

Kilder til partikler i luften

Seniorforsker Finn Palmgren og forsker Peter Wählin

*Afdeling for Atmosfærisk Miljø, Danmarks Miljøundersøgelser
Frederiksborgvej 399, Dk 4000 Roskilde, Danmark*

Introduktion

Luftforurening er et resultat af emissioner (udledning), spredning i luften med vinden og evt. kemiske og fysiske omdannelser. Det er derfor ikke ligegyldigt, hvor og hvordan forureningerne emitteres. Lave kilder (f.eks. trafik og lokal boligopvarmning) giver anledning til høj lokal luftforurening og i byområder derfor til stor eksponering af befolkningen. Forureningen fra høje punktkilder (f.eks. kraftværker) fortyndes kraftigt, før den når jordoverfladen og giver derfor ikke med de danske regler for godkendelse af punktkilder anledning til væsentlig eksponering af befolkningen. Overalt findes der baggrundsforurening, der kan være transporteret over endog store afstande. Man kan derfor ikke slutte direkte fra emissioner til luftkvalitet. Endelig findes naturlige kilder til partikler i luften, f.eks. jordstøv, salt fra havet og skovbrande.

En tværministeriel gruppe udarbejdede en redegørelse med henblik på at undersøge mulighederne og effekten af at fremme montering af filtre på dieselmotorer (Trafikministeriet, 2003).

I Danmark er iværksat et 4-årigt projekt i Miljøministeriet, udført af DMU 2001-2004. Det forventes, at der bl.a. under dette projekt opnås en større forståelse, end den der er i dag, af sammenhængen mellem disse partikler og helbredsskader. I det følgende er der givet en oversigt over partikelkilder, samt nogle resultater fra dette projekt (Palmgren et al. 2003).

Begreber og definitioner

Partikulær luftforurening er et komplekst luftforureningsproblem, dels fordi partiklerne dannes ved en række forskellige processer under forbrænding, mekaniske påvirkninger eller processer i atmosfæren, og dels fordi partiklerne karakteriseres ved forskellige størrelser og forskellige kemiske og fysiske egenskaber. Partiklerne opdeles typisk efter deres størrelse, jf. *Tabel 1*.

Tabel 1 Definitioner af partikelstørrelser

Betegnelse	Størrelse (diameter) i μm
Nanopartikler	under 0,02
Ultrafine partikler	under 0,1
Fine partikler	under 2,5
Grove partikler	over 2,5

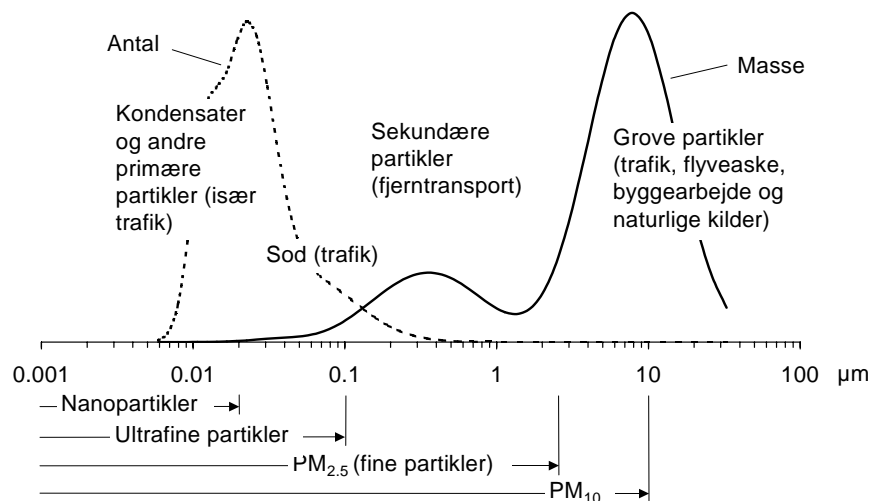
Almindeligvis anvendes begreberne PM_{10} , der er massen af alle partikelstørrelser op til 10 μm , $\text{PM}_{2,5}$, der er massen af alle partikelstørrelser op til 2,5 μm osv. Ofte ses også betegnelsen TSP (Total Suspended Particulates), som omfatter alle partikler under ca. 40 μm . Grove og fine partikler opgøres primært efter vægt, mens især ultrafine partikler opgøres efter deres antal, da de vægtmæssigt udgør forsvindende lidt i forhold til de grovere partikler.

I danske byer er TSP typisk 30-40 pct. større end PM_{10} og PM_{10} typisk dobbelt så stor som $PM_{2.5}$. Det skal dog understreges, at forskellene afhænger meget af stedet, således at forskellene mellem disse størrelseskategorier er små på landet og uden for byernes mest trafikerede områder, hvor baggrundsforureningen er dominerende, men store på gader med stærk og tung trafik. De grove partikler er således mere dominerende i et trafikeret bymiljø, mens de fine partikler dominerer i trafiksvage områder.

De ultrafine partikler og nanopartiklerne, dannes ved høj temperatur, f.eks. i forbrændingsmotorer, kraftværkskedler eller industrielle processer. Disse partikler kan være væskedråber af brændstof eller olie eller faste sodpartikler. Den væsentligste kilde til ultrafine partikler er trafik, især dieselmotorer. De er derfor dominerende i byer med megen trafik. De ultrafine partikler vokser eller fordamper efter en vis tid, afhængigt af deres egenskaber.

