nn 8201 796 C

OVER HET ATMOSFERISCHE GEDRAG EN DE EMISSIE VAN SUBMICRONE VERKEERSAEROSOLEN

E. BURINGH

NN08201.796

551.510.42:551.508
621.43.06:551.510.42

E. BURINGH

OVER HET ATMOSFERISCHE GEDRAG EN DE EMISSIE VAN SUBMICRONE VERKEERSAEROSOLEN

Proefschrift

ter verkrijging van de graad
van doctor in de landbouwwetenschappen,
op gezag van de rector magnificus
dr. H. C. van der Plas,
hoogleraar in de organische scheikunde,
in het openbaar te verdedigen
op vrijdag 7 maart 1980
des namiddags te vier uur in de aula
van de Landbouwhogeschool te Wageningen

H. VEENMAN & ZONEN B.V. - WAGENINGEN - 1980

STELLINGEN

1.

De benadering van Davies bij de berekening van de factor β bij de coagulatieconstante verdient de voorkeur boven die van Fuchs.

DAVIES, C. N., (1979): Coagulation of aerosols by brownian motion. J. Aerosol Sci. **10**/2; 151–161.
FUCHS, N. A., (1964): The mechanics of aerosols. Pergamon Press, Oxford.

2.

De door Whitby c.s. gevolgde wijze van berekening van de coagulatieconstante is onjuist.

WHITBY, K. T., W. E. CLARK, V. A. MARPLE, G. M. SVERDRUP, G. J. SEM, K. WILLEKE, B. Y. H. LIU, D. Y. H. PUI, (1975): Characterization of California aerosols. I. Size distribution of freeway aerosol. Atmos. Environ. 9/5; 463–482.

3.

Emissieschattingen van luchtverontreiniging door verkeersstromen door middel van metingen langs verkeerswegen verdienen de voorkeur boven directe metingen aan de uitlaat.

Dit proefschrift.

4.

Nog te vaak denkt men uitspraken te kunnen doen over de bijdrage van antropegene handelingen aan de luchtverontreiniging zonder goede voorbelastingsmetingen.

WHITBY, K. T., W. E. CLARK, V. A. MARPLE, G. M. SVERDRUP, G. J. SEM, K. WILLEKE, B. Y. H. LIU, D. Y. H. PUI, (1975): Characterization of California aerosols I. Size distribution of freeway aerosol. Atmos. Environ. 9/5; 463–482.
WILLEKE, K., K. T. WHITBY, W. E. CLARK, V. A. MARPLE, (1974): Size distributions of Denver aerosols – a comparison of two sites. Atmos. Environ. 8/6; 609–633.

5.

Het belang van de invloed van de relatieve luchtvochtigheid op de deeltjesgrootteverdeling van atmosferische aerosolen wordt dikwijls onderschat.

S. G. JENNINGS, R. K. ELLESON, (1977): Aerosol particle size distributions in the 0,25–5,0 μm radius range in northern England. Atmos. Environ. **11**; 361–366.

6.

De oorspronkelijke 4 functies van het Nationaal Meetnet voor Luchtverontreiniging worden in de huidige opzet op inadequate wijze vervuld.

Scholingsgroep Milieuhygiëne, (1976). Het Nederlandse Milieuonderzoek, een eerste studie. Wageningen.

7.

Het feit dat zonder nader commentaar bij verschillende publicaties de uitkomsten van één en dezelfde serie metingen wisselen is verwerpelijk.

1. GORDON, G. E., dir., (1974). Study of the emissions from mayor air pollution sources and their atmospheric interactions. Two year progress report 1972–1974. University of Maryland.
   GORDON, G. E., dir., (1975). Atmospheric impact of mayor sources and consumers of energy. Progress report –75. University of Maryland.
2. WHITBY, K. T., W. E. CLARK, V. A. MARPLE, G. M. SVERDRUP, G. J. SEM, K. WILLEKE, B. Y. H. LIU, D. Y. H. PUI (1975). Characterization of California aerosols I. Size distribution of freeway aerosol. Atmos. Environ. **9**/5; 463–482.
   GIAUQUE, R. D., L. Y. GODA, N. E. BROWN, (1974). Characterization of aerosols in California by X-ray induced X-ray fluorescence analysis. Environ. Sci. Technol. **8**/5; 436–441.

8.

Trolleybussen zouden meer ingevoerd moeten worden in stedelijke vervoerssystemen.

9.

Met de uitspraak van Adema dat het absurde bewapeningssysteem een van de grootste, zo niet het grootste milieuprobleem van deze tijd is, ben ik het eens, daarom zou naar mijn idee binnen de Studierichting Milieuhygiëne aandacht voor deze problematiek op zijn plaats zijn.

ADEMA, E. H., (1979): Tussen hemel en aarde.
Inaugurele rede uitgesproken bij het aanvaarden van het ambt van hoogleraar in de luchthygiëne en luchtverontreiniging aan de Landbouwhogeschool te Wageningen.

10.

De verklaring van Huysmans c.s., dat het verband dat Enterline vond, tussen ziekteverzuim en werkloosheid in een aantal westerse landen, grotendeels te wijten is aan de opname van niet geheel geschikt personeel is onjuist.

HUYSMANS, F., P. JUFFERMANS, B. LAGRO, B. VAN NIEKERK, F. SMITS, H. VLAAR, (1973): Gezondheidszorg in Nederland. Socialistische Uitgeverij Nijmegen, Nijmegen.
ENTERLINE, P. E., (1964): Arbeidsverzuim door ziekte in een aantal westerse landen. Mens en Onderneming **18**; 162–172.

11.

Wanneer Dijkstra vaststelt dat er nauwelijks sprake is van een relatie tussen geregistreerde arbeidsreserve en afwezigheid wegens ziekte over de periode van 1968 t/m 1972 is dat alleen te wijten aan de lengte van de door hem gekozen periode.

DIJKSTRA, A., (1974): Inkrimping van het personeelsbestand in productiebedrijven en afwezigheid wegens ziekte; een longitudinale secundaire analyse. Sociologische Gids, 74/1; 3–15.

12.

Volcontinue diensten in vier ploegen zouden verboden moeten worden als rekening zou worden gehouden met het uitgangspunt dat de gezondheid van de werknemer gedurende de gehele arbeidsperiode in het algemeen niet benadeeld mag worden.

BURINGH, E., (1973): Ploegenarbeid en gezondheid. Wageningen.

13.

Opwekking van electriciteit met behulp van kerncentrales zou gestaakt moeten worden.

14.

Er vinden heden ten dage te weinig wetenschappelijke polemieken plaats.

ELTJO BURINGH

Wageningen, 7 maart 1980

WOORD VOORAF

In dit voorwoord wil ik graag degenen bedanken, die aan deze dissertatie hun bijdrage hebben geleverd.

In de eerste plaats gaat mijn dank uit naar Prof. Dr. J. G. ten Houten voor de begeleiding die ik van hem kreeg tijdens het eerste jaar van dit onderzoek.

Verder bedank ik Prof. Dr. R. Dams van de Rijksuniversiteit in Gent, die zich bereid heeft verklaard om als co-promotor op te treden voor de discussies.

Aan mijn promotor Prof. Dr. E. H. Adema ben ik veel dank verschuldigd voor de gesprekken en zijn raadgevingen met betrekking tot de verwerking en interpretatie van de meetgegevens en de opzet van de dissertatie.

Ook de staf van de vakgroep, die zich meer met de uitvoering van het eigenlijke onderzoek heeft beziggehouden, wil ik graag hartelijk bedanken.

Dr. J. S. M. Boleij voor de begeleiding en zijn functie als klankbord.

Ir. P. Hofschreuder voor zijn hulp bij de tunnelproeven en zijn waardevolle ideeën.

H. Wegh voor de analyse van het gebruikte tracergas en zijn hulp tijdens de wegproeven.

Daarnaast heb ik tijdens diverse veldproeven hulp gehad van Drs. M. Brandon, H. Verbruggen, Ir. L. van der Eerden, Ir. J. W. Voetberg en Ir. D. Verwaart. Aan laatstgenoemde ben ik ook nog dank verschuldigd voor de redactie van een van de computermodellen.

Verder ben ik C. L. Hölscher-van den Berg en J. P. Kieffer-Smits erg dankbaar voor al het typewerk, dat ze in de loop van de tijd voor me gedaan hebben. De heer C. Rijpma wil ik bedanken voor het maken van de tekeningen.

Vanaf deze plaats wil ik zowel aan Z.W.O. als aan de Landbouwhogeschool mijn dank overbrengen voor de mogelijkheid, die ze me geboden hebben om een studiereis langs verschillende instituten in de Verenigde Staten te maken. Deze reis heeft me weer nieuwe krachten gegeven.

Ook wil ik de Landbouwhogeschool nog bedanken voor het feit, dat men mij na mijn drie-jarige periode nog gelegenheid heeft gegeven om in negen maanden het proefschrift overeenkomstig de opzet in diensttijd te voltooien.

Tenslotte wil ik allen binnen en buiten de vakgroep met wie ik over dit proefschrift heb mogen discussiëren en allen bij wie ik bij tijd en wijle mijn moeilijkheden heb kunnen bespreken hartelijk bedanken.

INHOUD

1. INLEIDING . . . 1
   1.1. Doelstelling van het onderzoek . . . 2
   1.2. Wegproeven . . . 3
   1.3. Tunnelproeven . . . 4
   1.4. Andere metingen . . . 5

2. ATMOSFERISCH GEDRAG VAN VERKEERSAEROSOLEN . . . 6
   2.1. Vorming van aerosolen door motorvoertuigen . . . 8
   2.1.1. Vorming door verbrandingsprocessen . . . 8
   2.1.2. Vorming door slijtage van de banden . . . 12
   2.1.3. Vorming door overige processen . . . 13
   2.2. Verspreiding van het verkeersaerosol vanaf de weg . . . 13
   2.2.1. Lijnbronmodel volgens de gaussische theorie . . . 14
   2.2.2. Lijnbronmodel volgens de gradiënt theorie . . . 14
   2.2.3. Beperkingen aan de modellen . . . 15
   2.3. Invloed van de relatieve luchtvochtigheid . . . 16
   2.4. Omzettingen tengevolge van coagulatie . . . 22
   2.4.1. Brownse coagulatie . . . 22
   2.4.2. Turbulente coagulatie . . . 26
   2.4.3. Gradiënt coagulatie . . . 27
   2.5. Secundaire reacties van aerosolen . . . 28
   2.5.1. Snelle reacties . . . 28
   2.5.2. Trage reacties . . . 29
   2.6. Verwijdering door droge depositie . . . 29
   2.6.1. Verwijdering door thermophorese . . . 29
   2.6.2. Verwijdering door sedimentatie . . . 29
   2.6.3. Verwijdering door combinatie van sedimentatie, impactie en diffusie . . . 30
   2.7. Verwijdering door natte depositie . . . 32
   2.8. Reëntrainment van deeltjes . . . 33

3. MONSTERNAME VAN AEROSOLEN . . . 35
   3.1. Principes van monstername . . . 35
   3.2. Verliezen in de leidingen . . . 35

4. MEETINSTRUMENTEN . . . 38
   4.1. Inleiding . . . 38
   4.2. Werking meetinstrumenten . . . 38
   4.2.1. Elektrische verdelings analysator . . . 38
   4.2.2. Condensatie kernenteller . . . 40
   4.3. Beperkingen aan de gebruikte meetinstrumenten . . . 40
   4.3.1. Elektrische verdelings analysator . . . 40
   4.3.2. Condensatie kernenteller . . . 43
   4.4. Aanpassingen aan de instrumenten . . . 43
   4.4.1. Elektrische verdelings analysator . . . 43
   4.4.2. Condensatie kernenteller . . . 44

5. CONTROLE EN VERGELIJKING VAN DE INSTRUMENTEN . . . 45
   5.1. Electrische verdelings analysator . . . 45
   5.1.1. Meetbereik . . . 48
   5.1.2.1. Reproduceerbaarheid . . . 49

5.1.2.2. Stabiliteit . . . 50
5.1.3. Zuiverheid . . . 51
5.1.4. Onderlinge vergelijking . . . 52
5.2. Condensatie kernenteller . . . 53
5.2.1. IJking . . . 53
5.2.2. Onderlinge vergelijking . . . 54
5.3. Vergelijking condensatie kernenteller en elektrische verdelingsanalysator . . . 54

6. VERKEER ALS BRON VAN AEROSOLEN . . . 57
6.1. Fysische karakterisering . . . 57
6.1.1. Deeltjesgrootte verdeling . . . 57
6.1.2. Andere fysische parameters . . . 61
6.2. Chemische karakterisering . . . 62
6.2.1. Loodverbindingen . . . 62
6.2.2. Andere componenten . . . 64

7. WEGPROEVEN . . . 66
7.1. Inleiding . . . 66
7.2. Gedrag van een vers verkeersaerosol . . . 67
7.2.1. Het model weg . . . 68
7.2.2. Controle van het model weg . . . 70
7.3. Opstelling wegproeven . . . 71
7.3.1. Wegproeven in Wageningen . . . 71
7.3.2. Wegproeven in Veenendaal . . . 72
7.4. Resultaten en interpretatie . . . 74
7.4.1. Verspreiding . . . 74
7.4.2. Aerosolen . . . 75
7.4.2.1. Elektrische verdelingsanalysator . . . 75
7.4.2.2. Condensatie kernenteller . . . 78
7.4.3. Loodmetingen . . . 79
7.5. Gevoeligheidsanalyse model weg . . . 81
7.5.1. Meteorologische parameters . . . 81
7.5.1.1. Diffusie coëfficient . . . 81
7.5.1.2. Constante emissie . . . 82
7.5.1.3. Bronhoogte . . . 83
7.5.1.4. Windsnelheid . . . 84
7.5.1.5. Emissiesterkte . . . 85
7.5.1.6. Meetauto . . . 85
7.5.1.7. Schatting ruwheidslengte . . . 85
7.5.2. Aerosol gedrag . . . 86
7.5.2.1. Depositie . . . 86
7.5.2.2. Coagulatie . . . 88
7.6. Discussie . . . 88

