *Science*, 255, 5043, 423–430, 1992.
- Chin M.:** Atmospheric sulfur cycle simulated in the global model GOCART: Model description and global properties, *J. of Geophys. Res.*, 105, 24671-24687, 2000.
- Chou M.-D., Suarez M. J.:** An efficient thermal infrared radiation parameterization for use in general circulation models. NASA Tech. Memo. 104606, 3, 85pp, 1994.
- Chuang, C. C., Penner, J. E., Taylor, K. E., Grossman, A. S., and Walton, J. J.:** An assessment of the radiative effects of anthropogenic sulfate, *J. Geophys. Res.*, 102, 3761–3778, 1997.
- Chuang, C. C., Penner, J. E., Prospero, J. M., Grant, K. E., Rau, G. H., and Kawamoto, K.:** Cloud susceptibility and the first aerosol indirect forcing: Sensitivity to black carbon and aerosol concentrations, *J. Geophys. Res.*, 107(D21), 4564, doi:10.1029/2000JD000215, 2002.
- Chung, S. H., Seinfeld, J. H.:** Global distribution and climate forcing of carbonaceous aerosols, *J. Geophys. Res.*, 107(D19), 2002.
- Clark, J. H. E.:** A quasi-geostrophic model of the winter stratospheric circulation, *Mon. Weather Rev.*, 98(6), 443–461, 1970.
- Cook, J., Highwood, E. J.:** Climate response to tropospheric absorbing aerosol in an Intermediate General-Circulation Model. *Q. J. R. Meteorol. Soc. in press.*, 2003.
- Cooke, W.F., Liousse C., Cachier, H., Feichter, J.:** Construction of a 1° × 1° degree fossil fuel emission data set for carbonaceous aerosol and implementation and radiative impact in the ECHAM4 model. *J. Geophys. Res.*, 104, 22,137-22,162, 1999.
- Corrigan, C.E., Novakov T.:** Cloud condensation nucleus activity of organic compounds: A laboratory study. *Atmos. Env.*, 33, 2661-2668, 1999.
- Crassier, V., Suhre K., Tulet, P., Rosset, R.:** Development of a reduced chemical scheme for use in mesoscale meteorological models. *Atm. Env.*, 34, 2633–2644, 2000.
- Crowley, W. P.:** Second order numerical advection, *J. Comput. Phys.*, 1, 471–484, 1967.
- DeMott, P.J., Stith, J.L., Zen, R.J. Rogers, D.C.:** Relations between aerosol and cloud properties in North Dakota cumulus clouds. Preprints, 12th Int. Conf. on Clouds and Precipitation, Zurich, 19-23 August, pp. 320–323, 1996.

- Derognat D.**, Beekmann, M., Baeumle, M., Martin, D., Schmidt, H.: Effect Of Biogenic Voc Emissions On The Tropospheric Chemistry During Elevated Ozone Periods In Ile De France, *J. Geophys. Res.* 108., 8560, 2003.
- Eckman, R. S.**, Grose, W. L., Turner, R. E., Blackshear, W. T.: Polar ozone depletion: A three-dimensional chemical modeling study of its long-term global impact, *J. Geophys. Res.*, 101(D17), 22 977–22 990, 1996.
- Egan, B. A.** Mahoney, J. R.: Numerical modeling of advection and diffusion of urban area source pollutants, *J. Appl. Meteorol.*, 11, 312–322, 1972.
- Emanuel, K. A.**: Atmospheric Convection, Oxford University Press, Oxford, 580 pp., 1994.
- Feichter, J.**, Kjellstrom, E., Rodhe, H., Dentener, F., Lelieveld, J., Roelofs, G.-J.: Simulation of the tropospheric sulphur cycle in a global climate model. *Atmos. Env.*, 30, 1693–1707, 1996.
