

Trafikkens bidrag til fine og ultrafine partikler i gader

Finn Palmgren Jensen
Peter Wåhlin

Miljøstyrelsen vil, når lejligheden gives, offentliggøre rapporter og indlæg vedrørende forsknings- og udviklingsprojekter inden for miljøsektoren, finansieret af Miljøstyrelsens undersøgelsesbevilling.

Det skal bemærkes, at en sådan offentliggørelse ikke nødvendigvis betyder, at det pågældende indlæg giver udtryk for Miljøstyrelsens synspunkter.

Offentliggørelsen betyder imidlertid, at Miljøstyrelsen finder, at indholdet udgør et væsentligt indlæg i debatten omkring den danske miljøpolitik.



Indhold

Resumé.....	4
Baggrund.....	6
Formål.....	6
Måleudstyr.....	6
Målingerne.....	7
Måleresultaterne.....	7
Indledende analyse af måleresultaterne	9
Bestemmelse af NO _x /CO-forholdet for den benzindrevne trafik på Albanigade.....	11
Videregående analyse af måleresultaterne	12
Resultatet af undersøgelsen	14
Konklusion og det videre arbejde.....	19
Referencer	20

Resumé

Formålet med den foreliggende undersøgelse er at bestemme størelsesfordelingen og koncentrationen af luftens partikelindhold i København og i Odense, specielt den del af partiklerne, som emitteres fra benzin- og dieselkøretøjer.

En specialbygget DMA (Differential Mobility Analyser), der er blevet stillet til rådighed for Danmarks Miljøundersøgelser af det fælleseuropæiske forskningscenter JRC i Italien, blev brugt til at bestemme partikelkoncentrationer (antal pr. kubikcentimeter) i størelsesintervallet 6 - 700 nm. Udstyret blev opstillet i DMU's LMP-målestationer i København og Odense. Her foretages rutinemæssig måling af gasserne NO_x ($\text{NO} + \text{NO}_2$) og CO, som ligeledes emitteres fra trafikken. Målingerne af NO_x og CO er vigtige for fortolkningen af partikelmålingerne. Samtidige målinger af partikler, NO_x og CO foreligger fra 1999 i perioderne 19. januar – 8 marts på Jagtvej i København, 8. marts – 20 april på H.C. Ørsted Instituttet og 3.-20. maj på Albanigade i Odense.

Den tidsmæssige variation af CO-, NO_x - og partikelkoncentrationerne er vist i Figur 1, og den gennemsnitlige størelsesfordeling af partiklerne kan ses på Figur 2. De ultrafine partikler ses i Figur 2 som en klokkeformet fordeling til venstre i spektret, mens de fine partikler viser sig som en hale til højre.

CO-, NO_x - og partikelkoncentrationerne (Figur 1) viser en høj grad af korrelation mellem de tre størrelser, idet en væsentlig del af variationerne har fælles årsager, dels trafikens døg- og ugerytme, dels den meteorologiske indflydelse (i hovedsagen vindens fortyndende virkning). Der er imidlertid ikke fuldstændig korrelation, idet CO især afviger noget fra de to andre målte størrelser. Årsagen er, som en korrelationsanalyse viser, at de to store trafikklidder, benzindrevne biler og dieselkøretøjer, hver bidrager med sin karakteristiske emissionsprofil (det relative forhold mellem emissionerne af CO, NO_x og partikler). Disse forskellige profiler giver sig til kende, fordi der er forskel på de to trafik kategoriers døg- og ugerytme.

Det er ikke muligt at bestemme de to emissionsprofiler alene på grundlag af CO-, NO_x - og partikelmålingerne, idet dette yderligere kræver, at NO_x/CO -forholdet for hver af de to emissionstyper er kendt. Da benzin- og dieselkøretøjerne altid optræder blandet i trafikken, kan NO_x/CO -forholdene ikke bestemmes direkte, men man kan udnytte den systematiske forskel på de to kategoriers trafikmønstre på døg- og ugebasis. Dette er blevet kvantificeret ved en omhyggelig trafiktælling, der blev foretaget af Odense Kommunes miljø og teknikforvaltning i hverdage den 19.-21. maj 1999 (Figur 4). Ved en regressionsanalyse kan NO_x - og CO-værdierne modelleres som bidrag fra hver af de to trafik kategorier.

Selve modelleringen af målingerne ud fra kildeprofilerne foretages med en receptormodel (COPREM), hvori man kan indlægge matematiske bånd, i dette tilfælde benyttes de kendte NO_x/CO -emissionsforhold for trafikklidderne. Analysen med COPREM kan imidlertid raffineres ved at udnytte den ekstra informationen, der ligger i partikelspektrene, udtrykt ved rækken af enkeltværdier, idet der viser sig at være en systematisk forskel på størelsesfordelingerne af partikler fra henholdsvis benzintrafik og fra dieseltrafik. Den udvidede analyse viser, at en forbedret modeltilpasning kan opnås, når der medtages en tredje ikke-trafik relateret kilde i analysen. Denne kilde bidrager ikke til NO_x og CO, og kun lidt til den totale partikelkoncentration, men den optræder med et signifikant bidrag af partikler i den højre hale af partikelspektret. Størelsesfordelingen tyder på at det er langtransporterede partikler fra Europa, der er omdannet og forøget i størrelse ved kemiske og fysiske processer i atmosfæren. Det er typisk partikler med et stort indhold af ammoniumsulfat og ammoniumnitrat, der dannes ved oxidation af svovldioxid og NO_x og ved reaktion med ammoniak.

Undersøgelsens centrale resultat er bestemmelsen af kildeprofilerne, normeret som enkeltkildernes bidrag til gennemsnitskoncentrationerne i Albanigade (Tabel 3) og på Jagtvej (Tabel 4) i løbet af måleperioderne. Enkeltkildernes bidrag til partiklerne i løbet af en gennemsnitsuge er vist i Figur 11 og Figur 12. Talresultaterne viser, at dieselkøretøjernes emissioner af partikler dominerer over bilernes emissioner på Albanigade, hvorimod bidragene fra benzin- og dieselkøretøjer er sammenlignelige på Jagtvej. De benzindrevne biler dominerer begge steder i antal, men emissionen fra den enkelte bil er så lille, at det samlede bidrag spiller en mindre rolle for forureningen med partikler. På Jagtvej er der meget få dieselbiler – bl.a. kun en buslinie, der kører på gas. Når der (skønsmæssigt) omregnes fra partikelantal til partikelmasse

(beregnet som partikelrumfang), bliver forskellen mellem de to trafik kategoriers bidrag mindre markant, fordi dieselkilden udsender relativt mange ultrafine partikler, hvis masse er forsvindende sammenlignet med de fine partiklers masse. Massen af de relativt få men store, partikler fra ikke-trafik kilden få ved omregningen en langt større indflydelse, men trafik kilderne dominerer stadigvæk efter omregningen. De skønnede masser er mindre, men ikke meget mindre, end dem der bestemmes ved TSP-målinger (Total Suspended Particulates). Ved TSP-målingerne medtages også den grove partikelfraktion, af hvilken kun den venstre hale registreres i DMA'ens måleområde.

Måling af emissionen af ultrafine partikler fra bilers motorer i laboratoriet ved dynamometertest er i gang eller er planlagt til gennemførelse indenfor kort tid. Disse målinger skal anvendes til sammenligning med udeluftmålinger for at undersøge graden af overensstemmelse mellem disse partikelspektre.

Inden monteringen af filtre på kommunens køretøjer i Odense skal foretage en ny serie målinger på en centralt beliggende indkøbsgade, som er uden gennemkørende trafik, og hvor kommunale busser dominerer trafikken. Målingerne vil endvidere blive gentaget i løbet af foråret 2000.

I løbet af 2000 søges gennemført yderligere målinger af partikler på forskellige lokaliteter. Resultaterne tænkes indbygget i DMU luftkvalitetsmodeller for gadeluft og bybaggrundsluft med henblik på anvendelse som planlægningsværktøj, scenarieberegninger og luftforureningsprognoser for ultrafine partikler.

Denne indledende undersøgelse har demonstreret, at målemetoden (DMA) er velegnet til bestemmelse af størrelsesfordelingen af ultrafine partikler. Den tilhørende dataanalyse har vist sig velegnet til at adskille og kvantificere bidraget til forureningen med ultrafine partikler fra benzin- og dieseldrevne biler, samt den ikke-trafikrelaterede andel. Partikelforureningen målt med denne metode giver det samlede bidrag fra trafikken, d.v.s. både de direkte emitterede partikler fra bilerne motorer og bidrag fra bremses, dæk, vejbelægning m.v., altså ikke kun den del, der vil blive målt ved dynamometertest. Undersøgelsen har endvidere vist, at partikelfordelingen ikke er den samme i gadeluft som i bybaggrundsluft, hvilket antyder, at der sker en omdannelse af partikler indenfor byskalaen.