De fine partikler er et resultat af en række kemiske/fysiske omdannelser, dvs. de typisk er ældre end de ultrafine partikler. En del af de fine partikler er dannet som følge af koagulation mellem ultrafine partikler indbyrdes eller mellem fine og ultrafine partikler. Denne proces tager en vis tid, som bl.a. betyder, at ultrafine partikler fra biler normalt ikke når at koagulere, mens de findes i gaden, hvor opholdstiden kun er nogle få minutter. De fine partikler kan holde sig svævende i mange døgn og dermed transporteres over adskillige tusinde kilometer. De væsentligste kilder til fine partikler er afbrænding af svovlholdigt brændsel samt alle forbrændingsprocesser, der giver anledning til dannelse af henholdsvis svovldioxid og kvælstofoxider, dvs. især trafik, kraftværker, opvarmning m.v. Disse gasser omdannes til fine partikler under transport fra det Europæiske kontinent til Danmark.

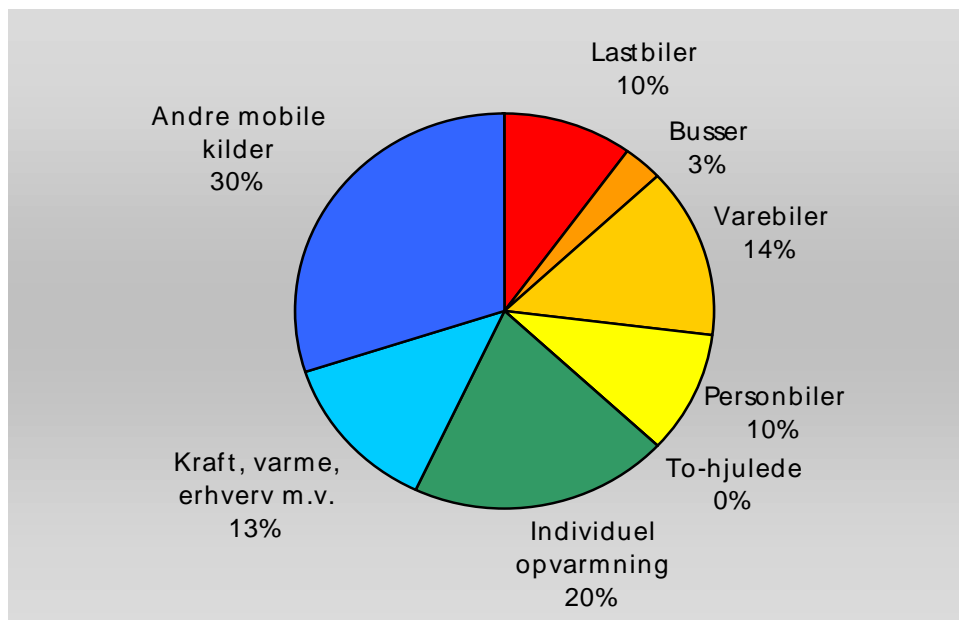
Grove, luftbårne partikler dannes typisk ved forskellige mekaniske processer, f.eks. jord- og vejestøv ophvirvlet af vinden, havsprøjt (som tørrer ud til saltpartikler), vulkaner, vegetation (pollen), dæk- og kørebaneslid, trafikskabt turbulens i gader, byggeri og industrielle aktiviteter. Disse partikler har en væsentlig kortere levetid, idet de pga. deres tyngde kun holder sig svævende i kortere tid og afsættes på overflader. Desuden indgår de kun i begrænset omfang i kemiske/fysiske omdannelser. Skematisk er dette vist på *Figur 1*



Figur 1 Skematisk tegning af størrelsesfordelingen af partikler i byluft. Den vandrette akse er partikeldiameteren i μm . Den fuldt optrukne kurve opgjørt som masse og den stiplede kurve er den samme fordeling af partiklerne opgjørt i antal. Det kan illustreres ved, at en partikel på $10 \mu\text{m}$ vejer lige så meget som 1 milliard partikler på $0,01 \mu\text{m}$.

Emissioner

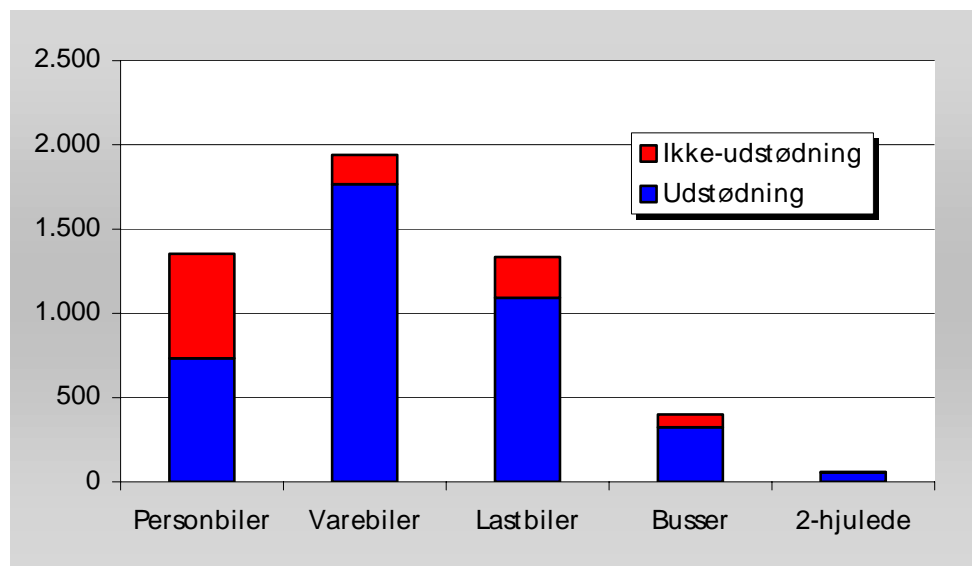
Emissionerne fra samtlige danske kilder opdelt i kategorier opgøres løbende af DMU (Illerup et al., 2003), Figur 2. Trafikkens bidrag til de samlede partikelemissioner i Danmark udgør en væsentlig andel. Andre mobile kilder, som også bidrager med en stor andel, er især landbrugs-, skovbrugs- og entreprenørmaskiner, men også tog, indenlandske færger, fiskerbåde og andre indenlandske skibe er med i denne kategori. Individuel opvarmning er en anden stor post, hvor knap 90 pct. af partikeludslippet skønnes at stamme fra brændeovne.