- Feingold, G.**, Kreidenweis, S.M., Zhang, Y.: Stratocumulus processing of gases and cloud condensation nuclei: Part I: trajectory ensemble model. *J. Geophys. Res.*, 103, 19527-19542, 1998.
- Forkel, R.**, Knoche, R.: Regional climate change and its impact on photooxidant concentrations in southern Germany: Simulations with a coupled regional climate-chemistry model, *J. Geophys. Res.*, doi:10.1029/2005JD006748, 2006.
- Fountoukis C.**; Nenes, A.: Interactive comment on "ISORROPIA II: a computationally efficient thermodynamic equilibrium model for K⁺,Ca²⁺,Mg²⁺,NH₄,Na⁺,SO₂,NO₃,Cl⁻,H₂O aerosols", *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 7, S2097–S2101, 2007.
- Gery, M. W.**, Witten, G. Z., Killus, J. P., Dodge, M. C.: A photochemical kinetics mechanism for urban and regional scale computer modeling. *J. Geophys. Res.*, 94(D10), 12925-12956, 1989.
- Ghan, S.J.**, Guzman, G., Abdul-Razzak, H.: Competition between sea salt and sulphate particles as cloud condensation nuclei. *J. Atmos. Sci.*, 55, 3340–3347, 1998.
- Gillani, N.**, Schwartz, S.E., Leaitch, W.R., Strapp J.W., Isaac G.A.: Field observations in continental stratiform clouds: partitioning of cloud droplets between droplets and unactivated interstitial aerosols. *J. Geophys. Res. Atmos.*, 100, 18687–18706, 1995.
- Givati, A.**, Rosenfeld, D.: Separation between cloud-seeding and air-pollution effects. *Journal of Applied Meteorology* 44, 1298e1314, 2005.
- Grell, G.**, Knoche, R., Peckham, S. and McKeen, S.: Online versus offline air quality modeling on cloud-resolving scales. Gong, S.L., L.A. Barrie, J.-P. Blanchet and L. Spacek, 1998: Modeling size-distributed sea salt aerosols in the atmosphere: An application using Canadian climate models. In: *Air Pollution Modeling and Its Applications XII*, S.-E. Gryning and N. Chaumerliac (eds), Plenum Press, New York. issn: 0094-8276, 2004.
- Grell, G. A.**, Emeis, S., Stockwell, W. R., Schoenemeyer, T., Forkel, R., Michalakes, J., Knoche, R., and Seidl, W.: Application of a multiscale, coupled MM5/chemistry model to the complex terrain of the VOTALP valley campaign, *Atmos. Environ.* 34, 1435–1453, 2000.
- Grell, G. A.**, Peckham, S. E., Schmitz, R., McKeen, S. A., Frost, G., Skamarock, W. C., and Eder, B.: Fully coupled "online" chemistry within the WRF model, *Atmos. Environ.*, 39, 6957–6975, 2005.
- Griffin R. J.**, Dabdub, D., Seinfeld, J. H.: Secondary organic aerosol, 1, Atmospheric chemical mechanism for production of molecular constituents, *J. Geophys. Res.*, 107(D17), 4332, doi:10.1029/2001JD000541, 2002.
- Grini A.**, Tulet, P., Gomes, L.: Dusty weather forecasts using the MesoNH mesoscale atmospheric model, *J. Geophys. Res.*, 111, D19205, 2006.
- Gross, A.**, Baklanov, A.: *International Journal of Environment and Pollution*, 22-1/2, 51-71, 2004a.

- Gross, A., Baklanov, A.:** Modelling the influence of dimethyl sulphide on the aerosol production in the marine boundary layer, *Int. J. Environ. Pollut.*, 22, 51–71, 2004.
- Gross A., Baklanov A.:** Modelling the influence of dimethyl sulphid on the aerosol production in the marine boundary layer, *International Journal of Environment and Pollution*. 22, 51-71, 2004.