Baggrund

Partikler er et af de væsentligste luftforureningsproblemer i byområder på grund af partiklernes negative indvirkning på menneskers helbred og er samtidigt et forskningsområde med stor mangel på viden. Eksperimentelle studier af partikler, specielt de ultrafine partikler, har derfor stor interesse både med henblik på etablering af viden om emissionen af partiklerne, deres spredning og omdannelse og partiklernes helbredsmæssige effekter, samt for vurdering og styring af luftkvalitet. Det er velkendt, at eksponering med luftforurening kan forårsage alvorlige helbredsskader i en befolkning. I Danmark og en stor del af det øvrige Vesteuropa udsættes befolkningen primært for høje luftforureningsniveauer i forbindelse med ophold og færden i byområderne, hvor de høje forureningsniveauer især er et resultat af udslip fra den lokale trafik. Trafikkens bidrag til luftforureningen har stor betydning såvel i befolkningen som politisk.

Partikelstørrelsen er afgørende for, hvor i luftvejene den afsættes. Den grove partikelfraktion (for en stor del jordstøv) fra 2,5 μm og opover, afsættes i de øvre luftveje. Fine partikler mellem 0,2 og 2,5 μm afsættes dybere i vore luftveje. Disse partikler er dannet ved fysiske og kemiske processer efter lang tids ophold i atmosfæren (fx sulfatpartikler dannet ud fra svovldioxidudslip op til 1000 km eller mere fra et receptorpunkt). De ultrafine partikler afsættes bl.a. i de dybeste lungeafsnit. Ultrafine partikler dannes ved forbrændingsprocesser fx i benzin- og dieselmotorer, og de har typisk en kort levetid i atmosfæren (få timer). Under længere transport vokser de ultrafine partikler ved kemiske reaktioner, ved optag af vanddamp og forskellige gasser eller de koagulerer med andre partikler i atmosfæren.

Studiet af fine og ultrafine partikler i trafikerede gader er et nyt forskningsfelt. Baggrunden er, at de meget små partikler fra trafikken formodes at have skadevirkninger, som set i forhold til deres masse er meget alvorligere end de forholdsvis store partikler, som spiller en dominerende rolle ved traditionel gravimetrisk registrering (PM₁₀ og TSP). Derfor er nærværende indledende projekt iværksat med støtte fra Miljøstyrelsen og Færdselsstyrelsen.

Formål

Formålet med projektet er, at anvende Differential Mobility Analyser (DMA) til undersøgelse af forekomst og omdannelse af ultrafine partikler og på længere sigt at inkludere dette i luftkvalitetsmodeller.

Dette indledende projekt vil derfor omfatte

- måling af størrelsesfordelingen af ultrafine partikler fra trafikken i bygader og i bybaggrund med en tidsopløsning svarende til variationerne i trafikken,
- undersøgelse af ændringer i størrelsesfordelinger af ultrafine partikler i byluft,
- estimering af emissionen for forskellige partikelstørrelser fra den aktuelle bilpark opdelt i lette (benzindrevne) og tunge (dieseldrevne) køretøjer ved receptormodellering, samt ved "invers" luftkvalitets-modelberegning baseret på partikelmålinger, trafikmålinger og meteorologiske data, og
- måling af emissionen fra forskellige køretøjstyper i laboratoriet.

Den foreliggende undersøgelse omfatter måling af størrelsesfordeling og koncentration på Jagtvej (gadestation) og H.C. Ørstedsinstitutet (bybaggrundsstation) i København og Albanigade (gadestation). Sidstnævnte del af undersøgelsen er endnu ikke færdiggjort, idet målingerne p.t. foregår.

Måleudstyr

En specialbygget DMA (Differential Mobility Analyser) af Hauke-typen (Winklmayr et al., 1991), som anvender et recirkulerende flowarrangement (Jokinen and Mäkelä, 1997) i forbindelse med en TSI partikel-tæller model 3010, blev brugt til at bestemme partikelkoncentrationer i 29

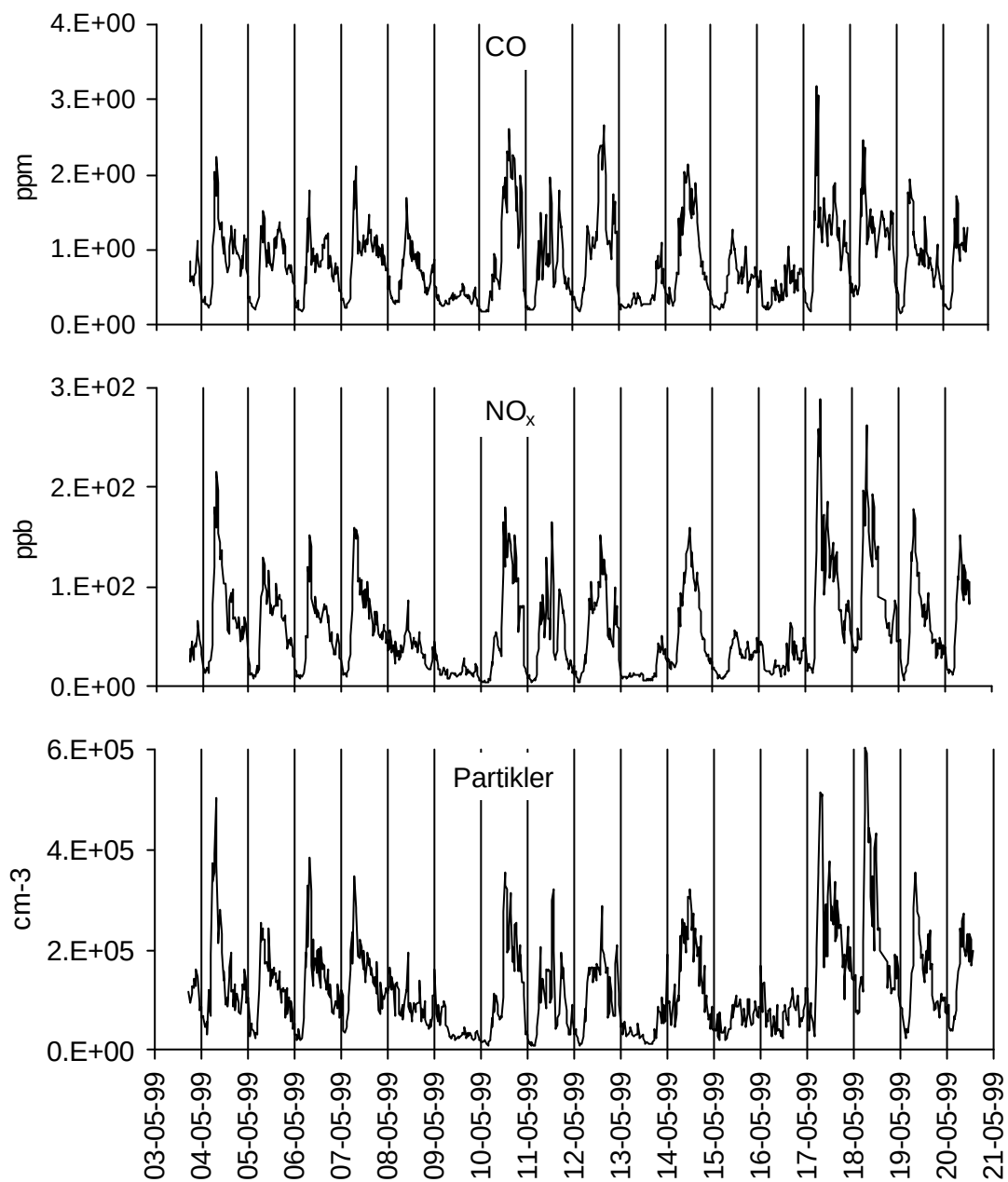
mobilitetskanaler svarende til partikeldiametre i intervallet 6 - 700 nm. Den enkelte kanal udvælges ved hjælp af en regulerbar 12 kV spændingskilde. Afsøgningen over hele størelsesintervallet varer i alt 3 minutter og styres af en PC. I tilknytning hertil foretager PC'en en omregning af det elektriske mobilitetsspektrum til et størelsspektrum på et teoretisk grundlag ud fra en multipel ladningsparametrisering (Wiedensohler, 1988). Der foretages ingen korrektion for partikeladlerens effektivitet, der er tæt på 100% i hele måleområdet ned til en partikeldiameter på ca. 15 nm. Derunder falder effektiviteten gradvist. Udstyret og PC-programmet blev venligst stillet til rådighed af det fælles europæiske forskningscenter JRC (Rita van Dingenen, European Commission Environment Institute, Ispra, Italien).