8. TUNNELPROEVEN . . . 91
8.1. Inleiding . . . 91
8.2. Fysische omstandigheden in tunnels . . . 92
8.3. Opstelling . . . 96
8.4. Resultaten . . . 98
8.4.1. Verspreiding . . . 98
8.4.2. Aerosolen . . . 99
8.4.2.1. Schatting snelheid van coagulatie . . . 99
8.4.2.2. Schatting van de emissie in de IJ-tunnel . . . 103
8.4.3. Lood . . . 105
8.5. Discussie . . . 106

9. DISCUSSIE 108
9.1. Emissie van submicrone aerosolen door verkeer 108
9.2. Snelheden van coagulatie 110
9.3. Ervaring met de meetapparatuur 113
9.4. Maatschappelijke relevantie 115

10. CONCLUSIES 117

Samenvatting – Summary 119

Lijst van symbolen 121

Literatuur 124

Bijlagen 1 t/m 5 132

1. INLEIDING

Luchtverontreiniging door verkeer vormt heden ten dage een groot probleem in urbane en suburbane gebieden. In Nederland is dit ook het geval, temeer daar ons land van de E.E.G.-landen de hoogste autodichtheid en de grootste populatiedichtheid bezit. In ons land hebben we te maken met een geconcentreerde emissie en een relatief groot aantal receptoren. Vanuit beleidsoogpunt is het relevant om ook een overzicht te hebben van de deeltjesgrootteverdeling van de emissie van submicrone verkeersaerosolen. Door de grote dispersie van de verkeersemissies is de invloed van de processen die de deeltjesgrootteverdeling beïnvloeden gering. De emissie aan submicrone deeltjes kan daarom gebruikt worden voor een evaluatie van de invloed van wegen op locale schaal.

De verkeersemissie kan onderscheiden worden in een gasvormige en een stofvormige component. Deze eerste voornamelijk bestaande uit koolmonoxide, kooldioxide, stikstofoxiden en koolwaterstoffen wordt in dit proefschrift niet behandeld, omdat er vergeleken met de laatste groep van verontreiniging, namelijk de aerosolen, al relatief veel over bekend is. Van de aerosolen is met name lood een vanuit gezondheidskundig oogpunt belangrijk bestanddeel. Hierover is ook relatief meer bekend dan over de andere componenten van het aerosol. VAN LITH, SEVERIJNS, e.a. (1976) geven aan, dat de geschatte loodemissie door verkeer in Nederland in 1973 ongeveer 2,3 miljoen kg bedroeg. Vanwege de kleine deeltjesgrootte van het verkeersaerosol – deze ligt volgens LITTLE en WIFFEN (1977) vlak na de emissie in de buurt van 0,02 μm à 0,04 μm – zullen de deeltjes diep in de longen kunnen doordringen. Door ons eerste natuurlijke verdedigingsbastion tegen stofdeeltjes, de neus, worden deze deeltjes namelijk niet afgevangen. Wanneer in dit onderzoek deeltjesafmetingen gegeven worden, is steeds de diameter bedoeld tenzij dit uitdrukkelijk anders wordt aangegeven. De 'task group on lung dynamics' (1966) heeft een model gepresenteerd dat de gedeponeerde fractie van deeltjes in longen en luchtwegen beschrijft. Voor de genoemde deeltjesgrootte is de gedeponeerde fractie in de longen ongeveer 0,5 à 0,7. De fractie van tracheo bronchiale depositie is in de orde van 0,1 à 0,4. Over de effecten van lood op de mens wordt verwezen naar BIERSTEKER en ZIELHUIS (1975). Deze beide auteurs geven aan, dat bij een concentratie van 1 μg lood/m^3 ongeveer één derde van de totale geabsorbeerde hoeveelheid lood door de mens uit de lucht afkomstig is. Deze concentratie kan hoger zijn in de buurt van een drukke weg, zodat de uit de lucht afkomstige fractie voor daar woonachtige personen en voor mensen, die vlakbij verkeer moeten werken, groter kan zijn dan de aangegeven hoeveelheid.

Verontreiniging ten gevolge van verkeer is echter meer dan een lokaal probleem. Dit blijkt bijvoorbeeld uit de loodconcentraties in de sedimenten van het Michiganmeer. EDGINTON en ROBBINS (1976) vonden, dat door antropogene oorzaken de loodconcentraties in de sedimenten sinds 1830 toenemen. In eerste instantie is deze toename te wijten aan de verbranding van kolen. Na 1920 is er

een sterke toename van de loodconcentratie te zien ten gevolge van het op steeds grotere schaal plaatsvindend gebruik van loodhoudende benzines in de Verenigde Staten. Sinds 1950 is de bijdrage van benzines aan de loodconcentratie in de sedimenten van het Michiganmeer het tienvoudige van dat van andere antropogene bronnen. Ook op nog grotere afstanden is de invloed van het verkeersaerosol te zien. MUROZUMI, CHOW, e.a. (1969) hebben een zeer sterke en nog voortdurende stijging van het loodgehalte gevonden in het ijs op Groenland van na 1950. Het loodgehalte van het ijs tussen 800 en ongeveer 1730 is vrijwel nihil en constant. Daarna is er een voortdurende lichte stijging te zien, waarschijnlijk ten gevolge van het gebruik van kolen. Sinds in 1950 op grote schaal loodhoudende benzines in gebruik zijn gekomen, is er een zeer sterke stijging van het loodgehalte waargenomen. Verspreiding over dergelijke afstanden is slechts mogelijk als de verblijftijd van het aerosol in de atmosfeer lang genoeg is. Voor lood wordt door GUICHERIT (1974) een verblijftijd van ongeveer vijfhonderd tot zevenhonderd uur opgegeven. ESMEN en CORN (1971) hebben in een stedelijke atmosfeer een verblijftijd van submicron deeltjes van 0,1 tot 1 μm gemeten van honderd tot duizend uur, en voor deeltjes van 1 tot 10 μm van tien tot honderd uur. WHITBY (1973) geeft aan dat voor submicrone deeltjes van 0,01 tot 0,1 μm de verblijftijd varieert van een uur tot een tiental uren. Gezien de korte periode dat het verkeersaerosol van het atmosferische achtergrondsaerosol kan worden onderscheiden, is het onderhavige onderzoek geconcentreerd rond een vers verkeersaerosol. De leeftijden van de gemonsterde aerosolen variëren van ongeveer tien seconden tot drie en een halve minuut.

1.1. DOELSTELLINGEN VAN HET ONDERZOEK

De oorspronkelijke opzet van dit onderzoek was, om naast de verkeersemissie, ook aandacht te besteden aan de deeltjesgrootteverdeling van aerosolen veroorzaakt door huisverwarming en de industrie. Het was de bedoeling een beeld te verkrijgen van het totale stedelijke aerosol. Vanwege de breedheid van het onderwerp stedelijke aerosolen is het onderzoek echter beperkt tot het eerste deel van de oorspronkelijke opzet namelijk het verkeersaerosol.

Over de emissie van submicrone verkeersaerosolen is niet zoveel bekend. In situ metingen van de emissie ontbreken. De deeltjesgrootteverdeling en de concentraties langs wegen zijn iets minder onbekend terrein. WILLEKE, WHITBY, e.a. (1974, 1975) hebben, met een vergelijkbaar meetsysteem als het in het onderhavige onderzoek gebruikte, metingen van deeltjesgrootteverdelingen uitgevoerd in een stad. Over verkeersemissies zeggen deze getallen echter weinig, aangezien contaminatie vanuit andere stedelijke bronnen dan verkeer niet uit te sluiten is. WHITBY, CLARK, e.a. (1975) hebben, ook met vergelijkbare meetinstrumenten, langs een snelweg midden door Los Angeles de benedenwindse concentraties gemeten. Daar er geen simultane voorbelastingsmetingen en geen verspreidingsmetingen zijn uitgevoerd wordt er door de onderzoekers geen emissies in deeltjes per afgelegde kilometer gegeven. WHITBY, KITTELSON, e.a. (1976) geven, weder-

om met vergelijkbare meetinstrumenten, de verhoging van de concentraties benedenwinds van op loodvrije benzine rijdende auto's tijdens het sulfaat verspreidingsexperiment van General Motors. Ook hier wordt door de auteurs nog geen emissie gegeven. De door verschillende onderzoekers gemeten concentraties van aerosolen in uitlaatgassen, van onder laboratoriumomstandigheden stationair opgestelde auto's, zijn zoals in hoofdstuk zes wordt aangegeven, niet te gebruiken als het gaat om het verkrijgen van een beeld van de emissie in deeltjesaantallen per afgelegde kilometer. Vandaar dat het onderhavige onderzoek als tweeledige doelstelling heeft:

- schatting van de verkeersemissie in deeltjes per afgelegde kilometer,
- schatting in situ van de snelheid van fysisch-chemische processen die de deeltjesgrootteverdeling van een verkeersaerosol beïnvloeden. Met name gaat de aandacht uit naar de snelheden van de onderlinge botsingen van de stofdeeltjes: de coagulatiesnelheden.

Het onderhavige onderzoek is beperkt tot het submicrone deel van het deeltjesspectrum. Deze deeltjes vormen immers het grootste aantal van de emissie, zij vertonen de grootste fysisch chemische reactiesnelheden en zijn ook vanuit gezondheidskundig oogpunt interessant.

Een tweede beperking van het onderzoek is gelegen in het feit dat alleen aerosolen gemeten zijn met verblijftijd kleiner dan drie en een halve minuut. Als de verblijftijden groter worden, wordt ook de dispersie veel groter, zodat het aandeel van het verkeer in het aerosol wegvalt in de voorbelasting ten gevolge van het atmosferisch aerosol.

1.2. Wegproeven

Voor de bepaling van de emissie werd de volgende proefopzet gekozen. Op verschillende afstanden, variërend van 20 m tot 140 m van een matig drukke tweebaans verkeersweg is de deeltjesgrootteverdeling van aerosolen gemeten. De keuze van de meetplaats en de meetomstandigheden is belangrijk omdat alleen de emissie van het over de weg langsrijdend verkeer interessant is en veranderingen in de deeltjesgrootteverdeling ten gevolge van contaminatie door ander wegen of door bijvoorbeeld regen zoveel mogelijk uitgesloten moet worden. Tijdens de aerosolmetingen zijn ook verschillende meteorologische parameters zoals windsnelheid en windrichting gemeten, zodat de verblijftijden berekend konden worden. Deze variëren van ongeveer tien seconden tot ruim twee minuten. Tegelijkertijd is ook de voorbelasting gemeten zodat de concentratieverhoging ten gevolge van de emissie van het verkeer op de weg bepaald kon worden. Door een auto van waaruit een inert tracergas geloosd werd, met de verkeersstroom te laten meerijden, kan de verspreiding tijdens de metingen bepaald worden omdat de emissie van het tracergas bekend is. Uit de gemeten deeltjesgrootteverdeling kan met deze gegevens de emissie berekend worden. De schatting van de bronsterkte van de door een verkeersstroom geëmitteerde aerosolen is een nieuw element dat in de literatuur nog niet eerder gerapporteerd is. Ter

controle op de bepaling van de deeltjes emissie zijn ook simultaan loodconcentraties gemeten. Er zijn redelijk betrouwbare onderzoeken naar de emissie van lood gedaan, zodat indien de berekende loodemissie met behulp van de wegproeven overeenkomt met de literatuur, geconcludeerd kan worden dat de gevonden verdunningsfactoren voor aerosolen reëel zijn. Ter controle op de aanwijzing van het gebruikte meetinstrument, een electrische verdelings analysator, dat de deeltjesgrootteverdeling aangeeft, is het aerosol ook nog gemeten met een condensatie kernen teller, die het totaal aantal deeltjes aangeeft. Het meetprincipe van het laatste instrument is totaal verschillend van het eerste. Wanneer beide meetinstrumenten overeenkomstige concentraties aangeven kan aan de meetresultaten een grotere waarde toegekend worden.

Doordat de verblijftijd van de deeltjes varieert, omdat ze op verschillende afstanden van de weg gemeten worden, zijn er naast de verspreiding ook nog verschillende andere processen actief. De deeltjesconcentratie vermindert namelijk door coagulatie van deeltjes onderling en door depositie op de grond en het gewas. Aangezien de verspreiding bepaald is met het tracergas, kan onderzocht worden of de concentraties met een toenemende verblijftijd sneller afnemen dan alleen door de verspreiding. De invloed van de bovengenoemde drie processen: verspreiding, depositie en coagulatie kan berekend worden met een model. Met dit model is ook een betere emissieschatting mogelijk, omdat gecorrigeerd kan worden voor de verwijdering van deeltjes ten gevolge van depositie en coagulatie. Een studie waarin deze drie parameters tegelijk in één model worden beschouwd is tot nu toe nog niet uitgevoerd. De wegproeven staan in hoofdstuk zeven beschreven.