Figur 2 Relative emissioner fra danske menneskeskabte kilder opgjørt for år 2000 (PM₁₀, pr. år). Figuren er baseret på DMU's årsopgørelse, men for at gøre figuren mere overskuelig er en række kategorier slået sammen. Trafikkens emissioner omfatter såvel den del der emitteres via udstødning som den del der stammer fra vejstøv, dæk, bremses m.v., se i øvrigt Figur 3.

Vejtrafikkens emissioner kan bestemmes ud fra bestandstal, årskørsler, kørselsfordeling og rejsehastigheder samt emissionsfaktorer ved hjælp af den europæiske emissions-model COPERT III (Illerup et al., 2003). Der er nogen usikkerhed i denne beregning, men de kan bruges til at illustrere de forskellige bidrag til trafikens partikelforurening.

Figur 3 viser en oversigt over partikelemissionen fra vejtrafikken. Varebilerne står for den klart største partikelemission fra udstødning. Da en meget stor del af varebilernes emissioner sker i byerne, giver det også anledning til stor befolkningseksposering. For de enkelte køretøjer er partikelemissionerne størst for de tunge køretøjer (busser og lastbiler). Det skal bemærkes, at trafikens emissioner både omfatter emissioner fra udstødningsrør og emissioner fra slid på veje, dæk, bremses m.v. samt ophvirvling af støv (ikke-udstødning). Ikke-udstødningsdelen kan ikke fjernes ved brug af filtre. I Figur 3 er vist fordelingerne på køretøjskategorier opdelt i udstødning/ikke-udstødning.



Figur 3 Emissioner fra den danske vejtrafik i 2000 skønsmæssigt opdelt i emission via udstødningsrør og emissioner, der skyldes slid på vej, dæk, bremses m.v. samt ophvirvlet vejstøv. (PM₁₀, tons pr. år). Estimatet vedrørende ikke-udstødningandelen er behæftet med stor usikkerhed.

Indtil videre er al regulering af partikelemissioner fra trafikken i Danmark og EU foregået på massen af partiklerne. Da ultrafine partikler, som kun udgør en lille del af massen, menes at være de mest sundhedsskadelige, bør regulering også omfatte disse partikler. Det betyder også, at filtres effektivitet overfor ultrafine partikler skal dokumenteres.

Luften i Danmark er desuden påvirket af kilder i det øvrige Europa. Den samlede emission i Europa er af størrelsesordenen 100 gange større end de danske emissioner og vil derfor påvirke den danske luftkvalitet.

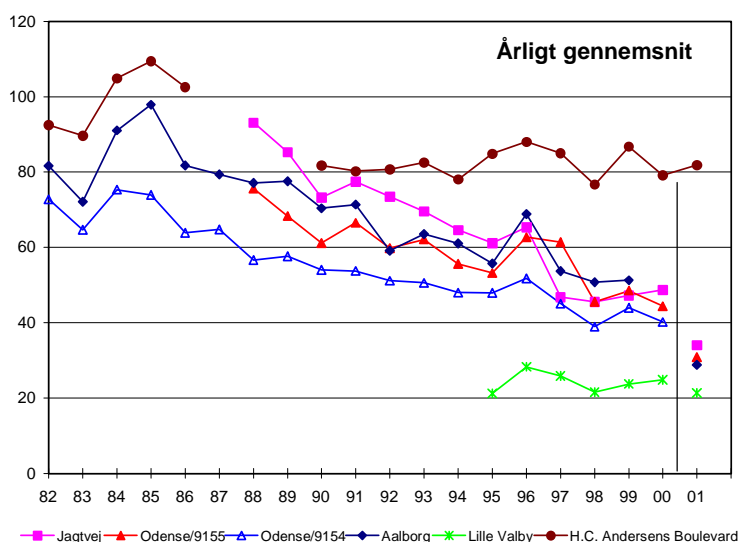
Luftkvalitet

Som nævnt kan man ikke slutte direkte fra emissioner til luftkvalitet. Derfor udføres målinger af luftkvaliteten flere steder i Danmark under det Landsdækkene Luftkvalitetsmåleprogram, som udføres af DMU med henblik på vurdering i relation til grænseværdier og for at vurdere udviklingen som følge af forskellige tiltag (Kemp &

Palmgren, 2003). Målestationerne er placeret strategisk, således at de giver repræsentative måleresultater for forskellige typiske lokaliteter. Der er typisk målinger dels i gader, som repræsenterer forureningen fra trafikken, dels i bybaggrund, som repræsenterer den generelle forurening i byen, hvor der ikke er direkte påvirkning fra helt lokale kilder og dels ude på landet, som repræsenterer forureningen i regionen. I alt måles der på 11 faste stationer og en mobil, der bruges i forbindelse med kampagner. Der er 3 målestationer i København, 6 i andre større byer og 2 landstationer. Resultaterne af målingerne anvendes desuden til udvikling og validering af luftkvalitetsmodeller, som anvendes til beregning af luftkvaliteten på andre lokaliteter.