Målingerne

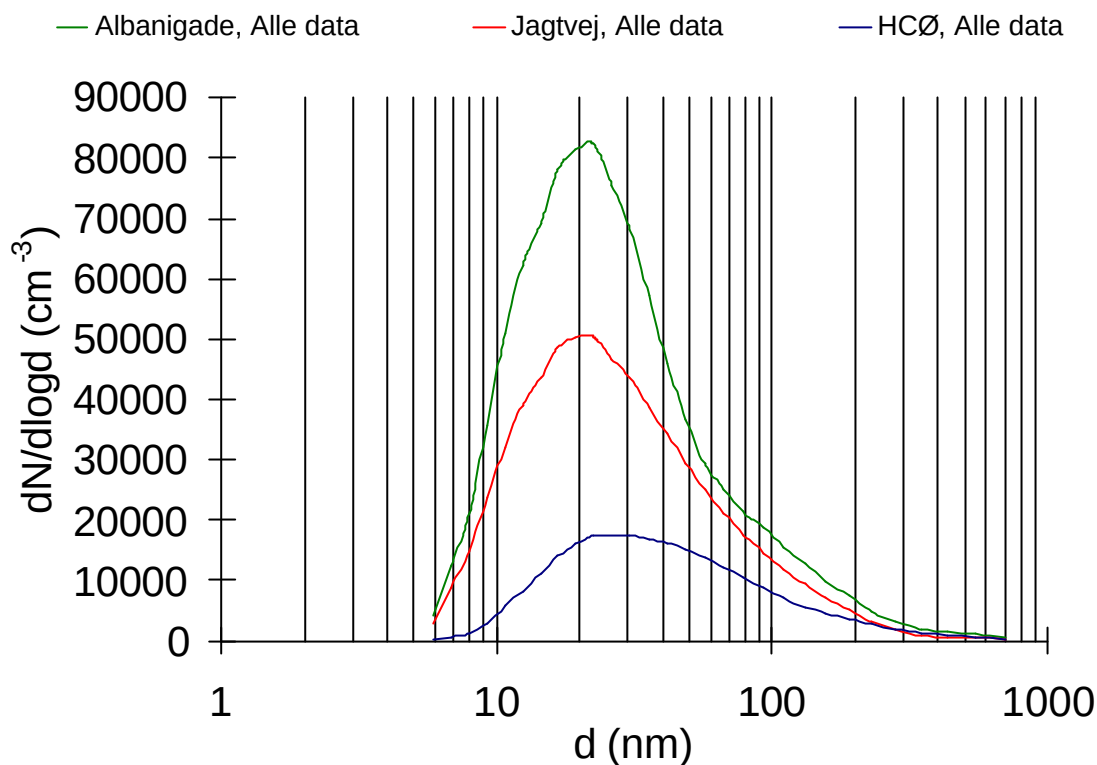
Udstyret blev anvendt i tre af DMU's LMP-målestationer i første halvår af 1999, på Jagtvej i København i perioden 19. januar - 8. marts, på H.C. Ørsted Institutets tag (bybaggrund) i perioden 8. marts - 20. april, og på Albanigade i Odense i perioden 28. april - 20. maj. Der blev samtidigt foretaget rutinemæssige halvtimes målinger af NO_x (NO+NO₂) og CO på målestationerne. Disse målinger er vigtige for fortolkningen af partikelmålingerne. På grund af den nødvendige udskiftning af en NO_x-monitor foreligger der dog først sammenhørende NO_x- og CO-data for Albanigade fra den 3. maj 1999 og fremefter. Partikelmålingerne (en måling hvert 3. minut) blev foretaget kontinuert med få afbrydelser i hele perioden. Den 18.-20. maj blev der med bistand fra Odense kommune foretaget en detaljeret trafiktælling på Albanigade.

Måleresultaterne

De enkelte partikelspektres facon er stærkt påvirkede af variationer i partikkelkoncentrationen, som forekommer under selve den 3 minutter lange afsøgning. Årsagen til disse variationer er dels, at den partikelemitterende trafik består af enkeltkilder, der passerer forbi i et uregelmæssigt mønster, dels at luften i gaden er i kaotisk bevægelse. De tilfældige variationer udjævnes i nogen grad ved en indledende omregning til halvtimes middelværdier (af ca. 10 spektre) svarende til de samtidigt målte halvtimes middelværdier af NO_x og CO. Det totale antal partikler beregnes ved integration af partikelspektrene. Den tidsmæssige variation af CO-, NO_x- og totalpartikkelkoncentrationerne i Albanigade er som eksempel vist i Figur 1. Det fremgår umiddelbart, at der er en meget stor lighed mellem graferne for NO_x og for partikler (på næsten noget mere 'støjt' for partiklernes vedkommende). CO, som især emitteres af benzindrevne biler, har et forløb, der afviger noget fra de to andre. Dette afspejler forskelle i trafikmønstret for benzindrevne og dieseldrevne køretøjer (se næste afsnit). De gennemsnitlige størelsesfordelinger af partiklerne er vist i Figur 2. De ultrafine partikler ses som en klokkeformet fordeling til venstre i spektret, mens de større partikler (den fine modus) viser sig som en hale til højre. Den ultrafine modus er særligt dominerende i spektret fra Albanigade, mens den er svagest i bybaggrundsspektret fra H.C. Ørsted Institutet. De enkelte partikelfordelingers facon (halvtimesmiddelværdierne) afviger i reglen noget fra middelfordelingens facon, dels på grund af de ovenfor omtalte variationer ('støj'), dels fordi der, som det påvises ved analysen i næste afsnit, er forskelle på partikelfordelingerne fra henholdsvis benzindrevne og dieseldrevne køretøjer. De ultrafine partikler forsvinder hurtigt, idet de ved diffusion afsættes på større partikler (koagulation), hvilket kan forklare fraværet af de allermindste partikler i bybaggrundsspektret.



Figur 1. Halvtimesmiddelmålinger af CO, NO_x og partikler målt på Albanigade i Odense i perioden 3.-20. maj 1999.



Figur 2. De gennemsnitlige partikelkoncentrationer (pr. dekade af partikeldiameteren) som funktion af partikeldiameteren.

Indledende analyse af måleresultaterne

Med Albanigade som eksempel er de beregnede korrelationskoefficienter mellem CO -, NO_x - og partikler (N) vist i Tabel 1. Det fremgår, at der er en meget høj grad af korrelation, især mellem NO_x og partikler. Tilsvarende forhold findes for Jagtvej, mens korrelationerne er dåligere for bybaggrundsmålingerne.

Tabel 1. Korrelationsmatricen for CO , NO_x og N (partikler) for Albanigade.

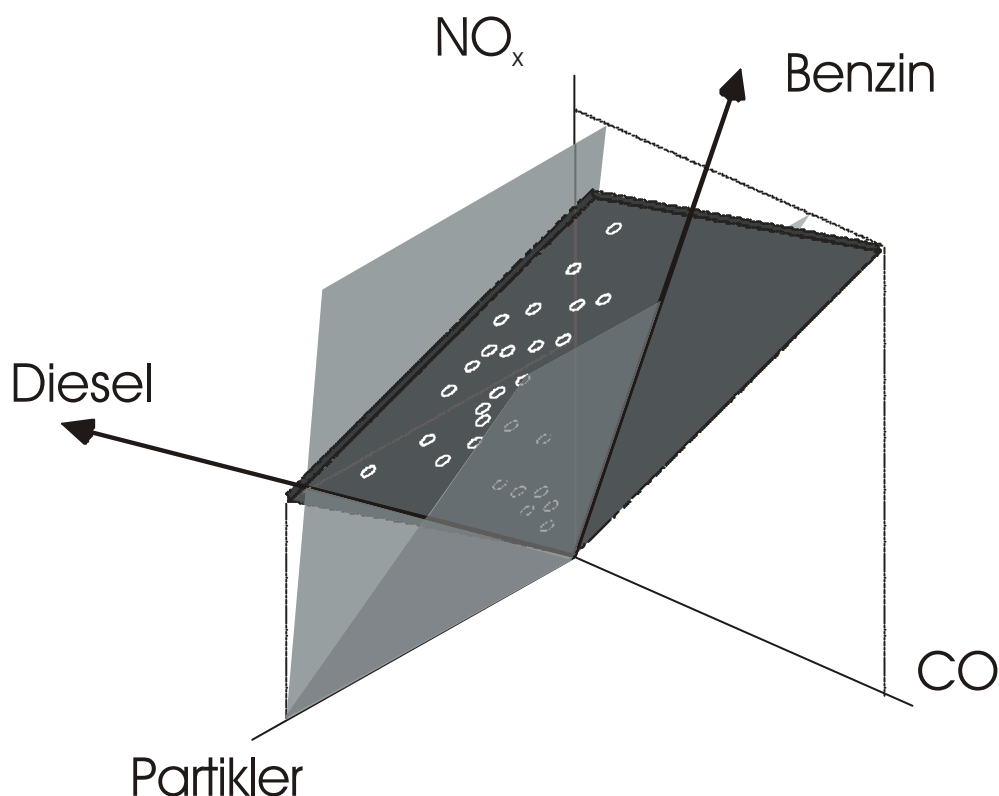
	CO	NO_x	N
CO	1.00	0.91	0.84
NO_x	0.91	1.00	0.94
N	0.84	0.94	1.00

Ved diagonalisering af korrelationsmatricen i Tabel 1 fås matricen i Tabel 2. Diagonaliseringen svarer til en drejning af akserne i målerummet, således at der af de 3 oprindelige variable dannes linearkombinationer, som varierer uafhængigt af hinanden.