1.3. Tunnelproeven

Uit het bovengenoemde model dat de invloed van coagulatie en depositie tijdens de wegproeven beschrijft en uit de metingen blijkt, dat de invloed van depositie en coagulatie op de deeltjesgrootteverdeling van atmosferische verkeersaerosolen gering is. Om een schatting van de coagulatiesnelheid te kunnen maken aan de hand van aerosolmetingen moeten ofwel de concentraties hoger worden ofwel de verblijftijden langer. Daarom zijn er in een verkeerstunnel, in dit geval in de IJ-tunnel, metingen aan het verkeersaerosol uitgevoerd. Door de hoge concentraties en verblijftijden variërend van één tot drie en een halve minuut was de invloed van de verwijderingsmechanismen daar meetbaar. In de IJ-tunnel is een zodanige meetopzet gekozen dat de omstandigheden zo sterk mogelijk variëerden. Er is gemeten op zes verschillende uren, met een verschil in voertuigaanbod, van ongeveer met een factor twee bij iedere meting. Doordat evenals bij de wegproeven, vanuit een aan het verkeer deelnemende auto een inert tracergas geloosd is, kunnen de dispersie en de verblijftijden bepaald worden. Door de keuze voor een zo groot mogelijke variatie in voertuigaanbod, ontstaat tussen de verschillende metingen een zo groot mogelijk verschil in verblijftijden en andere omstandigheden, zodat de invloed van deze parameters op de deeltjes-

grootteverdeling zo goed mogelijk geschat kan worden.

Met behulp van de in hoofdstuk zeven berekende emissiegegevens, kan aan de hand van de gemeten evenwichtsconcentratie in de IJ-tunnel onder de verschillende omstandigheden de coagulatieconstante berekend worden. Anderzijds kan uitgaande van de theoretisch berekende snelheden van depositie en coagulatie uit de gemeten evenwichtsconcentraties met behulp van een model dat het ingestelde evenwicht beschrijft ten gevolge van de toename van de concentratie door de emissie van het verkeer en de afname van de concentratie door verversing, depositie en coagulatie een schatting gemaakt worden van de emissie in deeltjesaantallen per afgelegde kilometer door het verkeer. Ook de onderlinge beïnvloeding van de verschillende verwijderingsprocessen kan hiermee gesimuleerd worden. De tunnelproeven staan in hoofdstuk acht beschreven.

1.4. Andere metingen

Naast deze twee bovenbeschreven onderzoeksdoelstellingen is een afgeleide doelstelling het verkrijgen van inzicht in de electrische verdelings analysator die gebruikt is om de deeltjesgrootteverdeling te meten en het uitproberen van dit instrument. In hoofdstuk vier wordt een beschrijving gegeven van dit instrument en de principes die aan de metingen ten grondslag liggen en in hoofdstuk vijf worden de proeven beschreven die uitgevoerd zijn om dit instrument aan de tand te voelen. In hoofdstuk negen wordt ingegaan op de bruikbaarheid van de electrische verdelings analysator. Tevens wordt in dit hoofdstuk ingegaan op verschillende manieren van emissiemeting. In het laatste hoofdstuk – tien – worden de uit dit onderzoek getrokken conclusies weergegeven.

In deze inleiding zijn al allerlei begrippen gebruikt die pas in hoofdstuk twee aan de orde zullen komen. Dit gaat over de verschillende met dit onderzoek samenhangende theoretische aspecten. Het onderwerp van het onderhavige onderzoek is uitgebreid en complex. Het omvat verschillende vakgebieden, vandaar dat het in het beperkte kader van een dissertatie te ver zou voeren alle onderwerpen uitgebreid te behandelen. Voorzover het voor een goed begrip van de onderzoeksresultaten nodig is, wordt de theorie kort samengevat en wordt verder verwezen naar de betreffende literatuur. In Hoofdstuk drie wordt nog ingegaan op de monstername van kleine deeltjes. Tot slot nog de opmerking dat het verzamelen van de literatuur voor dit proefschrift in mei 1979 is afgesloten.

2. ATMOSFERISCH GEDRAG VAN VERKEERSAEROSOLEN

In dit hoofdstuk worden de verschillende processen besproken die hun invloed hebben op de deeltjesgrootteverdeling van verkeersaerosolen. In figuur 1 wordt hiervan een schematisch overzicht gegeven. Deze figuur valt uiteen in twee verschillende delen. Eén is het emissiesysteem, terwijl het tweede de processen beschrijft die zich in de atmosferische grenslaag afspelen.

Het emissiesysteem omvat meer dan elleen de aerosolen die uit de uitlaat komen, want ook door de slijtage van banden en remmen worden aerosolen gevormd. Verder worden ook de invloed die een eventuele condensatie heeft op kernen, vlak nadat het aerosol de uitlaat heeft verlaten, en de coagulatie van het aerosol, gedurende de fractie van een seconde, dat de opmenging plaatsvindt door voornamelijk de mechanische turbulentie van het verkeer, beiden tot het emissiesysteem gerekend. Immers voor de receptor – de mens die het verkeersaerosol inademt – is het tamelijk onbelangrijk waar het geïnhaleerde aerosol precies gevormd is. Of het net buiten de uitlaat of net daarbinnen gevormd is, voor de receptor is het een verkeersaerosol. Vanuit beleidsoogpunt is het belangrijk om de emissiesterkte te kennen, die de concentratie en deeltjesgrootten oplevert die door de mens in de buurt van een weg ingeademd kunnen worden. Dit is een reden om de bovengenoemde condensatie en coagulatie gedurende de eerste fractie van de opmenging achter de auto tot het emissiesysteem te rekenen.

Zoals in figuur 1 te zien is en zoals in 2.1 wordt uiteengezet zijn er veel processen die hun invloed hebben op de vorming van het aerosol in de auto. Door de hoge concentratie aan deeltjes in het uitlaatsysteem is de coagulatie een belangrijk proces dat de deeltjesgrootteverdeling beïnvloedt. De coagulatie gedurende de eerste fractie van de opmenging is dan ook niets anders dan een – snel aflopende – voortzetting van een bestaand proces. Deze zal dan ook geen doorslag gevende rol hebben op de deeltjesgrootteverdeling en de vorm van het geëmitteerde verkeersaerosol. In het eerste deel van hoofdstuk twee wordt naast de vorming van aerosolen door verbranding in de motor tevens die door slijtage van de banden en remmen genoemd. De eigenlijke emissies in deeltjes per afgelegde kilometer per voertuig worden niet tot deze processen gerekend en apart beschreven in hoofdstuk zes.

Daarna wordt ingegaan op de processen die een rol spelen in de atmosferische grenslaag. Het onderscheid tussen de mechanische turbulentie door het verkeer en de atmosferische turbulentie in de grenslaag is in de praktijk niet zo scherp te stellen als in figuur 1 geschetst is. Dit schema is dan ook meer bedoeld om een indruk te geven van de verscheidenheid van processen.

Deze processen in de atmosferische grenslaag worden onderscheiden in twee categoriën. Namelijk processen die, grotendeels onafhankelijk van de atmosferische situatie, voortkomen uit het karakter van aerosolen en de processen die voornamelijk bepaald worden door specifieke meteorologische en atmosferische omstandigheden. Tot de eerste categorie worden de coagulatie, depositie en

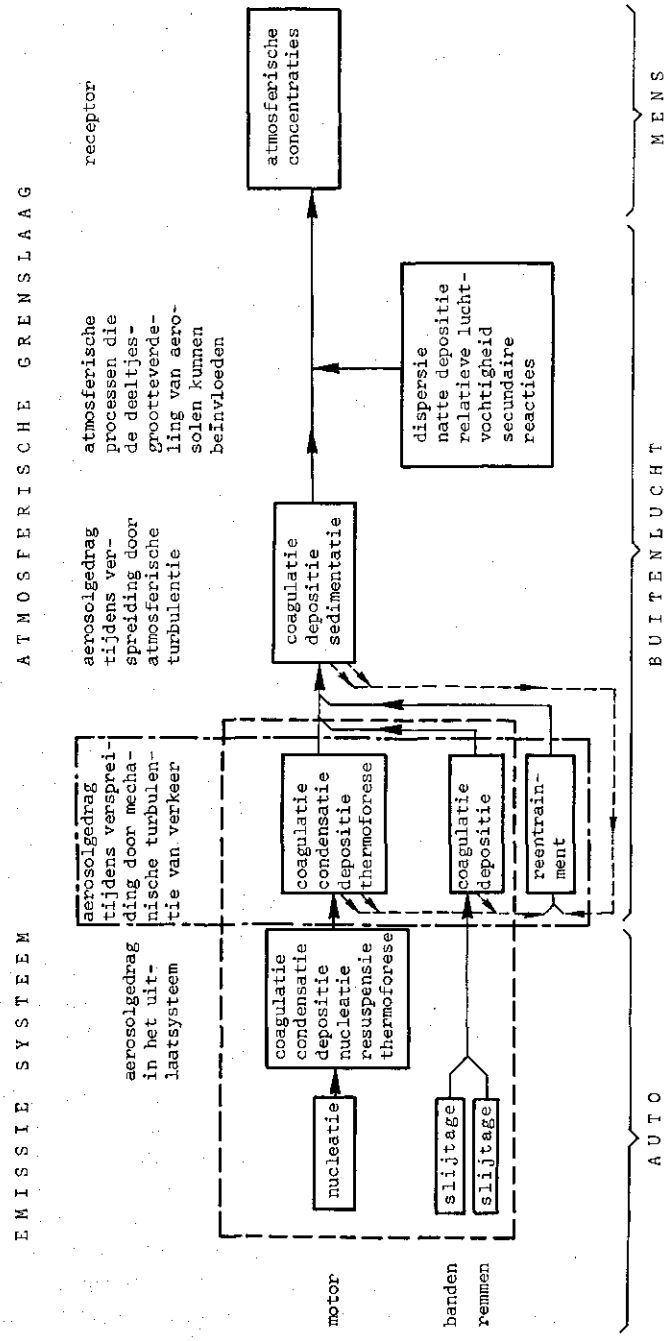


FIG. 1. Schema van processen die de deeltjes grootte verdeling van verkeersacrosolen kunnen beinvloeden.

sedimentatie gerekend. De tweede categorie omvat dispersie, de invloed van de relatieve luchtvochtigheid, secundaire reacties en natte depositie. De reentrainment, het opwervelen van deeltjes door voornamelijk de turbulentie van het verkeer, wordt aan het eind van dit hoofdstuk besproken.

2.1. Vorming van aerosolen door motorvoertuigen

2.1.1. *Vorming door verbrandingsprocessen*

De emissie van aerosolen door motorvoertuigen vormt naast natuurlijke omzettingen en ruimteverwarming één van de belangrijkste bronnen van submicrone aerosolen. Bij de vorming van deze deeltjes in de automotor spelen vele processen een rol. Om te beginnen is de brandstofsamenstelling van belang voor de massa van de aerosolemissie. Na de verbranding in de cylinders van het brandstof-lucht mengsel zijn het met name nucleatie, condensatie, coagulatie, depositie en thermoforese, die in de uitlaat vorm en concentratie van het geëmitteerde aerosol bepalen. Tenslotte zijn ook de rijstijl, leeftijd van het uitlaatsysteem en belasting van de motor van belang voor de uiteindelijke deeltjesgrootteverdeling van het aerosol. Het bovenstaande zal nu iets nader worden uitgewerkt.

De in Nederland gebruikte benzines bestaan uit een mengsel van koolwaterstoffen. Deze hebben een ketenlengte van vier tot twaalf koolstofatomen of een ringstructuur. Als anti-klopmiddel wordt vaak lood toegevoegd in de vorm van tetraethyllood of tetramethyllood. De aerosolemissie van auto's die op loodhoudende benzines rijden, is – op massa basis berekend – groter dan van auto's die op loodvrije benzine rijden (Ter Haar, Lenane, e.a., 1972). Om te voorkomen, dat het lood na de verbranding van de benzine in de cylinder achterblijft, worden organische chloor- en broomverbindingen toegevoegd. Daardoor wordt het lood grotendeels in vluchtige loodchloriden en loodbromiden omgezet en in deze vorm met de verbrandingsgassen afgevoerd. Andere veel voorkomende toevoegingen aan benzine zijn: stoffen die de harsafzettingen in de cylinders moeten verminderen, respectievelijk antioxidantia en koper deactivatoren; verder stoffen, die de ijsafzetting in de carburateur verhinderen en oppervlakte actieve stoffen, vaak fosfaten, om er zeker van te zijn, dat het eventueel in de cylinders achterblijvende lood als loodfosfaat de verbrandingskamers verlaat. Wanneer alleen deze middelen aan de benzine zouden worden toegevoegd, zonder dat er lood werd bijgemengd, is de emissie aan aerosolen hoger dan voor een benzine zonder deze toevoegingen (Ter Haar, Lenane, e.a., 1972). Deze auteurs rapporteren ook een verhoogde emissie bij een toenemend aromaatgehalte van de benzine. Op de invloed van het lood wordt hieronder nog teruggekomen. Voor een gedetailleerde behandeling van de chemie van de verbrandingsprocessen wordt verwezen naar Edwards (1973). Ook voor de gegevens betreffende andere emissies dan aerosolen zoals stikstofoxiden, koolwaterstoffen en koolmonoxide wordt verwezen naar de literatuur, bijvoorbeeld: Matula (1973), Newhall (1973), Lee, Patterson e.a. (1971) en May, Plasmans e.a. (1973). Er is weinig

bekend over de deeltjesgrootteverdeling van het aerosol als het de motor verlaat en de uitlaatpijp in komt. FRIEDLANDER (1977) neemt aan, dat de eerste deeltjes gevormd worden door homogene nucleatie, zodat zeer hoge concentraties submicrone deeltjes ontstaan. Dit zijn voornamelijk koolstofdeeltjes (GANLEY en SPRINGER, 1974). Zij botsen onderling en door coagulatie treedt een verandering in de deeltjesgrootteverdeling op. GANLEY en SPRINGER (1974) geven de gevormde deeltjesmassa als functie van de uitlaat temperatuur voor loodvrije benzine (Indolene HO 0), gewone loodhoudende benzine met een loodgehalte van 0,57 g/dm^3 en loodhoudende benzine met een loodgehalte van 0,84 g/dm^3 (Indolene HO 30), zie figuur 2. Daarbij blijkt, dat de loodvrije benzine bij een temperatuur onder 100°C een condensatie plaats vindt en de emissie een factor vier groter wordt. De totale emissie van loodvrije benzine is echter aanmerkelijk minder dan die van loodhoudende zoals in figuur 2 te zien is. Bij de gewone loodhoudende benzine treedt bij een temperatuur tussen 300 en 400°C een condensatie op van de loodverbindingen. Dit zijn met name PbClBr en $PbO.PbBr_2$ en verder $PbCl_2.PbClBr$ voor de benzine met 0,8 gram lood per liter. Bij een afgastemperatuur onder 100°C zal op het loodhoudende aerosol nogmaals condensatie plaats vinden. De benzine met een hoger loodgehalte heeft ook een hogere aerosolemissie. De condensatie temperatuur van de loodverbindingen is anders dan die van de loodverbindingen die vrijkomen bij de verbranding van de gewone loodhoudende benzine, omdat de gevormde loodverbindingen niet hetzelfde zijn. De processen die plaats vinden, zijn dezelfde.