- Gross, A., Stockwell W. R.:** Comparison of the EMEP, RADM₂ and RACM Mechanisms; *Journal of Atmospheric Chemistry*. Volume 44, Number 2 , 151-170, 2003.
- Gong, S.L., Barrie, L.A., Blanchet, J.-P., Salzen, K.V., Lohmann U., Lesins, G., Spacek, L., Zhang, L.M., Girard, E., Lin, H., Leaitch R., Leighton, H., Chylek, P., Huang, P.:** CAM: A Size Segregated Simulation of Atmospheric Aerosol Processes for Climate and Air Quality Models 1. Module Development, *J. Geophys. Res.*, 2002.
- Gong S. L., Barrie L. A., Blanchet J.-P., Salzen K., Lohmann U., Lesins G., Spacek L., Zhang L. M., Girard E., Lin H., Leaitch R., Leighton H., Chylek P., Huang P.:** Canadian Aerosol Module: A size-segregated simulation of atmospheric aerosol processes for climate and air quality models 1. Module development, *J. of Geo. Res.*, VOL. 108, NO. D1, 4007, doi:10.1029/2001JD002002, 2003.
- Han, Q, Rossow, W.B., Chou, J., Welch, R.M.:** Global variation of column droplet concentration in low-level clouds, *Geophys. Res. Lett.*, 25, 1419-1422, 1998a.
- Han, Q., Rossow, W.B., Chou, J., Welch, R.M.:** Global survey Aerosols, their Direct and Indirect Effects 339 of the relationships of cloud albedo and liquid water path with droplet size using ISCCP. *J. Climate*, 11, 1516–1528, 1998b.
- Hansen, J., Sato, M., Ruedy, R.:** Radiative Forcing and Climate Response, *J. Geophys. Res.*, 102, 6831–6864, 1997.
- Hansson, H.-C., Rood, M.J., Koloutsou-vakakis, S., Hameri, K., Orsini, D., Wiedensohler, A.:** NaCl aerosol particle hygroscopicity dependence on mixing with organic compounds. *J. Atmos. Chem.*, 31, 321–346, 1998.
- Haywood, J.M., Roberts D.L., Slingo A., Edwards J.M., Shine K.P.:** General circulation model calculations of the direct radiative forcing by anthropogenic sulphate and fossil-fuel soot aerosol. *J.Clim.*, 10, 1562-1577, 1997a.
- Haywood, J., and Boucher, O.:** Estimates of the Direct and Indirect Radiative Forcing Due to Tropospheric Aerosols: A Review. *Rev. Geophys.* 38, 513-543, 2000.
- Hong, S.-Y, Dudhia J.:** Testing of a new non-local boundary layer vertical diffusion scheme in numerical weather prediction applications, 20th Conference on Weather Analysis and Forecasting/16th Conference on Numerical Weather Prediction, Seattle, WA, 2003.
- Hongbin, Y., Liu, S. C., Dickinson, R. E.:** Radiative effects of aerosols on the evolution of the atmospheric boundary layer. *J. Geophys. Res.*, 107 (D12), 4142, doi: 10.1029/2001JD000754, 2002.
- Hunt, B. G.:** Experiments with a stratospheric general circulation model III. Large-scale diffusion of ozone including photochemistry, *Mon. Weather Rev.*, 97(4), 287–306, 1969.
- IPCC:** Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Working Group I: the physical science basis of climate change. Summary for Policymakers, 2007.
- Jacob, D.:** Introduction to Atmospheric Chemistry (1st Edition ed.). Princeton University Press. pp. 75–85, 1999.
- Jacobson, M. Z.:** Developing, coupling, and applying a gas, aerosol, transport, and radiation model to study urban and regional air pollution, Ph. D. Thesis, Department of Atmospheric Sciences, University of California, Los Angeles, 436 pp., 1994.