Tabel 2. Den diagonaliserede korrelationsmatrix

	1	2	3
1	2.80	0.00	0.00
2	0.00	0.16	0.00
3	0.00	0.00	0.04

Ved betragtning af diagonalelementerne ses, at stort set hele variationen ($2.96/3.00 = 98.7\%$) i det 3-dimensionale målerum findes i et 2-dimensionalt underum. Dette betyder, at netop 2 kildetyper bidrager til næsten hele variationen i måledata. Da det er et velkendt faktum, at den benzindrevne og den dieseldrevne trafik er de vigtigste kilder til CO og NO_x i gaden, samt at der på grund af en basal forskel i brændstof- og forbrændingstype er stor forskel på NO_x/CO -emissionsforholdet for benzin- og dieselmotorer, kan det konkluderes, at det netop er disse to trafiktyper, som gør sig gældende med hver sin karakteristiske og næsten konstante emissionsprofil. Dette er illustreret skematisk i Figur 3, hvor emissionsprofilerne er angivet som to vektorer. Målepunkterne spredt i et vifteformet område i det mørkefarvede plan (det 2-dimensionale underum), der indeholder de to vektorer. Den vifteformede spredning påtværs skyldes først og fremmest forskellene i de to trafik kategoriers relative intensitet i løbet af døgnet og uge. Spredningen skyldes ikke usikkerhed i målingerne, da dette ville sprede punkterne tilfældigt i rummet og ikke i et plan.



Figur 3. Skematisk 3-dimensionel fremstilling af måledata i målerummet (sammenhørende CO -, NO_x - og partikelkoncentrationer). Målepunkterne befinder sig med god tilnærmelse i et plan (det mørke område), som derfor må indeholde emissionsprofilerne for de to dominerende kilder, benzin- og dieseltrafik. Det er desuden vist på figuren, at det principielt er muligt at bestemme profilerne ud fra måledata, hvis NO_x/CO -forholdet er kendt for de to kildetyper (profilerne bestemmes som skæningslinierne mellem de to lysere farvede planer og det mørke plan).

Det er ikke muligt at bestemme de to emissionsprofiler alene på grundlag af målepunkternes beliggenhed i rummet, fordi to vektorer, som skal udspænde et givet plan, matematisk kan bestemmes på uendeligt mange forskellige måder. Man kan dog ud fra en fysisk betragtning fastslå at de to emissionsvektorer nødvendigvis må ligge i den positive rumlige oktant på en sådan måde, at samtlige målepunkterne ligger i sektoren imellem de to vektorer (som vist i Figur 3). Det

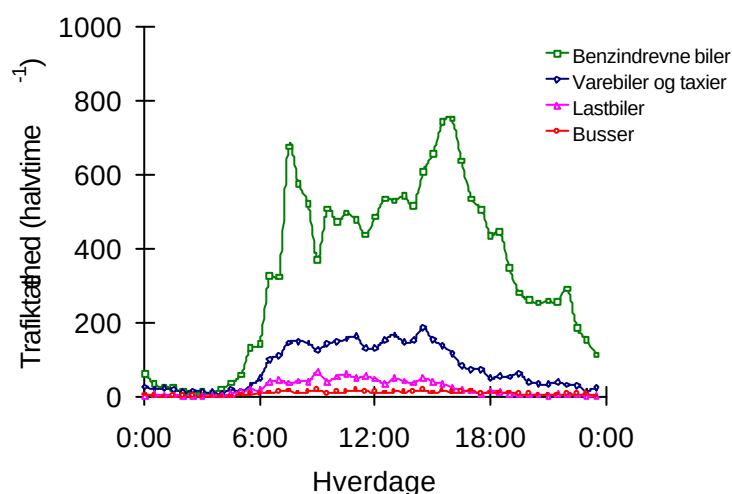
er imidlertid, som antydnet i form af skæringslinier med de to lyse planer i Figur 3, muligt at bestemme profilerne mere præcist, hvis NO_x/CO -forholdet for hver af de to emissionstyper er kendt. Referenceværdier for NO_x/CO -forholdet fra andre undersøgelser kan kun bruges med tilnærmelse, idet de faktiske værdier afhænger af de i praksis forekommende køretøjs vægt, alder, motorstørrelse, katalysator, hastighed, acceleration, tomgangskørsel, etc. Det er dog kendt, at CO -emissionen fra dieselkøretøjer er meget lille, således at NO_x/CO -forholdet for diesel i Figur 3 afbildes som et næsten lodret plan. Derfor er bestemmelsen af partikelkomponenten i emissionsprofilen for diesel temmelig uafhængig af ubestemtheden i NO_x/CO -forholdet for diesel. Derimod er bestemmelsen af benzinsprofilens partikelkomponent ret følsom for ubestemtheden i det meget lavere NO_x/CO -forhold for benzinkøretøjer.

At korrelationerne for målingerne på H.C. Ørsted Institutets tag er dårligere, skyldes bl.a., at andre faktorer end trafikken (især langtransporterede partikler) spiller en større rolle i bybaggrunden.

Bestemmelse af NO_x/CO -forholdet for den benzindrevne trafik på Albanigade

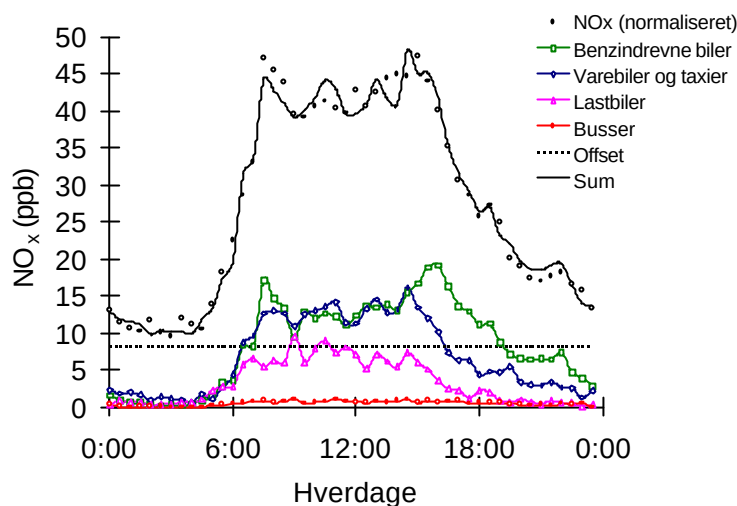
Det var et sægt mål for undersøgelse på Albanigade at bestemme dieselkøretøjernes bidrag til de målte partikelkoncentrationer. Med henblik på dette er det nødvendigt at kende emissionsprofilerne for både benzin- og dieseltrafikken, ellers er det ikke muligt at redegøre for benzintrafikens bidrag til partikelforureningen, som andre steder kan være anseelig. Resultaterne fra Jagtvej i København tyder på (se senere), at de benzindrevne biler i denne gade i gennemsnit forurener lige så meget med partikler som dieselkøretøjerne. Som forklaret i det foregående afsnit er det imidlertid nødvendigt at kende NO_x/CO -emissionsforholdet for den benzindrevne trafik temmelig nøjagtigt for at kunne beregne benzinkøretøjernes emissionsprofil. Emissionsforholdet afhænger som nævnt i nogen grad af trafikens karakter og af køretøjernes art, og kan principielt kun bestemmes ved målinger af NO_x og CO fra den aktuelle trafik i selve gaden.

For at kunne bestemme NO_x/CO -forholdet for hver af de to køretøjskategorier er det nødvendigt at bestemme bidragene fra dem hver for sig. Da benzin- og dieselkøretøjerne altid optræder blandet i trafikken, kan forholdet ikke bestemmes direkte, men man kan i forbindelse med en matematisk analyse udnytte, at der er en vis systematisk forskel på de to kategoriers trafikmønstre på døgn- og ugebasis. Det er således typisk på hverdage, at den benzindrevne trafik har et udpræget myldretidsmønster, og at der er en del kørsel om aftenen, mens det meste af dieseltrafikken er mere konstant frem til midt på eftermiddagen, og typisk begynder at falde omkring eftermiddagsmyldretiden. Dette kan ses på Figur 4, der viser resultatet af en trafiktælling, der blev foretaget af Odense Kommunes miljø og teknikforvaltning i hverdagene den 19.-21. maj 1999.