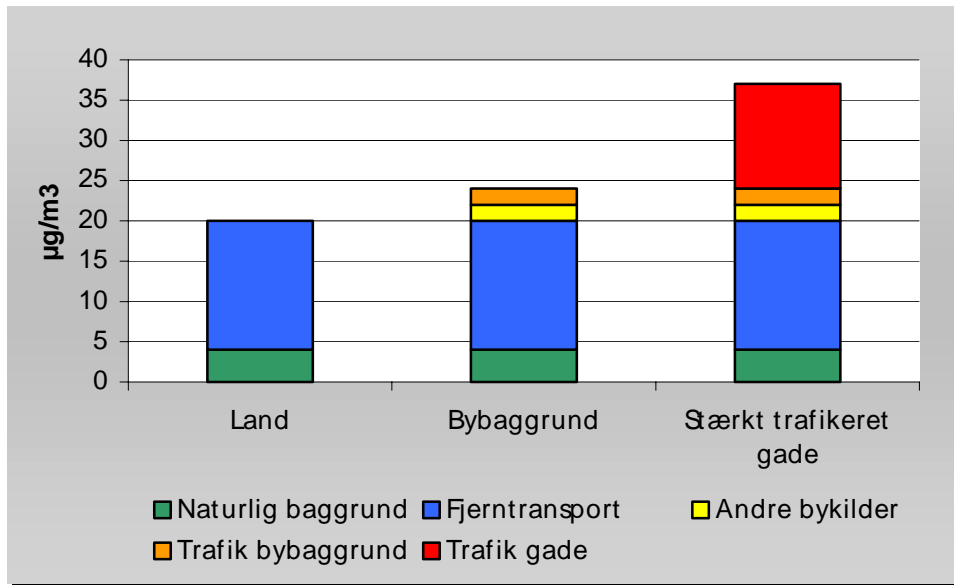
Målinger af PM₁₀ viser de fleste steder, at årsgennemsnittet gennemgående ligger under den grænseværdi på 40 µg/m³, der ifølge et EU-direktiv skal overholdes fra 2005. Dog overskrides grænseværdien for døgn gennemsnittet på særligt udsatte strækninger (f.eks. på H.C. Andersens Boulevard i København), Figur 4.

TSP niveauet er faldet over en længere årrække, undtagen på H.C. Andersens Boulevard, hvor den stærke trafik formentlig giver et stort bidrag af grove partikler, som især stammer fra vejslid. Det generelle fald er overvejret variationer fra år til år på grund af de meteorologiske forhold og varierende emissioner.



Figur 4 Udviklingen i partikelforureningen i Danmark målt under LMP (Kemp & Palmgren, 2003). Indtil 2000 målt TSP og fra 2003 gik man over til måling af PM₁₀ i overensstemmelse med de nye EU direktiver og deraf følgende danske bekendtgørelser.

Fjerntransporterede partikler (PM₁₀) udgør en væsentlig del af baggrundsniveauet – både i byerne og på landet. Fjerntransporterede partikler udgør således op mod 2/3 af baggrundsniveauet. Baggrundsniveauet (dannet af naturlige kilder samt fjerntransporterede partikler) ligger således på godt 20 µg/m³. Hertil kommer byernes eget bidrag, som i København ligger på 2-3 µg/m³. Summen af disse to bidrag svarer til de niveauer, der måles på bybaggrundsstationerne. I trafikerede gader har vi desuden et bidrag fra den lokale trafik, som f.eks. på meget stærk trafikerede gader som Jagtvej er ca. 10 µg/m³ og på H.C. Andersens Boulevard er ca. 18 µg/m³, Figur 5. Disse værdier er gennemsnit for de senere år og varierer som nævnt fra år til år afhængigt af bl.a. de meteorologiske forhold.



Figur 5 Typisk relative kildebidrag PM₁₀ på landet, i bybaggrund og i stærkt trafikeret gade.

De tunge køretøjers bidrag udgør ca. 1/3 (af de 2-3 µg/m³) af trafikens bidrag i bybaggrund i København. I gader kan den tunge trafiks bidrag variere meget afhængigt af køretøjssammensætning, vejbelægning og hastighed m.v.