- Jacobson, M.Z.:** Global direct radiative forcing due to multicomponent anthropogenic and natural aerosols. *J. Geophys. Res.*, in press. Jacobson, M. Z.: Control of fossil-fuel particulate black carbon plus organic matter, possibly the most effective method of slowing global warming, *J. Geophys. Res.*, 107(D19), 441, 2002.

- Jacobson, M. Z.:** The climate response of fossil-fuel and biofuel soot, accounting for soot's feedback to snow and sea ice albedo and emissivity, *J. Geophys. Res.*, 109, D21201, 2004b.
- Jacobson, M. Z.:** Effects of absorption by soot inclusions within clouds and precipitation on global climate, *J. Phys. Chem.*, 110, 6860–6873, 2006a.
- Jacobson, M. Z., Kaufmann, Y. J., Rudich, Y.:** Examining feedbacks of aerosols to urban climate with a model that treats 3-D clouds with aerosol inclusions, *J. Geophys. Res.*, 112, D24205, 2007a.
- Jöckel, P., Tost, H., Pozzer, A.:** The atmospheric chemistry general circulation model CHAM5/MESSy1: consistent simulation of ozone from the surface to the mesosphere, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 5067–5104, 2006.
- Jones, A., Roberts, D. L., Slingo, A.:** A Climate Model Study of Indirect Radiative Forcing by Anthropogenic Sulphate Aerosols, *Nature*, 370, 450–453, 1994.
- Jorba, O., Dabdub, D., Blaszcak-Boxe, C., Pérez, C., Janjic, Z., Baldasano, JM, Spada, M, Badia, A, Gonçalves, M:** Potential significance of photoexcited NO₂ on global air quality with the NMMB/BSC chemical transport model. *Journal of Geophysical Research* 117, 1-16, 2012.
- Kain, J. S., J.M. Fritsch:** A one-dimensional entraining/detraining plume model and its application in convective parameterization. *J. Atmos. Sci.*, 47, 2784-2802, 1990.
- Kiehl, J. T., Briegleb, B. P.:** The Relative Roles of Sulfate Aerosols and Greenhouse Gases in Climate Forcing, *Science*, 260, 5106, 311–314, 1993.
- Kim, J.:** Regional atmospheric emissions determined from measurements at Jeju Island, Korea: Halogenated compounds from China, *Geophys. Res. Lett.*, 37(12), L12801, 2010.
- Kogan, Z. N., Kogan Y. L., Lilly D. K.:** Cloud factor and seasonality of the indirect effect of anthropogenic sulfate aerosols, *J. Geophys. Res.*, 102, 25,927– 25,939, 1997.
- Korsholm U.:** Integrated modeling of aerosol indirect effects – development and application of a chemical weather model, PhD thesis University of Copenhagen, Niels Bohr Institute and Danish Meteorological Institute, Research department, 2009.
- Korsholm U.S., Baklanov A., Gross A., Mahura A., Sass B.H., Kaas E.,:** Online coupled chemical weather forecasting based on HIRLAM – overview and prospective of Enviro-HIRLAM. *HIRLAM Newsletter*, 54: 1-17, 2008.
- Korsholm, U. S., Baklanov, A., Gross, A., and Sørensen, J. H.:** On the importance of the meteorological coupling interval in dispersion modeling during ETEX-1, *Atmos. Environ.*, 43(31), 4805–4810, 2009.
- Kreiss, H. O., Olinger, J.:** Comparison of accurate methods for integration of hyperbolic equation, *Tellus*, XXIV, 199–215, 1972.
- Kuang, Z., Yung, Y.L.:** Reflectivity variations off the Peru coast: Evidence for indirect effect of anthropogenic sulphate aerosols on clouds. *Geophys. Res. Lett.*, 16, 2501-2504, 2000.
- Langmann, B.:** Numerical modelling of regional scale transport and photochemistry directly together with meteorological processes, *Atmos. Environ.* 34, 3585–3598, 2000.