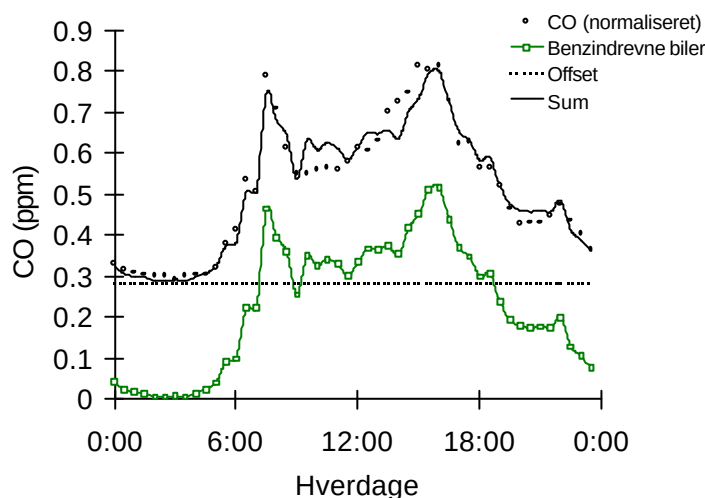


Figur 4. Trafiktætheden (antal passerende køretøjer pr. halvtime) i løbet af en hverdag på Albanigade fordelt på forskellige kategorier. Målt i perioden 19.-21. maj 1999.

I Figur 5 og Figur 6 er vist, hvorledes NO_x- og CO-målinger på Albanigade (målt på hverdage i perioden januar-marts 1999, samt midlet og normeret til standard vindretning og -hastighed) ved en regressionsanalyse kan modelleres som summen af bidrag fra de forskellige trafik kategorier. Herved bestemmes et NO_x/CO-emissionsforhold på 0.036 mol/mol for den benzindrevne trafik på Albanigade. CO-emissionen fra dieseltrafikken er for lille til, at den bidrager signifikant i analysen, men man kan som en tommelfingerregel regne med, at NO_x/CO-emissionsforholdet for dieseltrafik er ca. 1 mol/mol. Dette tal vil blive brugt i den videre analyse, idet den præcise værdi, som nævnt i forrige afsnit, ikke spiller en væsentlig rolle.



Figur 5. Variationen af NO_x (normaliseret til standard vindretning og -hastighed) i løbet af hverdage, modelleret ved regressionsanalyse som summen af bidrag fra forskellige køretøjskategorier.



Figur 6. Variationen af CO (hverdage, normaliseret) modelleret ved regressionsanalyse. Kun benzintrafik giver et signifikant bidrag.

Videregående analyse af måleresultaterne

At måleresultaterne samler sig i et 2-dimensionalt under rum i det 3-dimensionale målerum betyder, at måleresultaterne (x_{ij}) kan modelleres lineært ved hjælp af modellen

$$x_{ij} \equiv x_{i0} + \sum_k a_{ik} f_{kj},$$

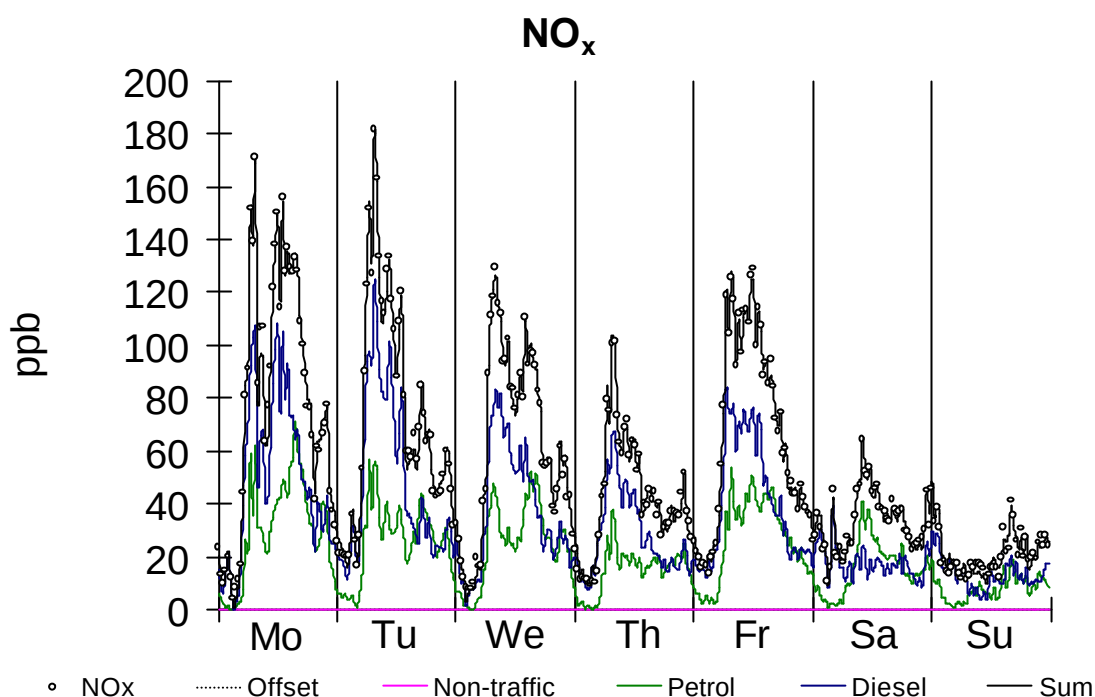
hvor i refererer til det målte stof (her henholdsvis NO_x, CO og partikler), j til prøvetidspunktet, og k til kilderne (her benzintrafik og dieseltrafik). De konstante koefficienter a_{ik} er

emissionsprofilerne, og faktorerne f_{kj} er den varierende styrke, hvormed de optræder på forskellige tidspunkter. Modellen opererer endvidere med konstante offset-værdier (x_{i0}). Selve modelleringen foretages med COPREM (Constrained Physical Receptor Model, ref. Wain, 1993), der kun tillader fysisk mulige løsninger (positive, som vist i Figur 3), og hvori man kan indlægge matematiske bånd (constraints), i dette tilfælde benyttes de kendte NO_x/CO-emissionsforhold for de to trafikklærder.

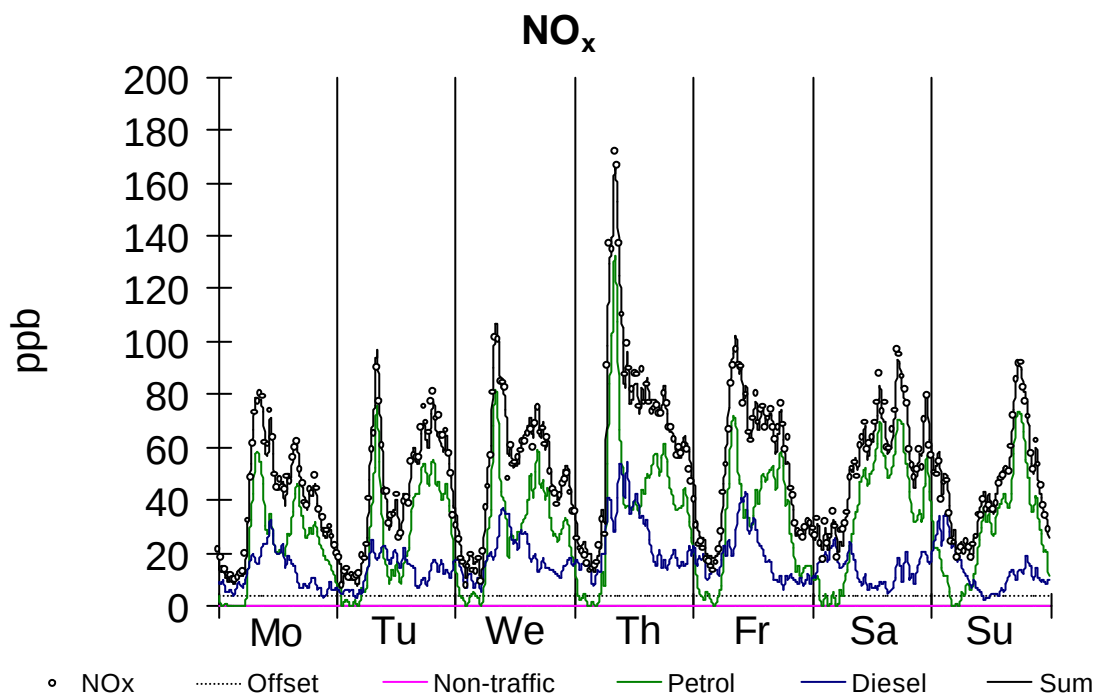
Analysen med COPREM kan imidlertid raffineres ved at udnytte den ekstra information, der ligger i den varierende form af partikelspektrene, udtrykt ved de 29 dn/dlogd-værdier i hvert spektrum. Herved vokser antallet af variable fra 3 til 32, og det viser sig herefter, at en forbedret modeltilpasning opnås, når der medtages en tredje ikke-trafik relateret kilde i analysen. Denne kilde bidrager ikke til NO_x og CO, og kun meget lidt til den totale partikelkoncentration, men den optræder med et signifikant bidrag i den høje hale af partikelspektret (svarende til relativt store partikler, få antal, men med en ikke ubetydelig masse). For at formindske den tilfældige støj i partikelspektrene, og for at fokusere på trafikens døgn- og ugevariation, er der beregnet middelværdier over identiske ugedage, således at det er variationen i løbet af en gennemsnitsuge, der indgår i analysen ($7 \cdot 24 \cdot 2 = 336$ halvtimesmiddelværdier for hver variabel).