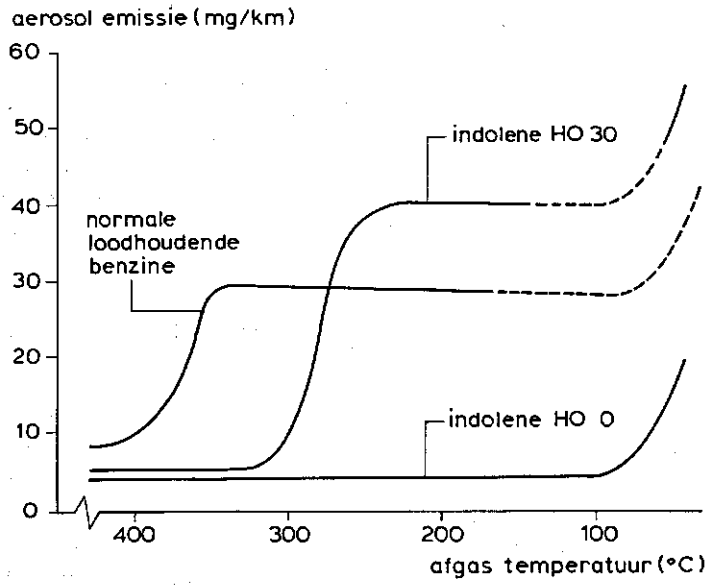


FIG. 2. Aerosol emissie in gram per afgelegde kilometer, bij een kruissnelheid van 88 km/uur, als functie van de uitlaat temperatuur. Ontleend aan Ganley en Springer (1974).

Schattingen van de onderlinge snelheden van de verschillende processen en de deeltjesgrootteverdeling van de gevormde aerosolen zijn vrijwel niet te geven. Als de concentraties en de grootteverdeling op de verschillende plaatsen in de uitlaat bekend zouden zijn, zou er in principe een schatting van deze processen kunnen plaatsvinden. Het is om verschillende redenen – waar hieronder nog nader op ingegaan wordt – zeer moeilijk, zo niet onmogelijk, om met de huidige apparatuur een deeltjesgrootteclassificatie uit te voeren en de concentratieverdeling in het uitlaatsysteem op te meten. Behalve de theoretisch moeilijk te beschrijven snelheid bij de vormingsprocessen van nucleatie en condensatie van allerlei onbekende stoffen speelt als verwijderingsmechanisme depositie een belangrijke rol. Aangezien het oppervlak van het uitlaatsysteem, zeker na verloop van enige tijd, niet glad meer is, is het moeilijk om een depositiesnelheid te geven. Tevens kan ook thermoforese als oorzaak van depositie zeker niet uitgevlakt worden, aangezien de temperatuur van de uitlaat overal lager is dan van het afgas. Volgens SAMPSON en SPRINGER (1973) varieert dit verschil van 100°C tot 170°C. Verder is een complicerende factor, dat het volume van de afgassen en de gassnelheden niet constant zijn. De belasting van de motor en het toerental heeft daar zijn invloed op (SAMPSON en SPRINGER, 1973). Vandaar, dat bij metingen aan een uitlaatsysteem vaak een buffervat wordt gebruikt om de fluctuaties door volumevergroting te dempen. Dit beïnvloedt echter wel de verblijftijden in het systeem en ook de turbulentie en daarmee de representativiteit van de gemeten deeltjesgrootteverdeling. Bij deze hoge deeltjesconcentraties is ook de coagulatie, ondanks de relatief korte verblijftijden, een belangrijk verwijderingsmechanisme.

Een tweede complicerende factor is het feit, dat GANLEY en SPRINGER (1974) ontdekten, dat na de verdunning de aerosolvorming vaak gewoon doorgaat. De gemeten aerosolmassa, steeds bij een en dezelfde gastemperatuur, nam bij een verdunning tot 11% niet af tot 11% maar echter tot 50%. Het proces, dat hierbij plaats vindt, is duidelijk een ander dan coagulatie, want bij coagulatie verandert de totale deeltjesmassa niet. Het feit, dat na verdunning de oorspronkelijke concentratie niet eenvoudig uitgerekend kan worden, maakt een deeltjestelling er niet gemakkelijker op, want verdunningen zijn bij deze deeltjesaantallen noodzakelijk in verband met het beperkte concentratiebereik van de apparatuur. FISSAN en FRANZEN (1978) geven aan, dat de concentraties aan gasvormige verontreiniging een zeker niet te verwaarlozen invloed hebben op de gemeten aerosolmassa. Door gasreacties aan het filter gebruikt voor de aerosol monstername, kan een overschatting van de gemeten aerosolmassa ontstaan.

Uit het bovenstaande zal het duidelijk zijn, dat meting van de deeltjesgrootteverdeling van een aerosol aan het uitlaatsysteem van een auto op een testbank om de emissie te schatten, aan zeer veel voorwaarden moet voldoen, wil er sprake zijn van validiteit met betrekking tot de werkelijk in de atmosfeer te verwachten emissie. Voor een overzicht van de emissie gemeten aan uitlaatsystemen en emissies bepaald uit veldmetingen wordt verwezen naar tabel 10. Bovenstaande problemen hebben er toe geleid, dat men bij het Environmental Protection Agency nog geen bevredigende meting van deeltjesgrootteverdelingen voor sub-

microne aerosolen direct aan een uitlaat heeft kunnen verrichten (ELLESTADT, 1977). Zoals uit het geciteerde werk van SAMPSON en SPRINGER (1973) en GANLEY en SPRINGER (1974) blijkt, is de totale emissie bij gebruik van benzines zonder lood aanmerkelijk minder dan bij het gebruik van loodhoudende benzines. Ditzelfde is ook gevonden door TER HAAR, LENANE, e.a. (1972) en blijkt ook uit metingen met een electrische verdelingsanalysator, gepresenteerd door WHITBY, CLARK, e.a. (1975). Ook alle andere onderzoeken, geciteerd door SPRINGER (1973) geven eenzelfde beeld te zien.

De rijstijl heeft grote invloed op de emissie van aerosolen door auto's. Het in figuur 2 gegeven beeld voor de emissie verschuift ten opzichte van de $\times$-as evenwijdig omhoog of omlaag afhankelijk van het feit of de kruissnelheid groter is dan de referentiesnelheid van 88 km/uur of kleiner. Wanneer de emissie onder de cyclische testcondities, waarin een gemiddelde stadsrit met optrekken, rijden en afremmen wordt gesimuleerd, wordt bekeken ten opzichte van de emissie met een bepaalde kruissnelheid, dan is hij een factor 4 à 6 groter (GANLEY en SPRINGER, 1974). Wanneer de motor zwaar belast wordt bij sterk optrekken of afremmen, kan de emissie zelfs nog groter worden, doordat deeltjes die oorspronkelijk in de uitlaat gedeponeerd zijn resuspenderen en alsnog geëmitteerd worden. TER HAAR, LENANE, e.a. (1972) hebben bijvoorbeeld aangetoond, dat gemiddeld 29% van het in de benzine aanwezige lood geëmitteerd wordt onder de officiële Amerikaanse testvoorwaarden, dat 25% in de auto, voornamelijk in de motor en motorolie, blijft zitten en dat 46% van het lood bij sterk optrekken en afremmen met name als deeltjes veel groter dan 1 μm geëmitteerd wordt. LITTLE en WIFFEN (1978) vonden ook sterk verhoogde loodconcentraties – dus een grotere emissie – wanneer de motor zwaarder belast was tengevolge van een helling in de weg. Ook bij hoge kruissnelheden rond 100 km/uur kan de emissie aan lood hoger zijn dan het loodgehalte van de benzine, zodat veelal tengevolge van mechanische trillingen een afbraak en resuspensie van de depositieproducten in de uitlaat moet zijn opgetreden (BOYER en LAITINEN, 1975). Ook de leeftijd van het uitlaatsysteem heeft invloed op de loodemissie (TER HAAR, LENANE, e.a., 1972). Voor de geëmitteerde deeltjesgrootteverdeling van het submicrone verkeersaerosol wordt verwezen naar hoofdstuk 6.1.

LARESGOITI, LOOS en SPRINGER (1977) hebben de aerosolvorming in een dieselmotor onderzocht en daarbij bleek, dat bij uitlaattemperaturen tussen 150°C en 300°C geen duidelijke condensatie optrad bij een kruissnelheid van 35 tot 96 km/uur. Verdunning van het aerosol met een bepaalde factor bleek een even zo grote invloed te hebben op de gemeten deeltjesconcentratie. De deeltjesgrootteverdeling, gemeten met een optische deeltjesteller, bleek niet afhankelijk te zijn van de afgastemperatuur. Aan de vorming van deze aerosolen liggen kennelijk minder gecompliceerde processen ten grondslag dan aan de aerosolvorming in benzinemotoren. De totale massa emissie van een diesel is wel een factor vijf hoger dan de massa, die door een benzinemotor met loodhoudende benzine onder verder gelijke omstandigheden geloosd wordt. Voor de invloed op de emissie van de rijstijl en de belasting van de motor wordt verwezen naar LARESGOITI, LOOS en SPRINGER (1977). De aerosolen die tezamen deze massa vormen,

hebben grotendeels een diameter die groter is dan 1 μm. Uit tabel 10 in hoofdstuk zes blijkt echter dat er weinig verschil gevonden wordt, in de aantals emissie van submicrone aerosolen, tussen auto's met diesel- en benzinemotoren. Aangezien de belangstelling in deze studie uitgaat naar de aantallen van de submicrone deeltjes, wordt verder geen onderscheid meer gemaakt tussen aerosolen van diesels of benzinemotoren, ook al omdat auto's met benzinemotoren nog verre de overhand hebben op die met dieselmotoren.

De verschillende processen, die van belang zijn bij de vorming van auto aerosolen ten gevolge van verbranding, zijn vrij uitgebreid beschreven, omdat ze van belang zijn om een begrip te kunnen vormen van de verschillen in concentraties en deeltjesgrootteverdeling, die ze tot gevolg kunnen hebben. De absolute concentraties in het uitlaatsysteem zijn in dit onderzoek van minder belang evenals de vraag of alleen in de uitlaat of ook in de eerste seconde na de emissie tijdens de turbulente verdunning achter de auto nog aerosolen gevormd worden c.q. de grootteverdeling nog in belangrijke mate wordt beïnvloed, omdat de in dit proefschrift gemeten aerosolconcentraties met name receptor georiënteerd zijn. Aan de hand van metingen op verschillende afstanden van een weg wordt de deeltjes emissie berekend, zoals hij ook van invloed is op de belasting van het milieu.