- Lattuati M.:** Impact des émissions Europeennes sur le bilan de l’ozone troposphérique a l’interface de l’Europe et de l’Atlantique Nord: apport de la modélisation Lagrangienne et des mesures en altitude. These de Doctorat, Université Paris 6, 1997.
- Lee S.S., Penner, J.E.:** Aerosol effects on ice clouds: can the traditional concept of aerosol indirect effects be applied to aerosol-cloud interactions in cirrus clouds? Department of Atmospheric, Oceanic, and Space Sciences, University of Michigan, Ann Arbor, MI, USA. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 10, 10429–10462, 2010.

- van Leer, B.: Towards the ultimate conservative difference scheme, II. Monotonicity and conservation combined in a second-order scheme, *J. Comput. Phys.*, **14**, 361–370, 1974.
- van Leer, B.: Towards the ultimate conservative difference scheme, IV. A new approach to numerical convection, *J. Comput. Phys.*, **23**, 276–299, 1977.
- Leriche M., Pinty, J.P., Mari, C., Gazen, D.: A new cloud chemistry module for the mesoscale meteorological Meso-NH model, in preparation for ACP, 2012.
- Liao, H., Adams, P. J., Chung, S. H., Seinfeld, J. H., Mickley, L. J., and Jacob, D. J.: Interactions between tropospheric chemistry and aerosols in a unified general circulation model, *J. Geophys. Res.*, **108**(D1), 4001, 2003.
- Lioussé, C., Penner, J. E., Chuang, C., Walton, J. J., Eddleman, H., Cachier, H.: A global three-dimensional model study of carbonaceous aerosols, *J. Geophys. Res.*, **101**, 19,411 – 19,432, 1996.
- Mapes, B. E.: Equilibrium versus activation control of large-scale variations of tropical deep convection, in: *The Physics and Parameterization of Moist Atmospheric Convection*, NATO ASI Series, Vol. 505, edited by: Smith, R. K., Kluwer Academic Publishers, Amsterdam, The Netherlands, 321–358, 1997.
- Mathur, R., Xiu, A., Coats, C., Alapaty, K., Shankar, U., and Hanna, A.: Development of an Air Quality Modeling System with Integrated Meteorology, Chemistry, and Emissions, *Proc. Measurement of Toxic and Related Air Pollutants*, AWMA, Cary, NC, September, 1998.
- Mickley, L. J., Murti, P. P., Jacob, D. J., Logan, J. A., Koch, D. M., and Rind, D.: Radiative forcing from tropospheric ozone calculated with a unified chemistry-climate model, *J. Geophys. Res.*, **104**(D23), 30 153–30 172, 1999.
- Mlawer, E. J., Clough S. A.: On the extension of RRTM to the shortwave region. In *Proceedings of the Sixth Atmospheric Measurement (ARM) Science Team Meeting*, CONF-9603149, pp. 223-226, 1997.
- Pedersen, L. B. and Prahm, L. P.: A method for numerical solution of the advection equation, *Tellus*, **XXVI**, 594–602, 1974.
- Physick W. L., Garratt J. R.: Incorporation of a High-Roughness Lower Boundary into a Mesoscale Model for Studies of Dry Deposition over Complex Terrain. *Boundary-Layer Meteorology* **74**(1-2): 55-71, 1995.
- Pierce T., Geron C., Pouliot G., Kinnee E., Vukovich J.: Integration of the Biogenic Emission Inventory System (BEIS3) into the Community Multiscale Air Quality Modeling System, Preprints, 12th Joint Conf. on the Apps. of Air Pollut. Meteor. with the A&WMA, Amer. Meteor. Soc., Norfolk, VA, 20-24 May 2002, J85-J86, 2002.
- Pitari, G., Palmeri, S., Visconti, G., and Prinn, R. G.: Ozone Response to a CO₂ Doubling: Results From a stratospheric circulation model with heterogeneous chemistry, *J. Geophys.*, 1992.
