



Doctoral Thesis

Roadside measurements of aerosol parameters and determination of emission factors for different vehicle categories

Author(s):

Imhof, David Andreas

Publication Date:

2005

Permanent Link:

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-004998929> →

Rights / License:

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#) →

This page was generated automatically upon download from the [ETH Zurich Research Collection](#). For more information please consult the [Terms of use](#).

ROADSIDE MEASUREMENTS OF AEROSOL PARAMETERS
AND DETERMINATION OF EMISSION FACTORS FOR
DIFFERENT VEHICLE CATEGORIES

A dissertation submitted to the
SWISS FEDERAL INSTITUTE OF TECHNOLOGY ZURICH

for the degree of
Doctor of Natural Sciences

presented by

DAVID ANDREAS IMHOF

Dipl. Geogr., University of Basel

born 31.05.1972

citizen of Füllinsdorf and Salmsach

Accepted on the recommendation of
Prof. Dr. Alexander Wokaun, examiner
PD Dr. Urs Baltensperger, co-examiner
Dr. Ernest Weingartner, co-examiner

Abstract

This thesis deals with the measurement of the air pollution in the vicinity of various roads with characteristic traffic regimes and frequencies. It has been shown by numerous recent studies that especially the particle emissions related to the road traffic have adverse effects on the health of humans who are often exposed to these emissions. Traffic emissions are generally subdivided into exhaust emissions and emissions by abrasion and resuspension processes. The former normally exhibit particle sizes with aerodynamic diameters $D < 1 \mu\text{m}$ (PM1), the latter are primarily found in the size range $D = 1 - 10 \mu\text{m}$. Aerosol particles also play an important role for the global climate through light absorption and scattering and by acting as condensation nuclei which contribute to the radiative forcing in the earth-atmosphere system.

The objective of this work consists in the investigation of the direct traffic emissions in form of the measurement of a number of various aerosol parameters. The main emphasis is put on the number size distribution and the concentration of particles with $D < 1 \mu\text{m}$, but also the so called coarse mode particles ($D = 1 - 10 \mu\text{m}$), the active particle surface area and partially black carbon (soot) were measured. For the investigation of the behaviour of the airborne particles compared to the respective concentrations of nitrogen oxides (NO_x) these were recorded as well at most of the sampling stations. Average diurnal cycles gave information about the variation of air pollutant concentrations at various sampling sites. Emission factors per vehicle of the entire vehicle fleet were calculated for a number of aerosol parameters. By means of a linear regression model the total emissions were separated into the contributions of light-duty vehicles (LDV) and those of heavy-duty vehicles (HDV). Vehicles were classified according to their length, i.e. vehicles with a length $L < 6 \text{ m}$ were assigned to LDV and those with $L > 6 \text{ m}$ were ascribed to HDV.

In open field experiments air pollutant measurements were performed on both sides of the road. In case of approaching airflow at right angles to the road, an upwind and a downwind side is formed. Whereas on the upwind side only the background concentration is measured, on the downwind side the sum of the background and the traffic emissions is recorded. The difference between the concentrations of the downwind and the upwind side thus represents the direct traffic emissions.

In a comprehensive field experiment two 52 m high towers were put up in a distance of 84 and 60 m on the upwind and downwind side of a German motorway (speed limit $v = 120 \text{ km h}^{-1}$). For the first time continuous height profiles of the particle number size distribution and the surface area concentration were measured by instruments situated in electrically operated elevators. The measurements revealed an average exhaust plume height of about 20 to 25 m above ground. Above this level similar concentrations were recorded on the downwind side as on the upwind side. Near the ground level, significantly higher pollutant concentrations were observed on the downwind side. The ultrafine particles ($D < 100 \text{ nm}$) exhibited a similar height dependence as the coarse particles ($D > 1 \mu\text{m}$), whereas particles in the medium size classes (300 – 700 nm) did not show any variation with increasing height in the investigated section. This result implies that traffic is responsible for only a few particle emissions in this size range. In dependence of the height a good correlation was found between particles and NO_x indicating that both air pollutants experience a similar dilution under atmospheric conditions.