2.1.2. *Vorming door slijtage van de banden*

DANNIS (1974) geeft aan, dat de slijtage van banden qua gewicht bepaald niet te verwaarlozen is. Over de gehele levensduur van een band van zo'n 40.000 kilometer is er een verlies van 3,5 kg, hetgeen neerkomt op 90 mg/km per band. Voor één auto zou dit neerkomen op 350 mg/km. Dit is meer dan de totale emissie aan aerosolen ten gevolge van verbranding, zoals gemeten door TER HAAR, LENANE, e.a. (1972), SAMPSON en SPRINGER (1973), GANLEY en SPRINGER (1974) en zelfs meer dan de emissie van een dieselmotor (LARESGOITI, LOOS, e.a., 1977). De deeltjesgrootteverdeling is echter zodanig, dat het grootste gedeelte van de rubberverliezen niet eens in de lucht komt (CADLE en WILLIAMS, 1978). DANNIS (1974) geeft een massa mediane diameter van 13 tot 35 μm bij de monstername van rubberdeeltjes in de lucht vlak achter een band op 5 cm boven het oppervlak van de weg. In zekere zin leidt deze experimentele opzet tot een onderschatting van de diameters, omdat een juiste monstername van deeltjes groter dan 20μm zeer moeilijk is. PIERSON en BRACKACZEK (1974) hebben getracht een materiaalbalans op te stellen voor de deeltjesverliezen van banden door middel van gelijktijdige monstername van de lucht en het verzamelen van neergeslagen aerosoldeeltjes in de goten in een tunnel. De aerosoldeeltjes in de goten hadden een massa mediane diameter van 130 tot 200 μm. De totale massa van de deeltjes door bandenslijtage in de goten was 15 à 20 keer groter dan die in de lucht. Andere metingen van deze auteurs langs een weg leverden een massa mediane diameter van 50 tot 70 μm op. Ook hun metingen van de rubberconcentraties in de grond naast een weg tonen aan, dat dit aerosol zeer snel uitzakt. Ze geven aan, dat de concentratie aan rubber in de grond op 40 m afstand van de weg tot nul gedaald is. CADLE en WILLIAMS (1978) hebben bij vergelijkbare

metingen gevonden, dat op 30 m afstand geen rubber meer aantoonbaar was. Uit deze metingen blijkt, dat het grootste gedeelte (93–98%) van de aerosolen, die ontstaan ten gevolge van de slijtage van banden vlak naast de weg terechtkomen. Slechts 2 tot 7% (CADLE en WILLIAMS, 1978) is gedurende iets langere tijd in de lucht. Dit komt neer op een emissie van 2 tot 5 mg/km per auto. Voor het grootste gedeelte zijn deze deeltjes groter dan 1 μm, zodat ze voor het onderhavige onderzoek niet van belang zijn.

CADLE en WILLIAMS (1978) geven aan, dat bij de slijtage van banden ook submicrone deeltjes vrijkomen. Uit metingen met een condensatiekernenteller en een electrische verdelings analysator komen ze op een emissie van 3 E8 deeltjes per afgelegde kilometer, met een geometrisch mediane diameter in de buurt van 0,01 μm. Deze deeltjesemissie valt in het niet vergeleken met de emissie van 1 E15 tot 1 E16 deeltjes per afgelegde kilometer tengevolge van de verbrandingsprocessen (zie tabel 10). De submicrone deeltjesemissie door banden kan gevoegelijk verwaarloosd worden. Naast de deeltjesvormige emissie maken CADLE en WILLIAMS (1978) ook nog melding van een gasvormige emissie van koolwaterstoffen en zwavelverbindingen bij de slijtage van banden.

2.1.3. *Vorming door overige processen*

Ook door remmen – slijtage van remschijven en remblokjes – ontstaat een bepaalde aerosolemissie. Voor de hiervan te verwachten emissies en grootteverdeling wordt verwezen naar JACKO en DUCHARME (1973). Aan de hand van het feit, dat het hier een mechanisch proces betreft, kan voorondersteld worden, dat de deeltjes in het algemeen groter zullen zijn dan 1 μm (FRIEDLANDER, 1977). Net als bij de slijtage van banden zullen bij verhitting waarschijnlijk ook submicrone deeltjes ontstaan. Voor het onderhavige onderzoek zullen ze echter van weinig belang zijn, aangezien de metingen aan doorgaande verkeersstromen hebben plaats gevonden.

Het tweede proces, dat onder dit hoofdstuk te rekenen valt, betreft niet de vorming van deeltjes in letterlijke zin, maar de opwerveling van eerder uitgezakte deeltjes tengevolge van de turbulentie van de auto's. Dit proces wordt verder omschreven met het begrip reentrainment, aangezien dit woord in de Engelse literatuur een ruimere betekenis heeft dan opwervelen. In onderdeel 2.8 komt dit uitgebreid aan de orde.

2.2. VERSPREIDING VAN HET VERKEERSAEROSOL VANAF DE WEG

In dit onderdeel wordt eerst de verspreiding beschreven met een lijnbronmodel, gebaseerd op de gaussische theorie, aan de orde. Daarna wordt de verspreiding met een diffussiemodel, gebaseerd op de gradiënttheorie, behandeld. Tenslotte worden enige problemen en voorwaarden aan deze modellen aangestipt.

Een ander model, dat wel eens gebruikt wordt, is een doosmodel (WHITBY, CLARK, e.a., 1975). Daarbij wordt de luchtverontreiniging homogeen gemengd voorondersteld over een bepaalde hoogte. Daar dit een vrij primitief model is om

de verspreiding vlak bij een weg te beschrijven, met als nadelen de aanname van een constante windsnelheid met de hoogte en een arbitraire keuze van de menghoogte, wordt er hier niet verder op ingegaan.

2.2.1. *Lijnbronmodel volgens de gaussische theorie*

CALDER (1973) geeft een formule voor een lijnbronmodel volgens de gaussische theorie. Daarbij wordt de concentratie op grondniveau berekend. De hoek van de windrichting en de wegas kan tussen 15 en 165 graden zijn, zonder dat de berekende concentraties afwijken van de theoretisch juiste oplossing. Deze oplossing is gevonden door de integratie van een oneindig aantal puntbronnen over de y-richting van $-\infty$ naar $+\infty$. Op dit laatste principe is ook het model Hiway van het Environmental Protection Agency gebaseerd (ZIMMERMAN en THOMPSON, 1975 en CHOCK, 1977). Uitgebreid over alle mogelijke meethoogten wordt de formule van CALDER:

$$c_{\phi,x,z} = \frac{Q}{\sin\phi \cdot u \cdot \sigma_z \cdot (2\cdot\pi)^{0,5}} \cdot \left\{ \exp - \left(\frac{z-H}{\sqrt{2}\cdot\sigma_z} \right)^2 + \exp - \left(\frac{z+H}{\sqrt{2}\cdot\sigma_z} \right)^2 \right\} \qquad 1$$

Hierbij wordt σ_z op de loodrechte afstand x_0 tot de weg berekend, waarbij $x_0 = x \cdot \sin\phi$. Een van de nadelen van dit model is, dat de windsnelheid met de hoogte in werkelijkheid niet constant is. Uit metingen van DRIVAS en SHAIR (1974) met een puflijnbron van zwavelhexafluoride bleek, dat op 400 m afstand van de emissielijn de vorm van de verkregen concentratie curve als functie van de tijd nog niet noemenswaard afwijkt van die welke met een gaussische verspreiding te berekenen is. Op grotere afstanden gaat deze curve echter belangrijk afwijken van de gaussische, omdat de transportsnelheden op verschillende hoogten niet hetzelfde zijn. Dit laatste is een van de vooronderstellingen van het gaussisch model.

2.2.2. *Lijnbronmodel volgens de gradiënttheorie*

CALDER (1949) geeft een tweedimensionaal model voor de verspreiding van luchtverontreiniging uit een grondbron tengevolge van diffusie en transport door de wind boven ruwe en gladde oppervlakken. Dat de oplossing van Calder nog steeds niet aan belang heeft ingeboet, blijkt wel uit het feit, dat deze nog steeds als model gebruikt wordt om de verspreiding te beschrijven, zoals bijvoorbeeld door MALDONADO en BULLIN (1977):

$$C_{x,z} = \frac{Q\cdot a}{u_1 \cdot \Gamma(b)} \cdot \left(\frac{u_1}{a^2 \cdot k_1 \cdot x} \right)^b \cdot \exp\left(- \frac{u_1 \cdot z^a}{a^2 \cdot k_1 \cdot x} \right) \qquad 2a$$

$$a = c - d + 2 \qquad 2b$$

$$b = (c + 1)/(c - d + 2) \qquad 2c$$

waarbij het windsnelheidsprofiel en de diffusie coëfficiënt op hoogte z respectievelijk gegeven worden door:

$$u_z = u_1 \cdot z^c \qquad 3$$
$$k_z = k_1 \cdot z^d \qquad 4$$

Zoals door KAISER (1959) wordt aangegeven, is de macht van z bij de berekening van k_z gelijk aan 1-p en niet gelijk aan een willekeurige waarde, zoals MALDONADO en BULLIN (1977) aangeven. Wanneer de windsnelheid als een logaritmisch profiel wordt beschreven, is, weer volgens KAISER (1959), k_z gelijk aan $\kappa \cdot u* \cdot z$. Concentratieberekeningen met formule 2 kunnen vrij eenvoudig op de moderne electronische rekenmachines uitgevoerd worden. Deze wijze van berekening van de verspreiding heeft met de toenemende rekencapaciteit van de computers steeds meer mogelijkheden gegeven ook minder ideale gevallen met behulp van een numerieke benadering op te lossen. RAGLAND en DENNIS (1975) presenteren een driedimensionaal verspreidingsmodel voor een puntbron met een variabele windsnelheid en diffusie coëfficiënt met de hoogte. RAGLAND en PIERCE (1975) beschrijven een vergelijkbaar model voor de schatting van luchtverontreinigingsconcentraties langs een weg. De werkwijze van bovengenoemde auteurs is gevolgd bij het beschrijven van de verspreiding in een model op grond van de gradiënttheorie in 7.2.1.

Eigenlijk is formule 1 voor de verspreiding van een lijnbron op grond van de gaussische theorie een bijzonder geval van de verspreiding volgens de gradiënttheorie. Als het windsnelheidsprofiel en de diffusie coëfficiënt constant zijn met de hoogte en de emissie vanuit een grondbron plaatsvindt, kan σ_z geschreven worden als: $(2 \cdot k_z \cdot x/u)^{0,5}$. De berekende concentraties met formule 1 en 2 zijn dan identiek. Wanneer de σ_z niet een lineaire relatie met de afstand tot de weg vertoont en het geen grondbron betreft, kan het voordelen bieden om formule 1 te gebruiken, tenminste als het windsnelheidsprofiel niet zo belangrijk is. Als dit laatste wel het geval is, zal een uitgebreider model op grond van de gradiënttheorie zoals dat van RAGLAND en PIERCE (1975), met een qua verspreiding analoge variant, die in 7.2 beschreven is, de voorkeur verdienen.

2.2.3. *Beperkingen aan de modellen*

Met name aan de toepasbaarheid van het gaussische verspreidingsmodel zijn nogal wat beperkende bepalingen verbonden. Volgens K.N.M.I. (1974) moet de gemiddelde windsnelheid groter zijn dan 1 m/s. Verder moet er sprake zijn van een stationaire atmosfeer, een homogene windrichting en windsnelheid en ook de aard en mate van turbulentie moeten overal gelijk zijn. Ook wordt door K.N.M.I. (1974) aangegeven, dat de hoek tussen de windrichting en de wegas niet kleiner mag zijn dan 45 graden. Dit laatste bezwaar is grotendeels ondervangen door de verbetering van CALDER (1973) van de oudere versie van het lijnbronmodel door Turner. Deze laatste versie wordt nog door het K.N.M.I. (1974) gepresenteerd. De hoek tussen windrichting en wegas mag natuurlijk niet nul worden. Berekeningen van CALDER (1973) lieten zien, dat bij een hoek $\phi = 15$ graden, de oplossingen verkregen met 1 nog gelijk zijn aan de resultaten verkregen door integratie van een oneindig aantal puntbronnen.

Wat betreft het model, gebaseerd op de gradiënttheorie, geldt, dat de windsnelheid en de turbulentie met de hoogte mogen variëren. Er moet wel sprake zijn

van een zekere windsnelheid en een homogene windrichting. De eis van een homogene windrichting is voor een puntbron echter veel strikter dan voor een lijnbron, gezien de uitmiddeling, die er in het laatste geval plaatsvindt.

Een ander belangrijk verschijnsel, dat zich bij de verspreiding van een aerosol van een weg voordoet en dat niet in het model ingebracht is, is de initiële menging tengevolge van de turbulentie van de auto's. Metingen van CHOCK (1977) tijdens de sulfaatverspreidingsproeven van General Motors hebben bij stabiele, neutrale en onstabiele omstandigheden een initiële σ_z opgeleverd van ongeveer 1,2 m. In het eigen model wordt de initiële menging als een lozing over een traject van 0 tot H m ingebracht (zie 7.5.1.3.). In het model, dat door formule 2 beschreven wordt, is dit niet mogelijk, omdat de lozing vanaf een grondbron plaatsvindt. MALDONADO en BULLIN (1977) corrigeren voor de initiële menging door uit te gaan van een virtuele bron op een bepaalde bovenwindse afstand van de weg.

2.3. INVLOED VAN RELATIEVE LUCHTVOCHTIGHEID

Hoewel de invloed van de relatieve luchtvochtigheid op de submicrone aerosolen vanwege de experimentele opzet en om hieronder genoemde redenen gering is, wordt in dit onderdeel de problematiek vrij uitgebreid behandeld, omdat het om een voor atmosferische aerosolen zeer wezenlijk en nog grotendeels theoretisch niet beschreven proces gaat. FUCHS (1964) wijdt in zijn 'Mechanics of aerosols' slechts terloops aandacht aan dit probleem met de opmerking, dat de sedimentatiesnelheid van zout aerosolen groter is in een vochtige atmosfeer. TIERNY en CONNER (1967) geven aan, dat de massa van aerosoldeeltjes op filters afhankelijk is van de relatieve luchtvochtigheid. Theoretisch is de invloed van de luchtvochtigheid op vloeistofdruppeltjes onderbouwd door FRIEDLANDER (1977) en die op zout aerosolen door CINKOTAI (1971) en FITZGERALD (1975) en die op zwavelzuur aerosolen door NAIR en VOHRA (1975).