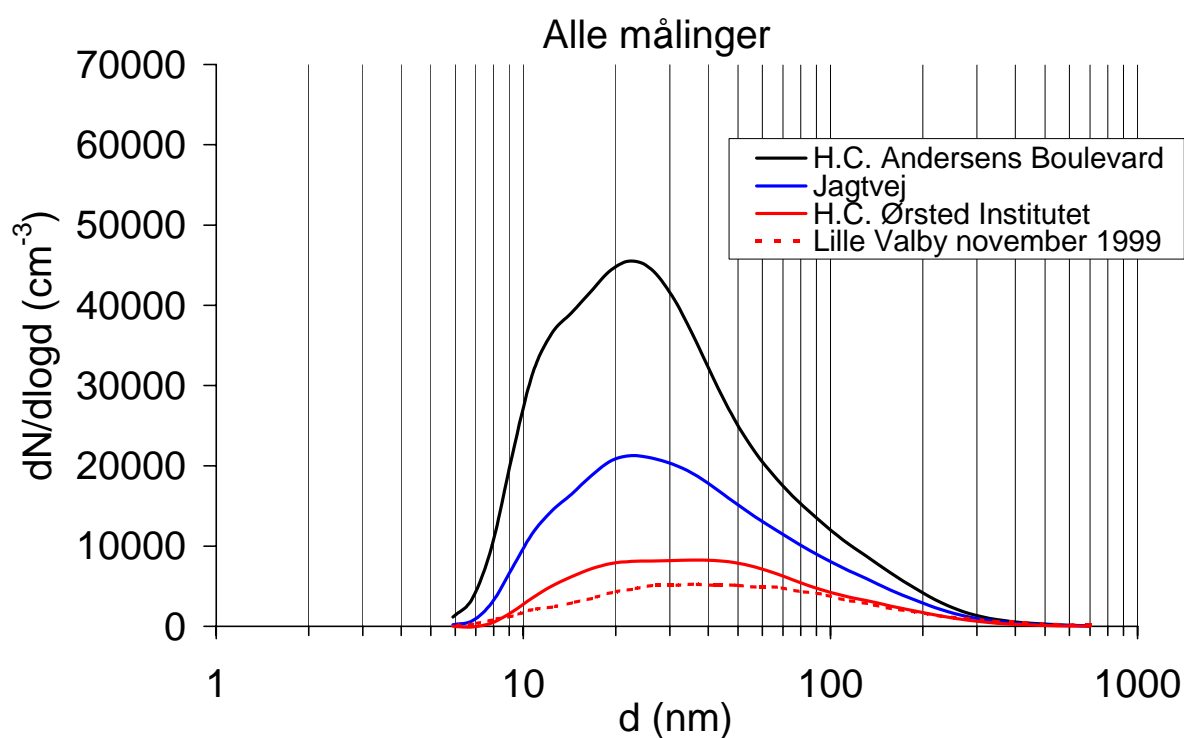
Billedet er helt anderledes for de ultrafine partikler. Her er baggrundsniveaue (og fjerntransporten) væsentligt lavere. Derfor kan koncentrationen (antallet) af de ultrafine partikler reduceres væsentligt mere ved lokale tiltag, f.eks. ved filtre på tunge køretøjer.

I 2001 gennemførte DMU i samarbejde med Københavns Universitet og Kræftens Bekæmpelse en undersøgelse af effekten af filtre med en effektivitet på 80 pct. på alle tunge køretøjer i Danmark (Palmgren et al. 2001). Der forelå ikke en detaljeret opgørelse over den geografiske fordeling af partikelemissionerne og emissionsfaktorerne var usikre. Derfor benyttede man eksisterende detaljerede emissionsdata for NO_x fra trafikken opdelt i køretøjskategorier i København samt konkrete målinger af sammenhængen mellem NO_x, PM₁₀ og ultrafine partikler fra forskellige køretøjskategorier. Vurderingen blev gennemført for København og derefter generaliseret til de øvrige byer efter bystørrelse. Metoden er nærmere beskrevet i ovennævnte rapport. Hovedresultaterne er, at bybaggrunden (der anses for at repræsentere befolkningens eksponering) af PM₁₀ kan reduceres med mindre end 0,5 µg/m³ i byerne, og en opdatering af rapporten i 2002 viser, at antallet af ultrafine kan reduceres med ca. 20 pct., begge ved montering af filtre – der også virker på ultrafine partikler - på alle tunge køretøjer.

Ultrafine partikler

Der har hidtil kun været lidt fokus på ultrafine partikler, som imidlertid i dag anses at være meget betydende for de sundhedsskadelige effekter. Derfor er der i de senere år sat ekstra fokus på disse partikler, som især stammer fra trafikken. Dette sker i Danmark i et 4-årigt projekt i Miljøministeriet, udført af DMU 2001-2004. Det forventes, at der bl.a. under dette projekt opnås en større forståelse, end den der er i dag, af sammenhængen mellem disse partikler og helbredsskader.