Resultatet af undersøgelsen

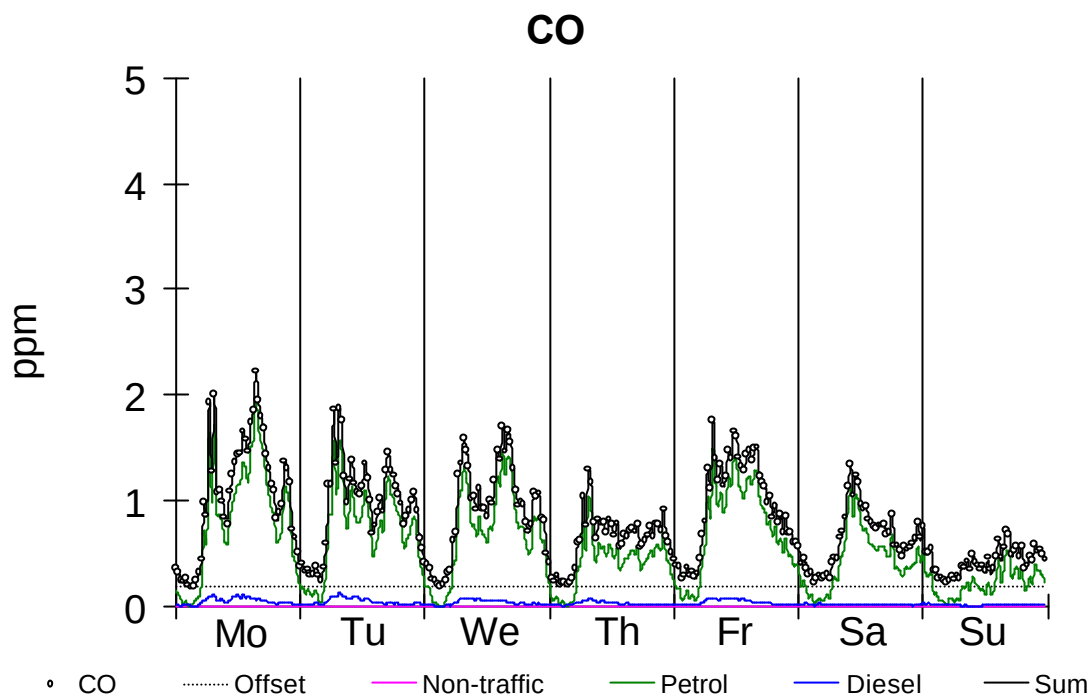
Resultatet af analysen for Albanigade, hvad angår de tre kilders bidrag til NO_x , CO- og partikkelkoncentrationerne, kan ses grafisk i Figur 7, Figur 9 og Figur 11.



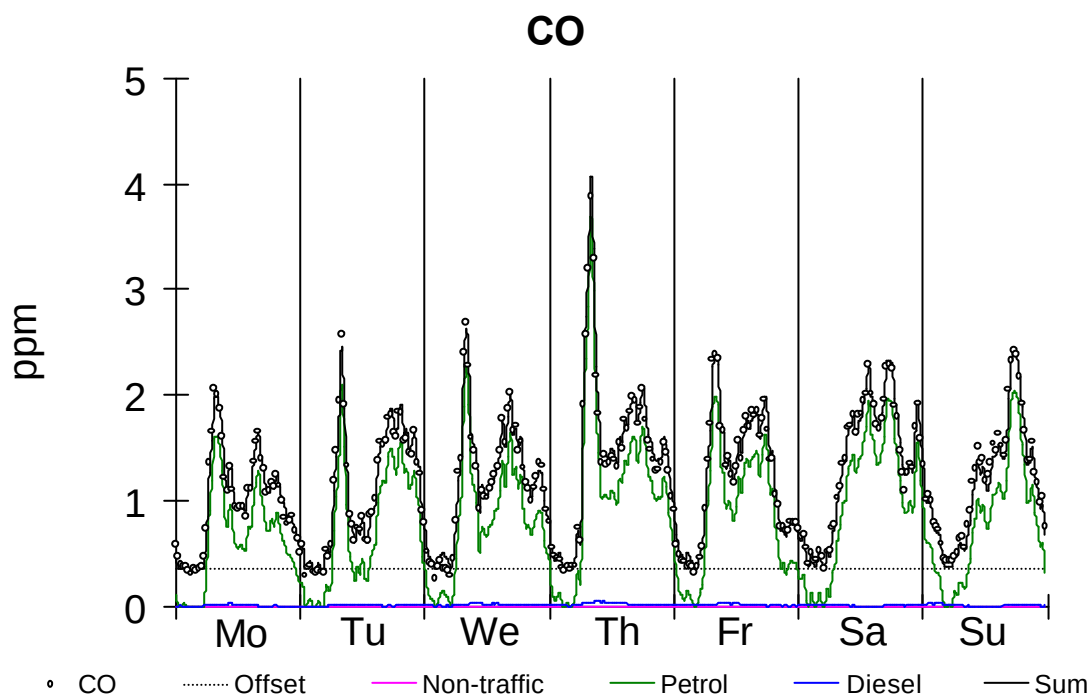
Figur 7. Gennemsnitsværdier af NO_x -koncentrationen i Albanigade over identiske ugedage modelleret med summen af bidrag fra de to trafikskilder. Forskellene på enkelte hverdage skyldes især forskellige meteorologiske forhold, men også at Kristi himmelfartsdag (torsdag den 13. Maj 1999) indgår i måleserien (se Figur 2).



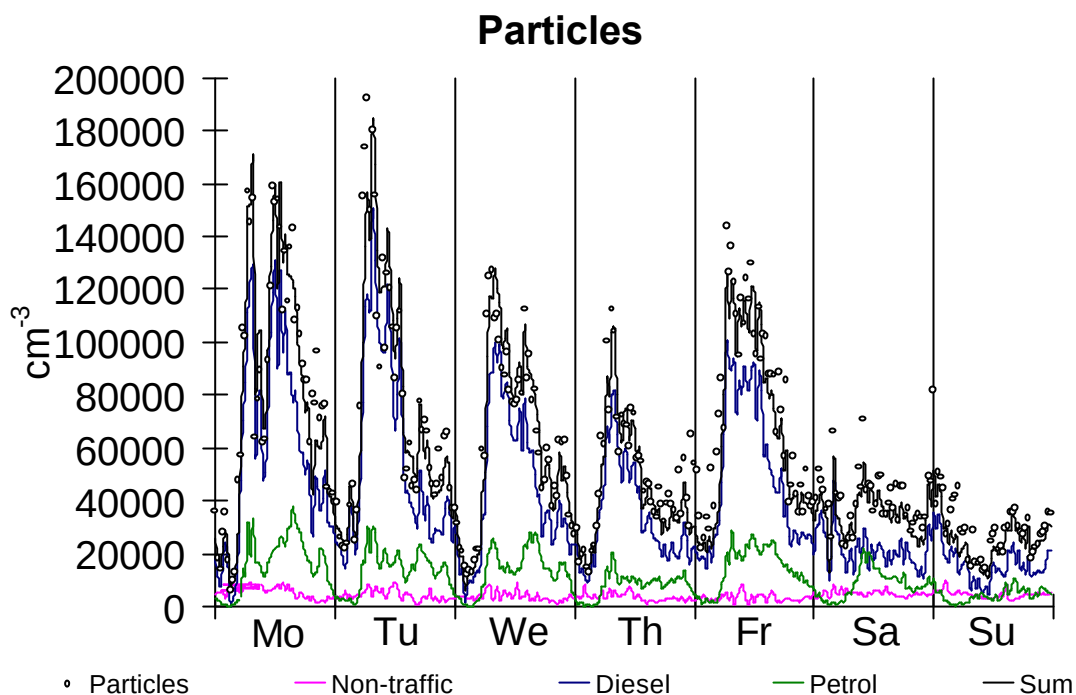
Figur 8. Gennemsnitsværdier af NO_x -koncentrationen på landevej over identiske ugedage modelleret med summen af bidrag fra de to trafikskilder.