De dampspanning van een vloeistof wordt bepaald door de energie, die nodig is om een molecuul los te maken uit de aantrekkingskracht van de dichtbij gelegen moleculen. In een klein druppeltje zijn er minder moleculen in de buurt dan in een plat vlak. Daarom kan een molecuul uit een klein druppeltje makkelijker ontsnappen en is de dampspanning hoger.

Uit metingen blijkt, dat droge zoutdeeltjes vast blijven bij een langzaam toenemende relatieve luchtvochtigheid (door adsorptie kunnen zeer kleine hoeveelheden water opgenomen worden), totdat het bij een karakteristieke luchtvochtigheid water opneemt (absorptie) en een verzadigde oplossing vormt, dit effect is in figuur 3 te zien. Deze karakteristieke relatieve luchtvochtigheid is afhankelijk van het soort zout en ook de diameter van het betreffende zoutdeeltje. De diameter neemt bij de absorptie plotseling sterk toe, om bij een verdere toename van de relatieve vochtigheid weer geleidelijk door te groeien. In dit gebied van relatieve vochtigheid bestaat er een evenwicht tussen de verhoging van de dampspanning door het Kelvin effect en de verlaging van de dampspanning, doordat bepaalde stoffen opgelost zijn. Bij het verlagen van de relatieve

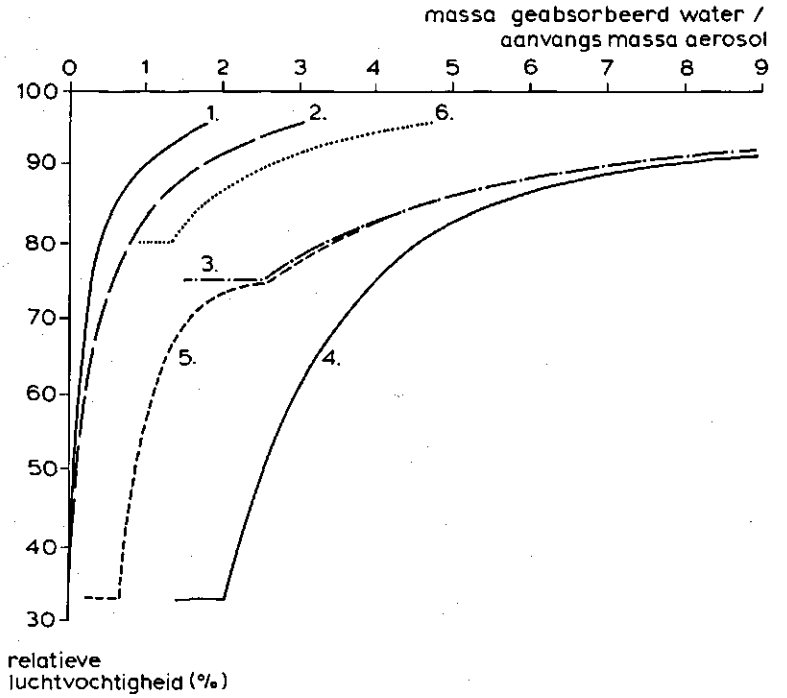


FIG. 3. Gemiddelde groeicurves van atmosferische aerosolan in vergelijking met de groeicurves van zuivere zouten (ontleend aan Winkler, 1973).
1. atmosferische aerosol
2. atmosferische aerosol (gereduceerde curve)
3. NaCl
4. $MgCl_2$
5. Mengsel NaCl : $MgCl_2$ = 1:1
6. $(NH_4)\ SO_4$

vochtigheid zal uit-kristalizatie pas bij een lagere relatieve luchtvochtigheid plaats vinden dan die waarbij de stof in oplossing ging (hysterese). Het verband tussen deeltjesdiameter en relatieve vochtigheid wordt dan niet door één maar door twee lijnen beschreven, die overigens een groot gedeelte van de curve samenvallen. De toename van de deeltjesdiameter in procenten, die verder met de term groei beschreven wordt, is niet onafhankelijk van de deeltjesgrootte. CINKOTAI (1971) geeft aan, dat natriumchloride deeltjes van 0,01 μm minder sterk groeien dan deeltjes van 0,1 μm. Ook FITZGERALD (1975) heeft berekend, dat een ammonium sulfaat deeltje van 0,02 μm tussen 84% en 99% relatieve vochtigheid een factor 1,5 groeit, terwijl een deeltje van 0,2 μm een factor 2,7 groeit.

Uit de metingen van COVERT, CHARLSON, e.a., (1972), WINKLER en JUNGE (1972), WINKLER (1973) en COOPER, BYERS, e.a., (1973) komt het bovenbeschreven gedrag van zouten duidelijk tot uiting. Boven een bepaalde karakteristieke

relatieve vochtigheid treedt een sterke groei op van de deeltjes, die daarna iets geleidelijker gaat verlopen. In de drie eerstgenoemde publicaties wordt aangegeven dat het gedrag van atmosferische aerosolen – met dezelfde apparatuur bepaald – anders is. Er vindt een meer geleidelijke groei van het aerosol plaats, die naarmate de relatieve vochtigheid de 100% nadert, steeds sneller zal verlopen. Het gedrag van het atmosferisch aerosol onder invloed van de relatieve vochtigheid is aanmerkelijk ingewikkelder dan de theorieën tot nu toe konden beschrijven. Vandaar dat WINKLER (1973) zijn metingen van de groei van atmosferische aerosolen met diameters groter dan 0,2 μm niet kon beschrijven met de theorie die de groei van zouten beschrijft. JUNGE heeft al in 1952 het idee geopperd om aerosol deeltjes opgebouwd te denken uit een onoplosbaar en een oplosbaar gedeelte. Dit is door WINKLER (1973) verder uitgewerkt. De resulterende groeicurve, die ontstaat wanneer uitgegaan wordt van twee fracties, verloopt een stuk geleidelijker dan de groeicurve van een zuiver zout. Een tweede belangrijk verschil tussen het in het laboratorium gegenereerde en het atmosferische aerosol is het feit, dat het laatste bestaat uit een mengsel van verschillende zouten en andere verbindingen. Hierbij is het van belang om een onderscheid te maken tussen twee principieel verschillende mogelijkheden: het aerosol is een extern mengsel, bestaande uit een verzameling van deeltjes met stuk voor stuk één bepaalde chemische samenstelling of het is een intern mengsel, waarbij ieder deeltje op zich een mengsel vormt van verschillende verbindingen. Uit het gedrag van een impactormengsel onder invloed van vocht kan niet zo maar een voorkeur voor één van beide mengsels uitgesproken worden. Een eventueel extern mengsel kan tengevolge van de wijze van monstername in een quasi-intern mengsel zijn veranderd. WINKLER (1973) baseert zich op twee feiten bij zijn conclusie, dat atmosferische aerosolen voornamelijk bestaan uit een intern mengsel. In de eerste plaats blijkt uit microscopische metingen van Junge van de groei van individuele deeltjes, dat deze ongeveer gelijk is aan die van een totaal monster, dat met een impactor verzameld is. Verder is de groei gemeten door COVERT, CHARLSON, e.a., (1972) en die van WINKLER (1973) veel kleiner, bij aanname van een oplosbare fractie van 0,6, dan van allerlei individuele verbindingen, die deel uitmaken van het atmosferisch aerosol ($CaCl_2$, NaCl, H_2SO_4, KCl, NH_4Cl, $(NH_4)_2SO_4$). Ook de vormingsprocessen van aerosolen wijzen in de richting van een intern mengsel. Coagulatie en condensatie of adsorptie en gas-deeltjes reacties vormen een logische verklaring voor een intern mengsel en maken het bestaan van een extern mengsel – tenzij dicht bij een bron – onwaarschijnlijk. Ondanks het bestaan van een intern mengsel hoeft de chemische samenstelling van de verschillende deeltjesgrootteklassen niet identiek te zijn. Gezien de verschillen in verblijftijden in de atmosfeer lijkt dit laatste zelfs onwaarschijnlijk. Hierdoor wordt het beschrijven van de groei onder invloed van de relatieve luchtvochtigheid nog meer gecompliceerd.

WINKLER (1973) (zie WINKLER en JUNGE, 1972) heeft met behulp van een microbalans het gedrag van impactormonsters onder invloed van vocht na kunnen gaan. Uit 28 metingen van voornamelijk continentale aerosolen kan de volgende betrekking tussen groei en relatieve vochtigheid afgeleid worden:

$$\frac{r_f}{r_o} = \left[\frac{\rho_p}{\rho_w} \cdot \left\{ \frac{0{,}14 \cdot S \cdot F(f)}{1 - f + K(f)} \right\} + 1 \right]^{0{,}333} \qquad 5a$$

Hierbij zijn de waarden van de functies F en K – die respectievelijk een maat voor de effectief opgeloste hoeveelheid stof en een correctieterm voor het niet lineaire verband tussen de opgeloste massa en de oplosbare massa weergeven – uit de metingen van Winkler afgeleid, omdat een theoretische beschrijving vooralsnog ontbreekt. S is hierbij de oplosbare fractie van de totale massa. De symbolen ρ_p en ρ_w staan voor de soortelijke massa van het deeltje en van water, en f is de relatieve luchtvochtigheid als fractie. Uit de door WINKLER (1973) getabelleerde waarden voor F(f) en K(f) is door niet lineaire regressie het verband voor het relatieve vochtigheidsgebied tussen 30% en 100% gehaald om de toepasbaarheid van formule 5a te vergroten:

$$F(f) = 0{,}13 - 0{,}86 \cdot f + 2{,}45\,(f)^2 \qquad 0{,}3 < f < 0{,}8 \qquad 5b$$
$$F(t) = 1{,}0 \qquad f \geqslant 0{,}8 \qquad 5c$$
$$K(f) = -0{,}58 + 1{,}28 \cdot f - 0{,}70\,(f)^2 \qquad 0{,}3 < f < 0{,}8 \qquad 5d$$
$$K(t) = 0{,}0 \qquad f \geqslant 0{,}8 \qquad 5e$$

Het door WINKLER (1973) gevonden verband tussen groei en de relatieve vochtigheid geldt alleen voor deeltjes groter dan 0,2 μm, aangezien dit de ondergrens is van de gebruikte impactor. WINKLER (1973) geeft aan, dat de door hem afgeleide groeicurven op basis van de massatoename groter kunnen zijn dan de werkelijke groei van de straal van de individuele deeltjes. Als tengevolge van de porositeit van deeltjes wel water capillair gebonden wordt, dat niet tot een toename van de straal aanleiding geeft, ontstaat tengevolge van het feit, dat de groei wordt afgeleid uit de massatoename een overschatting in formule 5a. WINKLER (1973) geeft ook aan, dat metingen aan individuele deeltjes in deze richting wijzen.

FERRON (1976) geeft aan dat bij een relatieve vochtigheid van 99,5% deeltjes van 0,2 μm hun evenwichtsgrootte binnen 0,2 seconde bereikt hebben, terwijl deeltjes van 1 μm deze binnen twee seconden bereiken. Metingen van TIERNY en CONNER (1967) geven aan, dat de uit de massatoename afgeleide groei van de straal bij 80% relatieve vochtigheid van stedelijke en industriële aerosolen 1,6% tot 3,2% is en bij 90% luchtvochtigheid 4,8% tot 7,1% is. Deze groei is geringer dan op basis van de metingen van WINKLER (1973) verwacht wordt. De groei, die af te leiden is uit nefelometer metingen van COVERT, CHARLSON, e.a., (1972) onder aanname van een soortelijke massa van 1 g/cm³ ligt in de grootte orde, die verwacht kan worden uit formule 5a, voor wat betreft de aerosolen in Seattle en Altadena. De groei van de aerosolen in Denver is lager.

HO, HIDY, e.a., (1974) hebben uit metingen met microgolven het totaal watergehalte van het atmosferisch aerosol kunnen afleiden. Wanneer hieruit de groei wordt berekend bij een bepaalde relatieve vochtigheid, is deze een stuk groter dan op grond van formule 5a verwacht kan worden. Dit resultaat lijkt in tegenspraak met de eerder gepresenteerde waarnemingen, maar is het bij nadere

beschouwing niet. Tengevolge van hysterese zal in het aerosol een gedeelte van het water gebonden blijven. WINKLER (1973) heeft bij de interpretatie van zijn metingen dit water bij de totale aerosolmassa gerekend, en in formule 5a komt het dan ook niet in de groei tot uiting. Nu echter het totale watergehalte gemeten is, wordt de groei overschat. Wanneer omgekeerd uitgegaan wordt van de groei op grond van formule 5a kan berekend worden welk gedeelte van het water van het aerosol door hysterese gebonden is, doordat dit gedeelte niet door de groei verklaard kan worden. Deze berekeningen zijn door de auteur uitgevoerd met een aantal verschillende vooronderstellingen, die echter niet zo'n grote invloed hebben op het uiteindelijke resultaat. Als oplosbare fractie is 0,6 en 0,8 genomen en als soortelijke massa respectievelijk 1 g/cm^3, 1,5 g/cm^3 en 2 g/cm^3. De hiermee berekende door hysterese gebonden fractie blijkt uit de metingen van HO, HIDY, e.a., (1974) te variëren tussen 12% en 19% van de totale aerosolmassa. Hysterese is het sterkst merkbaar bij afnemende relatieve vochtigheid en wordt minder duidelijk naarmate de relatieve luchtvochtigheid hoger wordt dan 90% à 95%.