- Righi M., Aquila V., Hendricks J., Eyring V., Lauer A., Lohmann U., Riemer N., Vogel H.: The global aerosol-climate model ECHAM5/MESy1-MADE(soot) AEROCOM workshop, Princeton, USA, 2009.
- Rivera-Carpio, C.A., Corrigan, C.E., Novakov, T., Penner, J.E., Rogers, C.F., Chow, J.C.: Derivation of contributions of sulphate and carbonaceous aerosols to cloud condensation nuclei from mass size distributions. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **101**, 19483–19493, 1996.
- Rosenfeld, D.: TRMM observed first direct evidence of smoke from forest fires inhibiting rainfall. *Geophys. Res. Lett.*, **26**, 3105- 3108, 1999.
- Rosenfeld, D.: Suppression of rain and snow by urban and industrial air pollution. *Science*. **287**, 1793-1796, 2000.
- Rosenfeld, Daniel, Amir Givati, 2006: Evidence of Orographic Precipitation Suppression by Air Pollution–Induced Aerosols in the Western United States. *J. Appl. Meteor. Climatol.*, **45**, 893–911.

- Rosenfeld, D.**, Woodley, W.L., Axisa, D., Freud, E., Hudson, J.G., Givati, A.: Aircraft measurements of the impacts of pollution aerosols on clouds and precipitation over the Sierra Nevada, *J. Applied Meteor.*, Volume 45, 2008a.
- Rosenfeld, D.**, Lohmann, U., Raga, G.B., O'Dowd, C.D., Kulmala, M., Fuzzi, S., Reissell, A., Andreae, M.O.: Flood or drought: how do aerosols affect precipitation? *Science* 321, 1309e1313, 2008b.
- Russell, G. L.**, Lerner, J. A.: A new finite-differencing scheme for the tracer transport equation, *J. Appl. Meteorol.*, 20, 1483-1498, 1981.
- Saxena, P.**, Hildemann L.M., McMurry P.H., Seinfeld J.H.: Organics alter hygroscopic behavior of atmospheric particles. *J. Geophys. Res. Atmos.*, 100, 18755-18770, 1995.
- Saxena, P.**, Hildemann, L.M.: Water soluble organics in atmospheric particles: A critical review of the literature and application of thermodynamics to identify candidate compounds. *J. Atmos. Chem.*, 24, 57-109, 1996.
- Schlesinger, M. E.**, Mintz, Y.: Numerical simulation of ozone production, transport and distribution with a global atmospheric general circulation model, *J. Atmos. Sci.*, 36, 1325-1361, 1979.
- Spracklen, D.**: A global off-line model of size-resolved aerosol microphysics: I. Model development and prediction of aerosol properties, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 2227-2252, 2005a.
- Spracklen, D.**: A global off-line model of size-resolved aerosol microphysics: II. Identification of key uncertainties, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 3233-3250, 2005b
- Steele, H.D.**: Investigations of Cloud Altering Effects of Atmospheric Aerosols using a New Mixed Eulerian-Lagrangian Aerosol Model, Center for Global Change Science Department of Earth, Atmospheric and Planetarysciences, Report no 7, 2004.
- Steil B.**, Brühl C., Manzini E., Crutzen P.J., Lelieveld J., Rasch P.J., Roeckner E., Krueger K., A new interactive chemistry-climate model. 1. Present day climatology and interannual variability of the middle atmosphere using the model and 9 years of HALOE/UARS data., *J. Geophys. Res.*, 108, 10.1029/2002JD002971, 2003.
- Stevenson D. S.**, Doherty, R. M., Sanderson, M. G., Collins, W. J., Johnson, C. E., and Derwent, R. G., Radiative forcing from aircraft NO_x emissions: Mechanisms and seasonal dependence, *J. Geophys. Res.*, 109, D17307, doi:10.1029/2004JD004759, 2004.