De ultrafine partikler (diameter $< 0.1 \mu\text{m}$) på en trafikeret gade som H.C. Andersen Boulevard stammer først og fremmest fra trafikken. Dette kan tydeligt ses ved en sammenligning med tilsvarende målinger af ultrafine partikler foretaget på Jagtvej, på taget af H.C. Ørsted Institutet (bybaggrund), samt i Lille Valby ved Risø vest for København (landbaggrund). I *Figur 6* er vist gennemsnitlige partikelfordelinger fra H.C. Andersens Boulevard og fra de to andre stationer i København beregnet på grundlag af samtidige målinger. Til sammenligningen foreligger der desværre ikke samtidige målinger fra baggrundsstationen Lille Valby udenfor København. Den viste partikelfordeling stammer fra en kort måleperiode (5 dage). Det fremgår af *Figur 6*, at koncentrationen af de ultrafine partikler på H.C. Andersens Boulevard er langt højere end i Lille Valby, hvor trafikens indflydelse er lille. I forhold til Jagtvej er koncentrationen omtrent dobbelt så høj på H.C. Andersens Boulevard. Dette svarer godt til, at gennemsnitskoncentrationen af NO_x , der næsten udelukkende skyldes trafikens emissioner, også er væsentlig højere på H.C. Andersens Boulevard (ca. 1,8 gange højere) end på Jagtvej. Koncentrationen på H.C. Ørsted Institutet er kun moderat forhøjet i forhold til Lille Valby, hvilket stemmer med, at NO_x -koncentrationen i bybaggrund er langt mindre end på en trafikeret gade (på H.C. Ørstedinstitutet ca. 5 gange mindre end på Jagtvej).

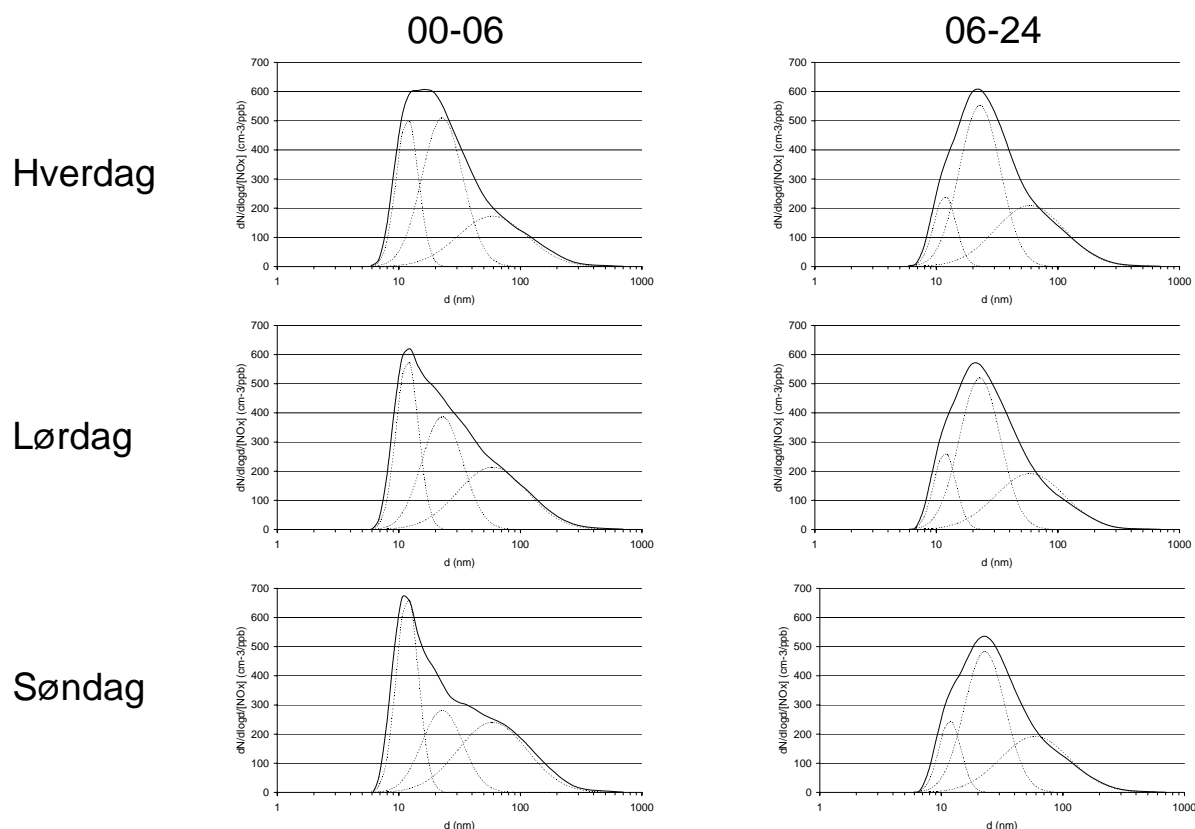


Figur 6 Gennemsnitlige partikelfordelinger fra en række stationer i København beregnet på grundlag af samtidige målinger i perioden juli-september 2001. Til sammenligningen foreligger der desværre ikke samtidige målinger fra baggrundsstationen Lille Valby udenfor København. Den viste partikelfordeling (stiplet) stammer fra en kort måleperiode (5 dage) i november 1999.