Het bovenstaande verhaal betreffende de groei gaat eigenlijk alleen op voor deeltjes groter dan 0,2 μm, die zowel voor de impactormetingen als voor de nefelometer metingen de ondergrens van de waarnemingen vormt. Ook sommige theoretische beschouwingen gaan uit van een bepaalde ondergrens, waarboven de gepresenteerde berekeningen geldig geacht worden. HÄNEL (1972a, 1972b) gaat uit van een ondergrens van 0,08 μm en FITZGERALD (1975) neemt 0,1 μm als ondergrens. De theoretische berekeningen aan een zwavelzuur aerosol door NAIR en VOHRA (1975) hebben als ondergrens 0,001 μm evenals die van CINKOTAI (1971) van een natriumchloride aerosol. Juist vanwege het belang van de submicron aerosolen tot 0,01 μm is een beschrijving van het gedrag van deze deeltjes onder invloed van de luchtvochtigheid voor het onderhavige onderzoek erg interessant. Omdat de theorievorming met betrekking tot de groei van atmosferische aerosolen tussen 0,01 μm en 0,1 μm nog geheel ontbreekt, kan alleen maar teruggegrepen worden op een aantal verrichte waarnemingen. In de literatuur worden alleen metingen van HUSAR, WHITBY, e.a., (1972), SINCLAIR, COUNTESS, e.a., (1974), HANSON (1974) en BARSIC (1977) gerapporteerd aan deeltjes met een diameter tussen 0,01 μm en 0,1 à 1,0 μm. SINCLAIR, COUNTESS, e.a., (1974) hebben twee buitenluchtmonsters naar grootte geclassificeerd met een diffusie batterij en een continue condensatiekernenteller. Door het aerosol door 0,3 tot 2,0 m lange plastic buizen te leiden, die half met water gevuld waren, kon de relatieve vochtigheid tot 98% opgevoerd worden. Uit het 50% punt van de cumulatieve frequentieverdeling werd afgeleid, dat de diameter bij één van beide proeven toenam van 0,018 μm bij 0% relatieve vochtigheid tot 0,036 μm bij 98%. Deze resultaten zijn niet te rijmen met de hieronder gepresenteerde metingen van HANSON (1974) en BARSIC (1977). De fouten liggen waarschijnlijk in de experimentele opzet, gezien de falende telefficiency van condensatiekernentellers in dit deeltjesgrootte gebied en de verliezen in de leidingen van met name de kleinste deeltjesfractie. Ook het feit, dat het aerosol niet eerst ontladen is kan hiertoe hebben bijgedragen. HANSON (1974) is, in vervolg op één experiment van HUSAR, WHITBY, e.a., (1972), met een electrische verdelingsanalysator de invloed van de

relatieve vochtigheid op verschillende submicrone aerosolen kleiner dan 0,6 μm nagegaan. Voor zeven verschillende atmosferische aerosolen vond hij een groei van de deeltjesdiameter, gebaseerd op de totale volume toename, variërend van 2,1% tot 13,3% bij een toename van de relatieve luchtvochtigheid van 20% tot ongeveer 80%. De groei trad steeds op bij de deeltjes groter dan 0,06–0,1 μm en één keer ook bij deeltjes vanaf 0,02 μm. Deze groei is in het algemeen geringer dan op grond van formule 5a voorspeld kan worden. Op basis van een oplosbare fractie van 0,5 tot 0,8 wordt de groei van het aerosol bij dit vochttraject: 11–16% bij een soortelijke massa van 1 g/cm³ en 19–29% bij een soortelijke massa van 2 g/cm³. Het totale deeltjesaantal nam vijf van de zeven keer iets af en twee keer licht toe. Dit maakt, gecombineerd met het feit, dat de groei plaatsvindt vanaf 0,06–0,1 μm de conclusie mogelijk, dat een relatieve vochtigheid tussen 20% en 80% een geringe invloed op de deeltjes kleiner dan 0,05 μm heeft. De grafisch bepaalde groei uit de curves van deeltjesaantallen versus deeltjesdiameter bij twee relatieve luchtvochtigheden is meestal iets groter dan de groei, die uit de volumevergroting naar voren komt. Voor run 16, van HANSON (1974) was de groei 5,5% en grafisch 6–8%, bij run 17 was dit respectievelijk 6,6% en 9,5–12% en voor run 19 was dit 13,3% en grafisch 16–20%.

HANSON (1974) vond voor aerosolen van een propaanvlam een groei van 7–14%, die begon bij een diameter van 0,02 μm. BARSIC (1977) heeft deze proeven verder uitgewerkt. Hij vond, dat de hoeveelheid geproduceerde aerosolen, maar niet de deeltjesgrootteverdeling in een propaanvlam sterk afhankelijk was van de relatieve vochtigheid. Bij een hogere luchtvochtigheid werd er meer aerosol geproduceerd zonder dat de diameter van de geproduceerde aerosolen kleiner dan 0,1 μm toenam. Er vindt dus duidelijk geen groei van de deeltjes rond 0,01 μm plaats onder invloed van relatieve vochtigheid. De toename in deeltjesaantallen kan echter de door HANSON (1974) gevonden 'groei' verklaren, omdat deze werd afgeleid uit een toename van de aantallen deeltjes.

Enige oriënterende metingen mijnerzijds gaven ongeveer dezelfde resultaten te zien als de metingen van HANSON (1974). Voor deeltjes groter dan 0,06 μm is er een positieve correlatie tussen deeltjesaantallen en relatieve vochtigheid. Dit wijst nogmaals op een groei van de straal. Voor kleinere deeltjes ontbreekt deze correlatie. Ook CINKOTAI (1971) en FITZGERALD (1975) geven een geringere groei naarmate de deeltjes kleiner worden. Dit wijst er op, dat de invloed van de relatieve vochtigheid in het gebied van 20% tot 80% gering geacht mag worden als de diameter kleiner is dan 0,05 μm.

Bij de deeltjes groter dan 0,06 μm heeft deze groei tot gevolg, dat er bij een toenemende relatieve vochtigheid automatisch meer deeltjes geteld worden, omdat de totale deeltjesgrootteverdeling als het ware opschuift. Een groei van de straal met 10% heeft bij een Junge verdeling met een exponent 3 een toename van de deeltjesaantallen met 33% tot gevolg en een groei met 20% leidt tot een toename van 73% van de aantallen. Als deze exponent in plaats van 3 varieert van 2 tot 4,5, zoals uit metingen van MESZAROS (1977) blijkt, zal de invloed navenant zijn. De exponent is verder afhankelijk van de deeltjesgrootte en de relatieve vochtigheid. Bij de deeltjes groter dan 0,1 μm kan de relatieve vochtig-

heid een belangrijke invloed hebben op de concentratie. Theoretisch is dit echter een nog grotendeels onbekend terrein, waarop het nodige onderzoek zeer gewenst is.

SVERDRUP en WHITBY (1972) beschrijven de mogelijke gevolgen van verschil in relatieve luchtvochtigheid op de getelde deeltjesaantallen, aan de hand van aerosol metingen in Californië. De overeenkomst tussen de metingen met twee optische deeltjestellers, die goed blijkt wanneer de beide instrumenten aerosolen met dezelfde relatieve vochtigheid meten, gaat in andere gevallen helemaal verloren. Het instrument dat aerosolen met een hogere relatieve luchtvochtigheid monstert telt aanmerkelijk meer deeltjes dan het andere. Een vergelijkbaar verschijnsel deed zich ook voor bij hier niet verder gerapporteerde metingen als voorbereiding op dit onderzoek van atmosferische aerosolen met een optische deeltjesteller. Vlak voor een bui ging de concentratie van deeltjes van 0,4 μm plotseling sterk omhoog tengevolge van de snel toenemende relatieve vochtigheid. Deze bleef hoog tijdens de bui en nam na de bui weer af. Slechts wanneer er voor de relatieve vochtigheid gecorrigeerd kan worden, kan de uitregen efficiency van aerosolen tijdens regenbuien berekend worden.

2.4. OMZETTING TEN GEVOLGE VAN COAGULATIE

Afhankelijk van de drijvende kracht achter het proces van coagulatie, waarbij uit een botsing van twee aerosoldeeltjes een nieuw aerosoldeeltje met de gecombineerde massa van beide deeltjes ontstaat, wordt een onderscheid gemaakt in verschillende vormen van coagulatie. Ten gevolge van de thermische beweging van de gasmoleculen voeren aerosoldeeltjes veel botsingen uit. De hieruit resulterende coagulatie wordt brownse coagulatie genoemd. Deze wordt hieronder eerst behandeld. In turbulent bewegende lucht kan tengevolge van de turbulentie een versnelling van de coagulatie optreden. De benaming hiervoor is turbulente coagulatie en zal na de brownse besproken worden. Verder kan er een versnelling van de coagulatie optreden, wanneer er een bepaalde snelheidsgradiënt tussen de wand en de lucht heerst. Deze gradiënt coagulatie wordt als laatste behandeld. Zoals door FUCHS (1964) is aangetoond, hebben bipolaire electrische ladingen een zeer gering verhogend effect (in de orde van 5%) op de coagulatie snelheid, zodat op deze vorm van coagulatie hier niet verder ingegaan wordt. Gezien de geringe betekenis voor het onderhavige onderzoek wordt ook de coagulatie in een acoustisch en electrisch veld niet beschreven; hiervoor wordt verwezen naar FUCHS (1964).

2.4.1. *Brownse coagulatie*

De theorie van de brownse coagulatie van monodisperse colloïdale oplossingen werd voor het eerst door VON SMOLUCHOWSKI (1906) geformuleerd:

$$\frac{dN}{dt} = K_o \cdot N^2 \qquad 6$$

waarbij de coagulatiecoëfficiënt gevonden wordt door:

$$K_o = 8 \cdot \pi \cdot r \cdot D = \frac{4}{3} \cdot \frac{k \cdot T}{\mu} \cdot C \qquad 7$$

C is de bij aerosolen benodigde dimensieloze Cunningham correctie factor, die in 2.6.2. wordt besproken. Zoals uit formule 7 te zien is, is de coagulatiecoëfficiënt onafhankelijk van de soortelijke massa van het betreffende deeltje en via C alleen afhankelijk van de deeltjesdiameter.

Het stelsel vergelijkingen, dat de populatiebalans beschrijft van polydisperse colloïdale oplossingen is door MÜLLER (1928) geformuleerd. Het verlies van twee deeltjes met een diameter r na botsing, en het ontstaan van een nieuw deeltje met een straal $(2)^{0,33} \cdot r$ kan worden geschreven als een stelsel differentiaalvergelijkingen, indien het totaal aanwezige deeltjesspectrum wordt ingedeeld in een eindig aantal klassen, waarin de deeltjes met straal r tot $r + \Delta r$ zich bevinden (FRIEDLANDER, 1977). Een van de belangrijkste kenmerken van het proces van coagulatie is, dat de deeltjesgrootteverdeling zich zal wijzigen, waarbij met name kleinere deeltjes verloren gaan en grotere gevormd worden, maar dat de totale massa van de deeltjes, die zich binnen een bepaald systeem bevinden, constant blijft in de tijd. De uitkomst na coagulatie gedurende een bepaalde tijd kan gevonden worden door de oplossing van het stelsel differentiaal vergelijkingen. Meestal wordt hiervoor een van de hogere orde Runge-Kutta methodes gebruikt. Dit is onder andere gedaan door: LAI, FRIEDLANDER, e.a., (1971), GILLETTE (1972), WADDEN, QUON, e.a., (1974), MIDDLETON en BROCK (1975), YOSHIDA, OKUYAMA, e.a., (1975), OKUYAMA, KOUSAKA, e.a., (1976), OKUYAMA (1978), MIDDLETON en KIANG (z.j.). Dit maakt accurate oplossingen mogelijk, waarbij zelfs na redelijk lange tijd nog weinig massa door afrondingsfouten verloren is. MIDDLETON en BROCK (1975) geven aan, dat dit verlies na 1146 seconden 1,7% bedraagt. Oplossingen gebaseerd op andere wiskundige benaderingen worden onder andere gegeven door HUSAR (1971), BURGMEIER, BLIFFORD, e.a., (1973), en BURGMEIER en BLIFFORD (1975). Als er gedurende een kortere tijd wordt gecoaguleerd of als de eis van behoud van massa minder stringent is, kan vaak ook met eenvoudiger oplossingen volstaan worden, zoals van HOGAN (1977) en TOLFO (1977). Verder kan er ook een numerieke oplossing gevonden worden door met een kleine tijdstap de concentraties per grootteklasse op eenvolgende tijdstippen direct uit de differentiaal vergelijkingen uit te rekenen. Dit laatste is in hoofdstuk zeven en acht gedaan, en levert dezelfde oplossing als het model van TOLFO (1977).

$$\frac{dC_i}{dt} = \sum_{j=1}^{i} K_{ij} \cdot C_i \cdot C_j \qquad 8$$

In het verleden ging men er van uit, dat de theorie van Von Smoluchowski ook direct toepasbaar is op aerosolen. ZEBEL (1958) gebruikt bijvoorbeeld de uit 7

berekende K_o. De door Fuchs reeds in 1934 in het Russisch geformuleerde correctiefactor β_F voor de berekening van de coagulatiecoëfficiënt voor aerosoldeeltjes kleiner dan 0,2 μm, heeft pas na de publicatie van zijn werk in het Engels volledige erkenning gekregen. De meeste bovengenoemde auteurs over coagulatie gebruiken β_F. Met de correctie van FUCHS (1964) wordt de coagulatiecoëfficiënt voor polydisperse aerosolen:

$$K_{ij} = 8 \cdot \pi \cdot \frac{(r_i + r_j)}{2} \cdot \frac{(D_i + D_j)}{2} \cdot \beta_F \qquad 9$$