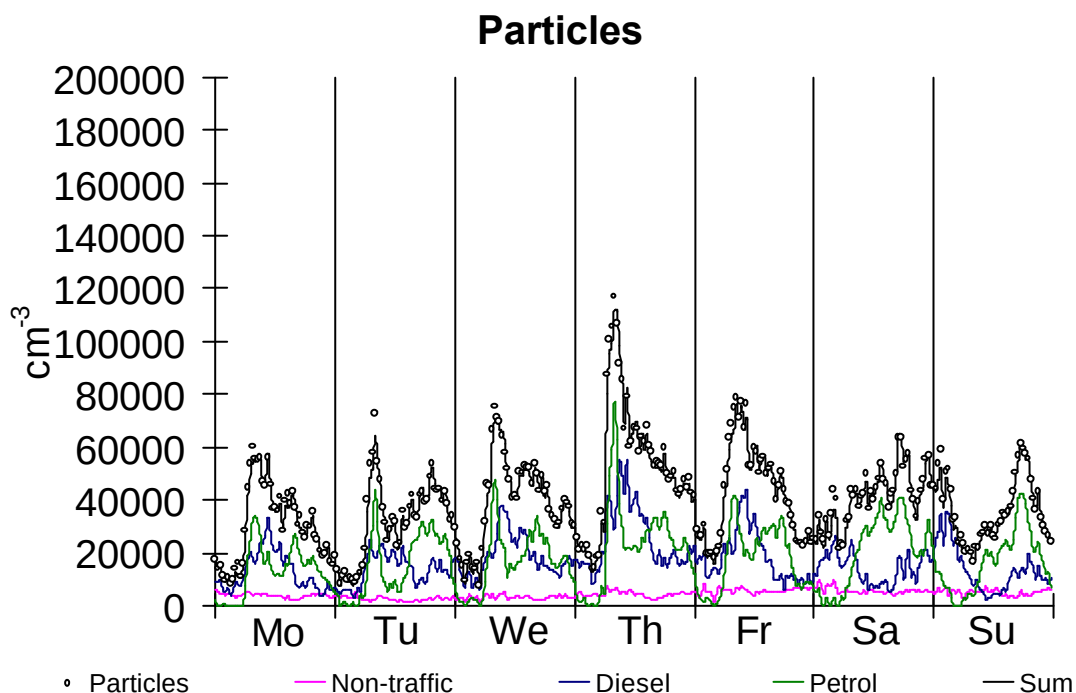
Figur 9. Gennemsnitsværdier af CO-koncentrationen i Albanigade over identiske ugedage modelleret med summen af bidrag fra de to trafikklider.



Figur 10. Gennemsnitsværdier af CO-koncentrationen på agtvej over identiske ugedage modelleret med summen af bidrag fra de to trafikklider.



Figur 11. Gennemsnitsværdier af partikelkoncentrationen i Albanigade over identiske ugedage modelleret med summen af bidrag fra de to trafikklær samt et lille bidrag fra den ikke-trafik relaterede kilde.



Figur 12. Gennemsnitsværdier af partikelkoncentrationen og de beregnede bidrag fra kilderne på Jagtvej i København i perioden 19. januar - 8. Marts 1999.

Af Figur 11 og af de beregnede kildeprofiler i Tabel 3 ses, at dieselskøretøjenes emissioner af partikler dominerer over benzinbilernes emissioner i Albanigade. Benzinbilerne dominerer i antal, men emissionen fra den enkelte bil er så lille, at det samlede bidrag kun spiller en mindre rolle for forureningen med partikler.

Som tidligere nævnt, forholder det sig ikke sådan, at dieselpartiklerne dominerer overalt i danske byer. De beregninger, der i det ovenstående er beskrevet for Albanigade, er ligeledes blevet foretaget for Jagtvej. Beregningen kræver kendskab til NO_x/CO -emissionsforholdet for de benzindrevne køretøjer, men da dette ikke er blevet målt på Jagtvej, er værdien fra Albanigade blev brugt. Der ligger en principielt problem i dette, fordi NO_x/CO -emissionsforholdet ikke er en konstant. Især CO -emissionen er stærkt afhængig af køremønstret (hastighed, acceleration) og bilypen (alder). Trafikforholdene på Jagtvej og Albanigade, hvad angår hastighed og acceleration, ligner imidlertid hinanden meget, og sammensætningen og alderen af personbilerne er næppe særligt forskellige de to steder, så det anvendte forhold er formodentligt tæt på det korrekte. Resultatet af beregningerne for Jagtvej er vist i Figur 8, Figur 10 og Figur 12, samt i Tabel 4. Af Tabel 4 ses, at benzin- og dieseltrafikken bidrager med stort set samme mængde partikler. Massemassigt (vurderet ud fra volumen) dominerer benzintrafikken på Jagtvej.

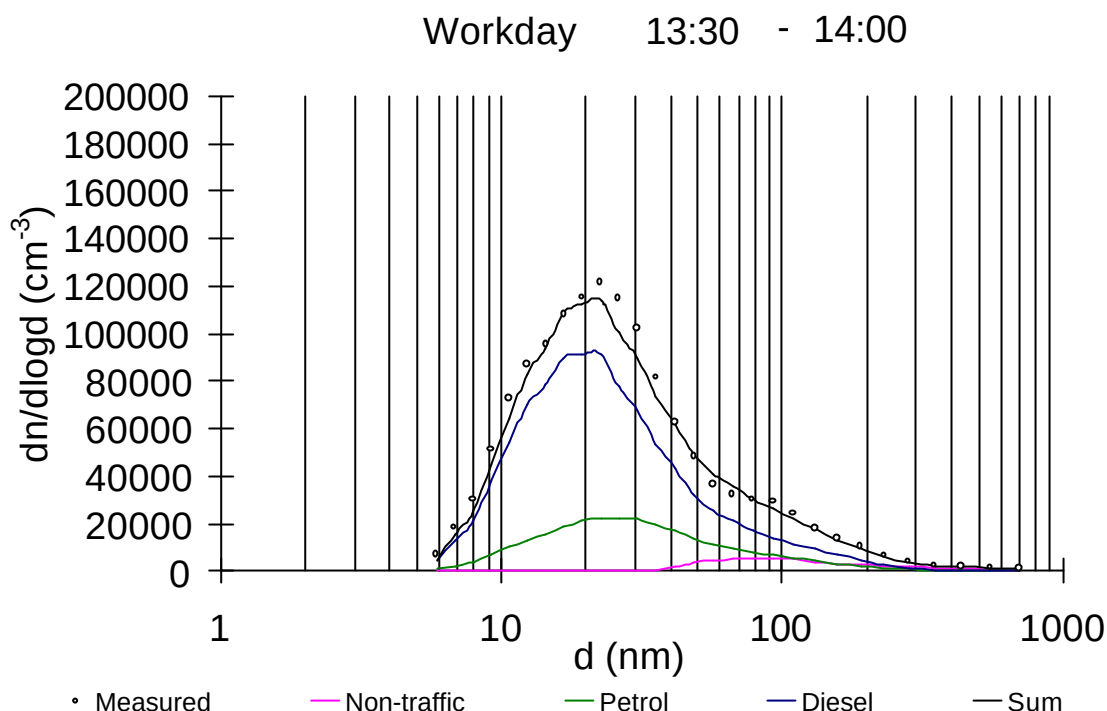
Tabel 3. Profilerne for de tre kilder til CO , NO_x og partikler på Albanigade, normeret som gennemsnitskoncentrationerne ved målestationen i perioden 5. -20. Maj 1999.

	Offset/ baggrund	Ikke-trafik	Benzin	Diesel	Enhed
CO	0.19	0	0.57	0.03	ppm
NO_x	2.3	0	20.7	33.5	ppb
Partikler (antal)	0	4200	11100	40400	cm^{-3}
Partikler (volumen)	0	20	6	17	$\mu\text{m}^3\text{cm}^{-3}$

Tabel 4. Profilerne for de tre kilder til CO , NO_x og partikler på Jagtvej, normeret som gennemsnitskoncentrationerne ved målestationen i perioden 19. januar -8. marts 1999.

	Offset/ baggrund	Ikke-trafik	Benzin	Diesel	Enhed
CO	0.35	0	0.83	0.02	ppm
NO_x	4.1	0	30.0	16.3.5	ppb
Partikler (antal)	0	4400	17400	16700	cm^{-3}
Partikler (volumen)	0	11	8	3	$\mu\text{m}^3\text{cm}^{-3}$