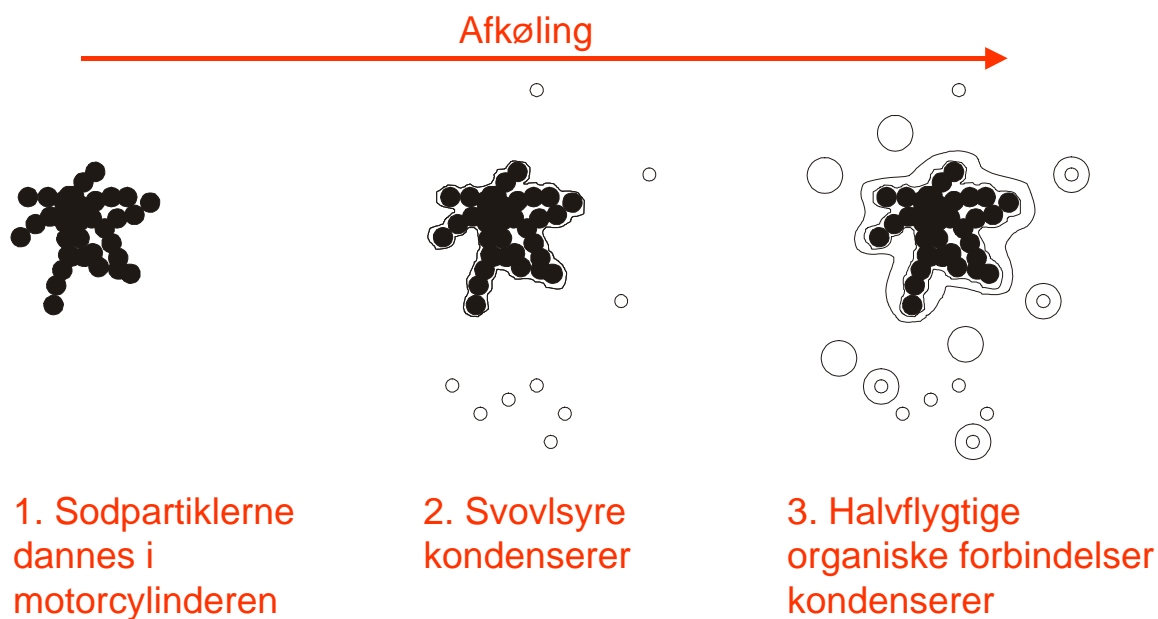
En analyse af data om ultrafine partikler fra trafikken har vist, at det er muligt at opdele partiklerne fra trafikken i mindst tre bidrag. *Figur 7* viser de tre bidrag varierer med tidspunktet på døgnet, og mellem hverdage, lørdage og søndage, hvilket skyldes at trafikmønstrene er forskellige. De største partikler er formentlig faste sodpartikler og de stammer især fra normale dieslbiler. Den mellemste gruppe er flygtige partikler, som også stammer især fra dieselkøretøjer; de består af en kerne, hvorpå der er kondenseret flygtige

organiske stoffer (brændstof, smørelie m.v.). Gruppen af de mindste partikler stammer også især fra dieselkøretøjer med oxiderende katalysator (fx. taxier); det er kerner, formentlig svovlsyretråber fra svovlet i dieselolien, men da de flygtige organiske forbindelser er fjernet i katalysatoren vokser disse partikler ikke. Dette er illustreret i *Figur 8*. Det kan dog ikke udelukkes at også benzinbilerne giver anledning til emission af de ultrafine partikler, men bidraget skønnes at være væsentligt mindre.

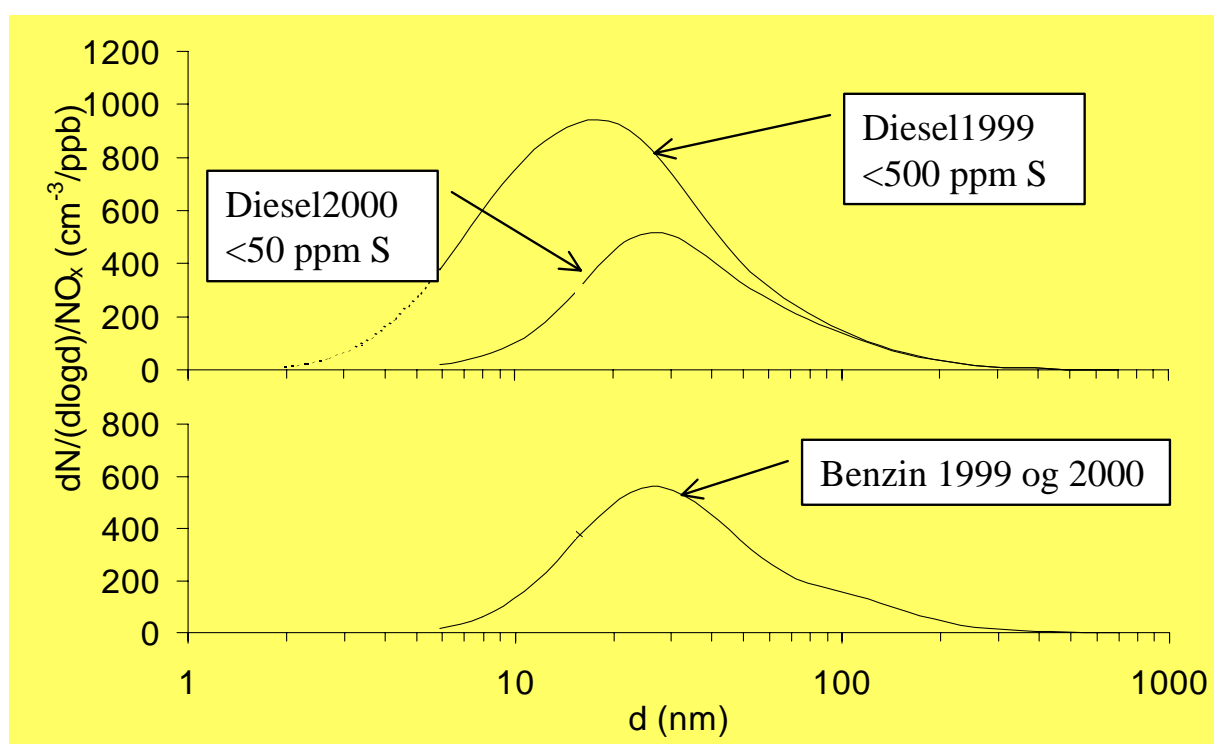
I sommeren 1999 ændrede vi indholdet af svovl i dieselolien fra ca. 500 ppm til under 50 ppm. Målinger, som DMU gennemførte i 1999 og 2000 viste, at det havde stor indflydelse på størrelsesfordelingen af ultrafine partikler *Figur 9*.