Extensive aerosol measurements were performed at three roads in Switzerland with characteristic traffic situations. Objects of investigation were a motorway ($v = 120 \text{ km h}^{-1}$), a

highway ($v = 80 - 120 \text{ km h}^{-1}$) and an urban main road in the city of Zürich with stop and go traffic ($0 - 50 \text{ km h}^{-1}$). At the two former sites traffic emissions were determined by upwind and downwind measurements, whereas in Zürich the experimental concept of measurements at the traffic-related site and at an urban background site was applied. Mean diurnal cycles showed maximum air pollutant concentrations during the morning rush hour. In the course of the day the concentrations decreased continuously towards the afternoon. In the evening, a secondary maximum was observed for the most part one to three hours after the highest traffic density of the evening rush hour. The explanation for this feature can be found in the meteorological conditions. A stable inversion layer is developed near the earth's surface during the night leading to an accumulation of the air pollutants in case of high emission rates (morning rush hour). During the day the inversion layer is broken up and the contaminants are dispersed in a larger air volume resulting in a decrease of the absolute concentrations. When the stable nocturnal boundary layer is formed again in the later evening hours a temporary accumulation of the air pollutants takes place.

Particle number and particle volume emission factors were computed for the diameter size ranges 18-50 nm, 18-100 nm and 18-300 nm. On average, 10 to 30 times higher emission factors per vehicle were observed for HDV than for LDV. The latter showed higher emission factors driving at constant high speed ($80 - 120 \text{ km h}^{-1}$) than during disturbed traffic flow. The opposite effect was found for the HDV which emit substantially higher particle numbers during acceleration and deceleration under urban driving conditions than at a constant speed of approximately 80 km h^{-1} . In case of an undisturbed traffic flow the mass concentrations of exhaust emissions (PM1) and of abrasion and resuspension processes (PM10-PM1) seem to be in a similar range. If a constant traffic flow is hindered by light signals or traffic jams PM10-PM1 emissions are significantly increased.

By means of tunnel measurements it is shown that the presence of nucleation mode particles ($D < 50 \text{ nm}$) is dependent on the available surface area of soot mode particles. The latter undergo a distinct diurnal variation in dependence of the traffic frequency, whereas the former exhibit even higher concentrations during nighttime with far less traffic density than during the day. This behaviour is explained by the condensation of semivolatile material on the surface of pre-existing soot particles rather than formation of new particles by homogeneous nucleation in highly polluted air.

A comparison of the emission factors calculated for five different traffic situations revealed a fairly good agreement. Between 1 and 2×10^{14} particles per vehicle kilometre were emitted by the total vehicle fleet in the size range $D = 18-300 \text{ nm}$. Particle volume emission factors of the same size range were found to be between 0.03 and $0.1 \text{ cm}^3 \text{ km}^{-1}$. PM1 emission factors of 25 to 100 mg km^{-1} and PM10 emission factors of 50 to 250 mg km^{-1} were observed. These findings are also consistent with the results obtained in other studies for comparable traffic situations.

Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit der Messung der Luftschadstoffkonzentrationen im Nahbereich von verschiedenen Strassen mit repräsentativen Verkehrsregimes und Verkehrsfrequenzen. Zahlreiche Studien, die in den letzten Jahren durchgeführt wurden, haben gezeigt, dass insbesondere Partikelemissionen, die durch den Strassenverkehr produziert werden, negative Auswirkungen auf die Gesundheit der Menschen haben, die häufig den direkten Immissionen des Verkehrs ausgesetzt sind. Dies gilt vor allem für die Auspuffemissionen aber auch für die Abriebs- und Wiederaufwirbelungsprodukte. Erstere weisen im Allgemeinen Partikelgrössen mit einem aerodynamischen Durchmesser D von weniger als $1\ \mu\text{m}$ auf (PM₁), letztere sind hauptsächlich im Grössenbereich $D = 1 - 10\ \mu\text{m}$ zu finden. Im Weiteren spielen Aerosolpartikel eine bedeutende Rolle für das globale Klima, indem sie durch Absorption und Streuung von Licht sowie als Kondensationskeime für Wolkentröpfchen ihren Teil zum Strahlungsantrieb der Erde beitragen.