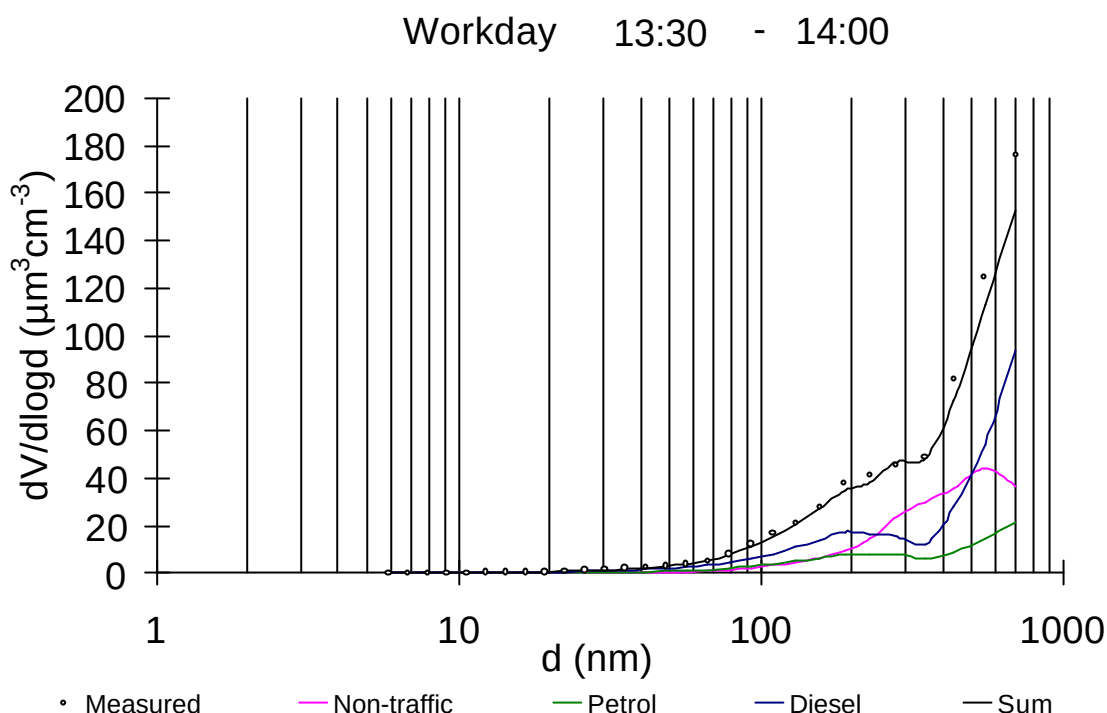
Kildernes partikelstørrelsesfordelinger er vist i Figur 13, hvor et tilfældigt valgt partikelspektrum fra Albanigade ses sammen med det beregnede fit. Det ses, at partiklerne fra dieselkøretøjerne har en lidt mindre middeldiameter end partiklerne fra benzinbilerne. Partiklerne fra den ikke-trafik relaterede kilde har en væsentlig større middeldiameter. Størrelsesfordelingen svarer til, hvad man vil forvente af langtransporterede partikler, der er omdannede og forøgede i størrelse ved kemiske og fysiske processer i atmosfæren, typisk partikler med et stort indhold af ammoniumsulfat og ammoniumnitrat.



Figur 13. Det gennemsnitlige partikelspektrum i Albanigade på hverdage kl. 13.30-14.00 modelleret med bidrag fra de tre kilder med hver sin partikelstørrelsesfordeling.

Partikelkoncentrationerne er målt som antal (pr. kubikcentimeter). Idet det forudsættes, at partiklerne er kugleformede, kan der omregnes til volumenkoncentration ved at multiplicere størrelsesfordelingen med den enkelte partikels rumfang ($\pi/6 \cdot d^3$). Størrelsesfordelingen for rumfanget få et helt andet udseende end størrelsesfordelingen for antallet, idet de forholdsvis få større partikler ($d > 100$ nm) dominerer. De omregnede fordelinger for de tre kilder kan ses i Figur 14, der bortset fra omregningen svarer helt til Figur 13. Kildernes gennemsnitlige bidrag til volumenkoncentrationen i Albanigade er angivet i nederste række i Tabel 3.

Volumenkoncentrationen kan bruges som et (groft) skøn på massekoncentrationen. Enheden ($\mu\text{m}^3\text{cm}^{-3}$) er valgt, fordi talværdierne ikke ændres ved omregning til massekoncentration i $\mu\text{g}/\text{m}^3$, når partiklernes densitet (massefylde) skønsmæssigt sættes til at være $1 \text{ g}/\text{cm}^3$ (vands massefylde). Under denne (groft skønnede) forudsætning bidrog de tre kilder i måleperioden med henholdsvis $19.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (ikke-trafik), $6.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (benzin), $17.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (diesel) til den totale koncentration af svævestøv (TSP). Summen af disse bidrag ($43.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$) er mindre end den gennemsnitlige koncentration af TSP i Albanigade, der i 1997 blev målt til $61 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Dette stemmer med det forventede, idet kun halen af den grove partikelfraktion (de mekanisk dannede partikler) er indeholdt i måleområdet. Det skal understreges, at tallene er problematiske at sammenligne uden et præcist kendskab til partikelmassefylden. Det bør desuden nævnes, at den meget lille partikelkoncentrationen i området 350-700 nm er overvurderet med en ukendt faktor (dog ikke højere end 2). Dette skyldes, at nogle partikler med to eller flere elektronladninger lidt uden for måleområdet ($d > 700$ nm) bliver talt med i de første mobilitetskanaler, hvor de ikke kan skelnes fra partikler med netop én elektronladning. Størrelsesområdet 350-700 nm har så godt som ingen betydning for det samlede antal partikler, men, som det fremgår af Figur 14, ligger en væsentlig (og altså overvurderet) del af det beregnede rumfang helt til højre i fordelingen.



Figur 14. Det gennemsnitlige partikelspektrum i Albanigade på hverdage kl. 13.30-14.00 omregnet fra antal til volumen ved multiplikation med $\pi/6 \cdot d^3$.

Den tydeligste forskel på trafikklidernes partikelstørrelsesfordelinger (pr. antal) ses i den venstre side af spektrene (Figur 13), idet dieselskilden emitterer forholdsvis mange ultrafine partikler. Når antallet omregnes til volumen (Figur 14), er det stort set kun de fine partikler i halerne til højre, der bidrager til voluminet (og hermed til massen). Volumenfordelingerne fra de to kilder ligner i højere grad hinanden, idet de begge har et toppunkt ved ca. 200 nm. De relativt få men store, partikler fra ikke-trafikkilden få ved omregningen til masse en langt større betydning, men trafikklidene bidrager alligevel mest til den samlede masse.

Konklusion og det videre arbejde

Denne indledende undersøgelse har demonstreret, at målemetoden (DMA) er velegnet til bestemmelse af størrelsesfordelingen af ultrafine partikler. Den tilhørende dataanalyse har vist sig velegnet til at adskille og kvantificere bidraget til forureningen med ultrafine partikler fra benzins- og dieseldrevne biler, samt den ikke-trafikkrelaterede andel. Partikelforureningen målt med denne metode giver det samlede bidrag fra trafikken, d.v.s. både de direkte emitterede partikler fra bilerne motorer og bidrag fra bremses, dæk, vejbelægning m.v., altså ikke kun den del, der vil blive målt ved dynamometer test. Undersøgelsen har endvidere vist, at partikelfordelingen ikke er den samme i gadeluft som i bybaggrundsluft, hvilket antyder, at der sker en omdannelse af partikler indenfor byskalaen.

Måling af emissionen af ultrafine partikler fra bilers motorer i laboratoriet ved dynamometertest er i gang eller er planlagt til gennemførelse indenfor kort tid. Disse målinger skal anvendes til sammenligning med udeluftmålinger for at undersøge graden af overensstemmelse mellem disse partikelspektre.

Det var den oprindelige plan, at DMA-målingerne på Albanigade skulle gentages, når monteringen af partikelfiltre på Odense Kommunes dieselskøretøjer er tilendebragt. Der er imidlertid opstået nogen tvivl vedrørende muligheden for overhovedet at kunne registrere en effekt på Albanigade, fordi der på netop denne gade i Odense er megen gennemkørende trafik af ikke-kommunale dieselskøretøjer. Det er derfor besluttet, at der inden monteringen af filtre skal foretages en ny serie målinger på en centralt beliggende indkøbsgade, som er uden gennemkørende trafik, og hvor kommunale busser dominerer trafikken. Der skal til dette formål oprettes en midlertidig målestation, hvor der udover partikler også måles NO_x, CO og ozon. Målingerne er planlagt til at

blive udført november-december 1999. Målingerne vil endvidere blive gentaget i løbet af foråret 2000.

I løbet af 2000 søges gennemført yderligere målinger af partikler på forskellige lokaliteter for herigennem at skaffe den nødvendige viden til at parametrisere emissionen fra forskellige køretøjstyper under forskellige kørsels- og vejrforhold. Emissionsfaktorer for forskellige partikelstørrelser søges bestemt for forskellige køretøjstyper. Endvidere vil der blive lagt vægt på at vurdere omdannelser af partiklerne, specielt ved at måle samtidigt på forskellige lokaliteter. Hertil kræves yderligere måleudstyr. Resultaterne tages indbygget i DMU's luftkvalitetsmodeller for gadeluft og bybaggrundsluft med henblik på anvendelse som planlægningsværktøj og scenarieberegninger og luftforureningsprognoser for ultrafine partikler.

Ovennævnte undersøgelser er endvidere et bidrag til den meget omfattende forskning på partikelområdet, som forventes gennemført i de kommende år. Undersøgelsen tages kombineret med andre typer af partikelstudier, fx kemisk sammensætning af partikler fra trafikken.

Referencer

Jokeren, V. and Mäkelä, J.M. (1997) Closed-loop arrangement with critical orifice for DMA sheath/excess flow system. J. Aerosol Sci. 28, 643-648

Wiedensohler A. (1988) An approximation of the bipolar charge distribution for particles in the submicron size range. J. Aerosol Sci., 19, 387-389

Winklmayr, W., Reischl, G.P., Linde, A.O. and Berner, A. (1991) A new electromobility spectrometer for the measurements of aerosol size distributions in the size range from 1 to 1000 nm. J. Aerosol Sci. 22, 289-296

Wahlén P. (1993) A multivariate receptor model with a physical approach. Proceedings of the Fifth International Symposium on Arctic Air Chemistry, September 8-10, 1992, Copenhagen.