Figur 7 Størrelsesfordelinger af partikler på Jagtvej i København fratrukket bybaggrund og normeret med NO_x for at fjerne variationen med meteorologi og trafiktæthed. Fordelingerne er givet for nat- og dagtimer, samt for hverdage, lørdage og søndage. Fordelingerne er opdelt i tre grupper med maksimum i henholdsvis 12, 23 og 57 nm. Den høje top ved 12 nm skyldes formentlig taxier, d.v.s. nye dieslbiler med oxiderende katalysatorer.



Figur 8 Model for dannelsen af dieselpartikler i og efter udstødningsrøret. Svovlsyre og uforbrændte organiske forbindelser (f.eks. motorolie, PAH) kondenserer, enten på overfladen af andre partikler eller ved dannelse af nye partikler (nukleation).



Figur 9 Partikelstørrelsesfordelinger før og efter reduktion af svovlindholdet i dieselolie fra maksimum 500 ppm til maksimum 50 ppm.

Konklusioner

De største nationale emissioner kommer fra vejtrafikken (specielt dieselvarebiler og lastbiler), fra andre mobile kilder (landbrugs-, entreprenør- og industri-køretøjer) og boligopvarmning (heraf 89% fra brændeovne). Vejtrafikken og brændeovne er desuden de kilder, der giver størst befolkningseksposering, fordi partiklerne emitteres i lav højde og hvor mennesker bor og færdes.

Dieselkøretøjer er den helt dominerende kilde – angivet som antal partikler - til nanopartikler og ultrafine partikler i byluft. Desuden er fjerntransport-bidraget betydeligt og sammenligneligt med trafikens bidrag – angivet som masse .

Effekten af reduktion i dieselbrændstoffets svovlindhold fra 500 ppm til under 50 ppm er demonstreret v.h.a. ovenstående teknikker. Reduktionen er især sket for de allermindste partikler under 0,05 µm, som i det væsentlige er svovlsyre dråber, brændstof, delvist forbrændt brændstof og smøreolie.

PM₁₀ og PM_{2.5} er målt detaljeret i København på gader og i bybaggrund. Der er et betydeligt bidrag fra trafikken. Det er dels den del der dannes i motorer og dels den del som skabes ved slid på kørebane, bremses, dæk, bremses m.v. samt genophvirvling af støv. Især ikke-udstødningsdelen er usikker.

Ultrafine partikler menes at være de mest sundhedsskadelige, derfor bør vurderinger og reguleringer af partikelforureningen også omfatte disse partikler, herunder dokumentation af filtereffektivitet.

Referencer

Illerup, J.B., Nielsen, M. & Winther, M. (2003). Particle emissions in Denmark. National Environmental Research Institute, Roskilde Denmark. xx pp. NERI Technical Report No.xx (In preparation).

Kemp, K. & Palmgren, F. (2003): The Danish Air Quality Monitoring Programme. Annual Summary for 2002. National Environmental Research Institute, Roskilde Denmark. 44 pp. NERI Technical Report No. 450.

KETZEL, M., WÄHLIN, P., BERKOWICZ, R. & PALMGREN, F. (2003). Particle and trace gas emission factors under urban driving conditions in Copenhagen based on street and roof level observations. Atmospheric Environment. Vol. 37, pp 2735-2749.

Palmgren, F., Wählin P., Berkowicz, R., Ketznel, M., Illerup, J. B., Nielsen, M., Winther, M., Glasius, M. and Jensen, B. (2003): Aerosols in Danish Air (AIDA), Mid-term report 2001-2002. NERI Technical Report No.... (In preparation)

Palmgren, F., Wählin, P., Berkowicz, R., Hertel, O., Jensen, S.S., Loft, S. & Raaschou-Nielsen, O. (2001): Partikelfiltre på tunge køretøjer i Danmark. Luftkvalitets- og sundhedsvurdering. Danmarks Miljøundersøgelser. 94 s. – Faglig rapport fra DMU, nr. 358.

Trafikministeriet, 2003. Partikelredegørelse. Trafikministeriet, den 5. juni 2003.

Wählin, P. (1993). A multivariate receptor model with a physical approach. Proceedings of the Fifth International Symposium on Arctic Air Chemistry, 8-10 September 1992, Copenhagen. NERI Technical Report No. 70.

Wählin, P., Palmgren, F., Van Dingenen, R., 2001. Experimental studies of ultrafine particles in streets and the relationship to traffic, *Atmospheric Environment* 35, S63-S69.

Wählin, P. & Palmgren, F. (2003). Source apportionment of PM10 and PM2.5 in a street in Copenhagen. Presented at "Particulate Matter: Atmospheric Sciences, Exposure and the Fourth Colloquium on PM and Human Health". 31 March- 4 April, 2003. Pittsburgh, Pennsylvania, USA.