Das Ziel dieser Dissertation ist die Untersuchung der direkten Verkehrsemissionen mittels Messung einer Anzahl verschiedener Aerosolparameter. Das Hauptgewicht liegt dabei auf der Anzahl-Grössenverteilung und Konzentration der Partikel, die kleiner als $1\ \mu\text{m}$ sind, daneben wurden aber auch die sogenannten Coarse-mode Partikel ($D = 1 - 10\ \mu\text{m}$), die „aktive“ Partikel-Oberflächenkonzentration und teilweise Black Carbon (Russ) gemessen. Um das Verhalten der luftgetragenen Partikel gegenüber der jeweiligen Konzentration der Stickoxide (NO_x) zu untersuchen, wurden an den meisten Orten auch die NO_x -Konzentrationen registriert. Mittlere Tagesgänge für ausgewählte Standorte gaben Aufschluss über tageszeitliche Variationen der Luftschadstoffkonzentration an den verschiedenen Messorten. Für eine Anzahl Aerosolparameter wurden Emissionsfaktoren pro Fahrzeug der gesamten Verkehrsflotte berechnet. Mit Hilfe eines linearen Regressionsmodells konnten die Gesamtemissionen in die Beiträge der leichten Motorfahrzeuge (LMF) und der schweren Motorfahrzeuge (SMF) aufgeteilt werden. Dabei wurden Fahrzeuge mit einer Länge $L < 6\ \text{m}$ als leichte Motorwagen und solche mit $L > 6\ \text{m}$ als schwere Motorwagen klassifiziert.

Bei Freilandexperimenten wurden jeweils auf beiden Strassenseiten Schadstoffmessungen durchgeführt. Wenn die Windanströmung mehr oder weniger rechtwinklig zur Strasse erfolgt, bildet sich eine Luv- und eine Leeseite aus. In diesem Falle werden auf der Luvseite die Hintergrundkonzentration, auf der Leeseite die Hintergrundkonzentration und die Verkehrsemissionen gemessen. Die Differenz der Konzentrationen auf der Luv- und derjenigen auf der Leeseite ergeben die reinen Verkehrsemissionen.

Mit zwei 52 m hohen Krantürmen, die 84 und 60 m auf der Luv- respektive Leeseite einer deutschen Autobahn (Geschwindigkeitslimit $V = 120\ \text{km h}^{-1}$) entfernt standen, wurden erstmals kontinuierliche Höhenprofile der Partikel-Anzahlgrössenverteilung und der Oberflächenkonzentration gemessen, indem die Geräte in elektrisch betriebenen Aufzügen stationiert waren. Die Messungen zeigten, dass die Abgasfahne des Verkehrs im Mittel auf eine Höhe von rund 20 bis 25 m reichte. Oberhalb dieser Höhe wurden auch auf der Leeseite die gleichen Konzentrationen wie auf der Luvseite gemessen. In der Nähe der Erdoberfläche wurden auf der Leeseite massiv höhere Schadstoffkonzentrationen beobachtet. Sowohl die ultrafeinen ($D < 100\ \text{nm}$) als auch die groben Partikel ($D > 1\ \mu\text{m}$) zeigten eine ähnliche Höhenabhängigkeit, während Partikel in der mittleren Grössenklasse (300 - 700 nm) in allen untersuchten Höhenabschnitten gleiche Anzahlkonzentrationen aufwiesen. Dieses Ergebnis deutet darauf hin, dass der Verkehr in diesem Grössenbereich zahlenmässig nur wenige Partikel emittiert. Es wurde eine gute Korrelation zwischen Partikeln und NO_x in

Abhängigkeit der Höhe gefunden, was darauf schliessen lässt, dass beide Luftschadstoffe in ähnlicher Weise verdünnt werden.