- Taghavi, M.**, Cautenet, S., Foret, G.: Simulation of ozone production in a complex circulation region using nested grids, *Atmo. Chem. Phys.*, 4, 825-838, 2004.
- Taylor, K. E.**, Penner, J. E.: Response of the climate system to atmospheric aerosols and greenhouse gases, *Nature*, 369, 734-737, 1994.
- Tegen, I.**, Lacis, A.A.: Modelling of particle size distribution and its influence on the radiative properties of mineral dust aerosol. *J. Geophys. Res. Atmos.*, 101, 19237-19244, 1996.
- Trukenmüller, A.**, Grawe D., Schlünzen, K.H.: A model system for the assessment of ambient air quality conforming to EC directives. *Meteorol. Zeitschrift* 13, 5, 387-394, 2004.
- Tsuang, B.J.**: Quantification on the source/receptor relationship of primary pollutants and secondary aerosols by a Gaussian plume trajectory model: Part I-theory. *Atmospheric Environment* 37, 3981-3991, 2003.
- Tulet P.**, Crassier V., Cousin F., Suhre K., Rosset R.: ORILAM, a three-moment lognormal aerosol scheme for mesoscale atmospheric model: Online coupling into the Meso-NH-C model and validation on the Escompte campaign, *J. Geophys. Res.*, 110, D18201, doi:10.1029/2004JD005716, 2005.
- Vignati E.**, Wilson J., Stier P., M7: An efficient size-resolved aerosol microphysics module for large-scale aerosol transport models, *J. Geophys. Res.* 109, D22202, doi: 10.1029/2003JD004485, 2004.

- Wetzel, M., Stowe, L.L.:** Satellite-observed patterns in the relationship of aerosol optical thickness to stratus cloud microphysics and shortwave radiative forcing. *J. Geophys. Res. Atmos.* 104, 31,287-31,299, 1999.
- Wilck M.F., Stratmann F.:** A 2-D multicomponent aerosol model and its application to laminar flow reactors, *J. Aerosol Sci.*, 28, 959-972, 1997.
- Wild, O., Zhu, X., and Prather, M. J.:** Fast-J: Accurate Simulation of In- and Below-Cloud Photolysis in Tropospheric Chemical Models, *J. Atmos. Chem.*, 37, 245–282, 2000.
- Wolf, M.E., Hidy G.M.:** Aerosols and climate: Anthropogenic emissions and trends for 50 years. *J. Geophys. Res. Atmos.*, 102,11113–11121, 1997.
- Zaveri R.A., Peters L.K.:** A new lumped structure photochemical mechanism for large-scale applications, *J. Geophys. Res.*, vol.104, D23,30,387-30,415, 1999.
- Zhang, Y.:** Online-coupled meteorology and chemistry models: history, current status, and outlook, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 2895-2932, 2008
- Zhang, Y., Carmichael, G.R.:** The role of mineral aerosol in tropospheric chemistry in east Asia - A model study. *Jrn. Appl. Meteorology*, 38, 353-366, 1999.
- Zhang, Y., Wen, X.-Y., Skamarock, W. C., Grell, G. A., Peckham, S. E., Ghan, S. J., and Easter, R. C.:** Some Preliminary Results from the Development of Global WRF/Chem, oral presented the 10th Conference on Atmospheric Chemistry, New Orleans, Louisiana, 20-24 January, 2008b.
- Zhang, Y., Wen, X.-Y., Jang, C.J.:** Simulating Chemistry-Aerosol-Cloud-Radiation-Climate Feedbacks over the Continental U.S. using the Online-Coupled Weather Research Forecasting Model with Chemistry (WRF/Chem), *Atmospheric Environment* 44, 2010.
- Zhang, Y., Wen, X.-Y., Hu, X.-M., Jang, C. J.:** Simulating the Effect of Aerosols on Regional Climate Using WRF/Chem, oral presentation at the 10th Conference on Atmospheric Chemistry, New Orleans, Louisiana, 20–24 January, 2010b.