An drei charakteristischen Strassenstandorten in der Schweiz wurden umfangreiche Aerosolmessungen durchgeführt. Als Untersuchungsobjekte dienten eine Autobahn ($V = 120 \text{ km h}^{-1}$), eine Autostrasse ($V = 80\text{-}100 \text{ km h}^{-1}$) und eine innerstädtische Hauptverkehrsachse in Zürich mit Stop-and-Go-Verkehr ($0\text{-}50 \text{ km h}^{-1}$). Während die Verkehrsemissionen an den ersten beiden Standorten durch Luv- und Leemessungen ermittelt wurden, gelangte in der Stadt Zürich das Konzept der Messung am verkehrsbelasteten Standort und an einem städtischen Hintergrundstandort zur Anwendung. Die Auswertung der mittleren Tagesgänge zeigte jeweils maximale Konzentrationen während des morgendlichen Berufsverkehrs. Im Laufe des Tages nahmen die Luftschadstoffkonzentrationen ab, bevor sie am Abend, meist um eine bis drei Stunden später als die höchsten Frequenzen des Abendverkehrs, nochmals zu einem sekundären Maximum anstiegen. Der Grund für dieses Verhalten ist in den meteorologischen Verhältnissen zu suchen. In der Nacht bildet sich in der bodennahen Luftschicht eine stabile Inversion aus, die – sobald genügend Quellen vorhanden sind – zu einer starken Akkumulation der Schadstoffe führen. Während des Tages löst sich die Inversionsschicht auf, und die Schadstoffe verteilen sich in einem grösseren Luftvolumen, weshalb die absoluten Konzentrationen allmählich abnehmen. Bei der Neubildung der stabilen nächtlichen Grenzschicht kommt es am späteren Abend vorübergehend nochmals zur Akkumulation der Schadstoffe.

Aus den Verkehrsemissionen wurden Partikelanzahl- und Partikelvolumen-Emissionsfaktoren für die Grössenbereiche 18-50 nm, 18-100 nm und 18-300 nm berechnet. Im Mittel wurden bei schweren Motorwagen 10 bis 30 Mal höhere Emissionsfaktoren pro Fahrzeug beobachtet als bei leichten Motorwagen. LMF zeigten bei konstanter hoher Geschwindigkeit ($80 - 120 \text{ km h}^{-1}$) höhere Emissionsfaktoren als bei gestörtem Verkehrsfluss. Genau umgekehrt verhält es sich bei den SMF: Diese emittieren wesentlich mehr Partikel bei Beschleunigungs- und Abbremsvorgängen im Stadtverkehr als bei einer konstanten Geschwindigkeit von ungefähr 80 km h^{-1} . Bei ungestörtem Verkehrsfluss scheinen sich die Massenkonzentrationen von Auspuffemissionen (PM1) und von Abriebs- und Aufwirbelungsprozessen (PM10-PM1) etwa die Waage zu halten. Sobald der Verkehrsfluss durch Lichtsignalanlagen oder stockenden Kolonnenverkehr massive Störungen erfährt, kommt es zu deutlich erhöhten PM10-PM1-Emissionen.

Anhand von Tunnelmessungen konnte gezeigt werden, dass das Vorkommen von Nukleationsmode-Partikeln ($D < 50 \text{ nm}$) von der vorhandenen Oberfläche der Russmode-Partikel abhängt. Letztere unterliefen einen klaren Tagesgang in Abhängigkeit der Verkehrsdichte, während erstere nachts – bei viel geringerem Verkehr – teilweise höhere Konzentrationen aufwiesen als tagsüber. Diese Tatsache ist dadurch zu erklären, dass das semivolatile Material bei sehr hohen Russkonzentrationen in erster Linie auf der Oberfläche der bereits vorhandenen Russpartikel kondensiert und nur relativ wenige neue Partikel durch homogene Nukleation bildet.

Ein Vergleich der für fünf unterschiedliche Verkehrsstandorte berechneten Emissionsfaktoren brachte eine recht gute Übereinstimmung zum Vorschein. Pro Fahrzeugkilometer der gesamten Verkehrsflotte wurden zwischen 1 und 2×10^{14} Partikel im Grössenbereich $D = 18\text{-}300 \text{ nm}$ emittiert. Partikelvolumen-Emissionsfaktoren in demselben Grössenbereich schwankten je nach Standort zwischen 0.03 und $0.1 \text{ cm}^3 \text{ km}^{-1}$. PM1-Emissionsfaktoren lagen zwischen 25 und 100 mg km^{-1} , während die PM10-Emissionsfaktoren zwischen 50 und 250 mg km^{-1} ausmachten. Diese Resultate sind auch konsistent mit Ergebnissen vergleichbarer Verkehrssituationen aus anderen Studien.