De waarde van de coagulatie-constante K_{ij} als functie van de deeltjes diameter is uitgezet in figuur 4. De term β_F vermindert de coagulatie snelheid met een factor 70 bij deeltjes met een diameter van 0,002 μm en met een factor 1,05 bij deeltjes van 0,2 μm. Bij grotere deeltjes is β_F gevoegelijk te verwaarlozen ($\simeq$ 1,0). De fysische betekenis van deze correctiefactor is, dat volgens Fuchs de diffusie vergelijkingen alleen op de brownse beweging toepasbaar zijn als de deeltjes veel groter zijn dan de gemiddelde vrije weglengte. Naar analogie van zijn Δ-theorie voor verdamping geeft FUCHS (1964) de volgende formule voor β_F:

$$\beta_F = \left[\frac{r_i + r_j}{r_i + r_j + \frac{1}{2} \cdot \{(\delta_i)^2 + (\delta_j)^2\}^{0,5}} + \frac{4 \cdot (D_i + D_j)}{(r_i + r_j) \cdot \{(G_i)^2 + (G_j)^2\}^{0,5}} \right]^{-1} \qquad 10$$

In de formule 10 stellen δ_i en δ_j de afstand voor tussen het middelpunt van het absorberende deeltje en de middelpunten van de deeltjes in de denkbeeldige bol rondom het eerste deeltje, waarin de absorptie plaats vindt. WALTER (1973) komt tot een β_F, die qua waarde maximaal 20% verschilt van de door FUCHS (1964) berekende waarde voor deeltjes met een diameter van 0,002 μm door de factor $\frac{1}{2} \cdot \{(\delta_i)^2 + (\delta_j)^2\}^{0,5}$ gelijk aan nul te stellen. In de vergelijking 10 wordt de eerste term tussen haakjes gelijk aan 1. WALTER (1973) geeft aan, dat de benadering van Fuchs met δ_i en δ_j ook theoretisch allerlei vragen oproept. In het verdere verhaal zullen als de coagulatie parameters van Fuchs, die gebruikt worden, worden berekend met formule 9 en 10, waarbij de aanvulling van WALTER (1973) gebruikt wordt.

Zeer recent is door een publicatie van DAVIES (1979) een vraagteken gezet achter de argumentatie van FUCHS (1964) voor β_F. Zoals al vermeld is de argumentatie ontleend aan de analogie met de Δ-theorie van Fuchs met betrekking tot verdamping. DAVIES (1979) geeft aan, dat deze analogie niet opgaat, omdat verdamping een proces is, waarbij de beweging van de moleculen twee richtingen uitgaat van het druppeltjes af door verdamping en naar het druppeltje toe door condensatie, terwijl de beweging van de deeltjes bij coagulatie slechts één richting uit is. De coagulatie constante onder gas kinetische omstandigheden is goed bekend uit de theorie. Deze is dan alleen een functie van de diameter en de thermische snelheid van de deeltjes. Ook wanneer de deeltjes diameter veel groter is dan de gemiddelde molekulaire vrije weglengte, is de coagulatie coëfficiënt

bekend, omdat dan formule 7 opgaat. Het Knudsen-getal λ/r is dan kleiner dan 1, terwijl onder gaskinetische omstandigheden het Knudsen-getal groot is. Tussen deze beide omstandigheden moet een interpolatie gevonden worden met een correctie formule β_D. Davies stelt hiervoor de volgende formule voor:

$$\beta_D = \left[1 + \frac{8}{Pe \cdot (2)^{0,5}} \cdot \exp(-9,03 \cdot Pe)\right]^{-1} \qquad 11$$

Hierbij is Pe het dimensieloze Peclet-getal van een aerosoldeeltje $G \cdot r/D$. Zoals DAVIES (1979) laat zien, vertoont deze correctiefactor β_D – net zoals die van Fuchs overigens – een redelijke beschrijving van de experimenteel bepaalde waarden van de coagulatiecoëfficiënt. In het gebied waar β_D en β_F duidelijk verschillen, met Knudsen-getallen groter dan 15, ontbreekt een experimentele verificatie van beide (zie hiervoor figuur 19 in hoofdstuk acht).

Formule 11 geldt alleen voor een monodispers aerosol. Aangezien eigenlijk alleen polydisperse aerosolen in de atmosfeer voorkomen, is de correctie van Davies ook op polydisperse aerosolen van toepassing gemaakt. Een analogie redenering aan de uitbreiding van K_o voor monodisperse naar K_{ij} voor polydisperse aerosolen levert de volgende waarde op in plaats van het Peclet-getal:

$$\frac{(2)^{0,5} \cdot (r_i + r_j) \cdot \{(G_i)^2 + (G_j)^2\}^{0,5}}{D_i + D_j} \qquad 12$$

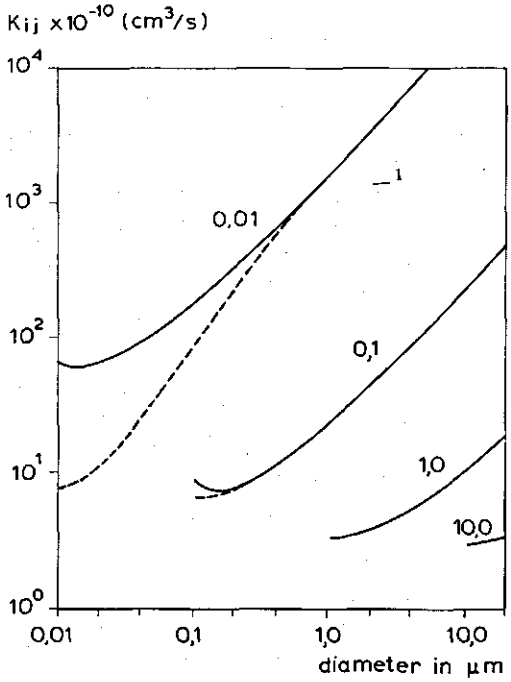


FIG. 4. Coagulatie van deeltjes van 0,01, 0,1 en 10 µm met grotere deeltjes.
Theorie van Fuchs ——— formule 9 en 10
Theorie van Davies - - - - - formule 9, 11 en 12

Invulling van formule 12 in 11 levert de correctiecoëfficiënt β_D op voor polydisperse aerosolen. Wanneer β_D in plaats van β_F in formule 9 wordt ingevuld, geeft dit de coagulatiecoëfficiënt voor polydisperse aerosolen volgens Davies. Wanneer het verschil in diameter tussen de coagulerende deeltjes klein is nadert de coagulatiecoëfficiënt naar de door DAVIES (1979) gegeven waarde. Als dit verschil groot is, een factor 10 à 100, nadert de uitkomst naar de door FUCHS (1964) en WALTER (1973) gegeven waarden. De waarde van de coagulatie constante K_{ij} als functie van de diameter is uitgezet in figuur 4.

Zoals uit de boven gegeven formules blijkt, heeft de relatieve luchtvochtigheid geen directe invloed op de coagulatie constante. Indirect kan de relatieve vochtigheid invloed hebben op de deeltjesdiameter en daarmee op de Cunningham correctiefactor. Metingen van RANADE, WASAN, e.a., (1974) laten zien, dat de coagulatie snelheden van een loodchloride aerosol tussen 2% en 98% relatieve vochtigheid gelijk zijn. Een tweede conclusie uit deze metingen is, dat deze deeltjes met een geometrisch mediane diameter van 0,05 μm, zelfs bij 98% relatieve vochtigheid dus geen groei vertonen. Immers groei had via de Cunningham correctiefactor invloed moeten hebben op de coagulatie constante. Ook is uit bovenstaande formules af te leiden, dat de soortelijke massa van het aerosol niet van invloed is op de coagulatiesnelheid. De vorm van de deeltjes heeft enige invloed op de coagulatie constante (FUCHS, 1964). Aangezien hier echter nog minder experimentele gegevens over bekend zijn dan over monodisperse bolvormige aerosolen, wordt hieraan voorbijgegaan.

2.4.2. *Turbulente coagulatie*

FUCHS (1964) geeft een formule waarbij de verhouding tussen de coagulatie snelheid met turbulente en brownse coagulatie berekend kan worden, waarbij afhankelijk van de twee door Fuchs gepresenteerde afleidingen de ene een factor 6,25 hoger uitkomt dan de andere. LEVICH en TUNITSKII, geciteerd door FUCHS, (1964), vonden experimenteel een factor die het geometrisch gemiddelde van beide theoretische afleidingen is. Voor polydisperse aerosolen citeert FUCHS (1964) een betrekking die door LEVICH en TUNITSKII is afgeleid waarbij de verhouding tussen turbulente en brownse coagulatie onder andere evenredig is met het verschil in relaxatietijd van de beide bij de coagulatie betrokken deeltjes. Deze betrekking geeft bij vrijwel gelijke deeltjesdiameters een onderschatting van de verhouding van turbulente versus brownse coagulatie omdat het verschil dan nul wordt. De berekende verhouding is dan ook nul en niet in overeenstemming met de verhouding tussen turbulente en brownse coagulatie voor monodisperse deeltjes, waar de betrekking bij deeltjes van gelijke diameter in had moeten overgaan. SAFFMAN en TURNER (1956) geven een formule waarmee de turbulente coagulatie snelheid van polydisperse aerosolen kan worden berekend. De verhouding ten opzichte van brownse coagulatie wordt dan:

$$\frac{\Phi_T}{\Phi_B} = \frac{\left(\frac{8\cdot\pi}{15}\right)^{0.5} \cdot \left(\frac{\varepsilon}{\nu}\right)^{0.5} \cdot (r_i + r_j)^3}{2\cdot\pi\cdot(r_i + r_j)\cdot(D_i + D_j)\cdot\beta_F} \qquad 13$$

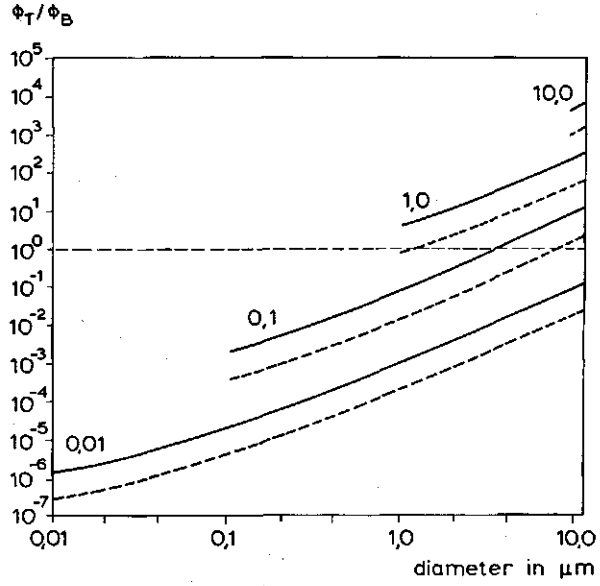


FIG. 5. Verhouding van turbulente en brownse coagulatie van deeltjes van 0,01 µm, 0,1 µm, 1,0 µm en 10 µm met grotere deeltjes.
——— $\varepsilon = 100\,000\ cm^2/s^3$
- - - - - $\varepsilon = 5\,000\ cm^2/s^3$

Hierbij is ε de energiedissipatie per eenheid van massa en per eenheid van tijd en ν is de kinetische viscositeit. Zelfs als de energiedissipatie 100000 cm^2/s^3 is, is de turbulente coagulatie bij deeltjes kleiner dan 1 µm verwaarloosbaar ten opzichte van de brownse. De verhouding Φ_T/Φ_B is in figuur 5 uitgezet. Bij grotere deeltjes is de turbulente coagulatie veel groter dan de brownse. Wanneer de energiedissipatie ongeveer 1000 cm^2/s^3 is, een waarde die in de atmosfeer op 1 m hoogte wordt aangetroffen (LUMLEY en PANOFSKI, geciteerd door FRIEDLANDER, 1977), zal de turbulente coagulatie alleen maar invloed hebben op de coagulatiesnelheid van deeltjes die groter zijn dan de in dit onderzoek beschouwde submicrone deeltjes.

2.4.3. *Gradiënt coagulatie*

Wanneer er een snelheidsgradiënt bestaat tussen lucht en een wand kan in het grensvlak een verhoogde coagulatie plaatsvinden van het zich in de lucht bevindende aerosol. Voor monodisperse aerosolen geeft FUCHS (1964) hiervoor een theoretische afleiding. Analoog aan de uitbreiding van de coagulatie constante voor monodisperse aerosolen naar die voor polydisperse kan deze verhouding tussen de gradiënt en brownse coagulatie als volgt beschreven worden:

$$\frac{\Phi_G}{\Phi_B} = \frac{2 \cdot \Gamma \cdot (r_i + r_j)^2}{6 \cdot \pi \cdot (D_i + D_j)} \qquad 14$$

Hierbij is Γ de snelheidsgradiënt in de grenslaag met de dimensie $(s)^{-1}$. De verhouding Φ_G/Φ_B is in figuur 6 uitgezet. Wanneer de snelheidsgradiënt 100000/s genomen wordt is er geen merkbare verhoging van de coagulatie van deeltjes van 0,01 µm. De coagulatiesnelheid van deeltjes van 0,1 µm met deeltjes

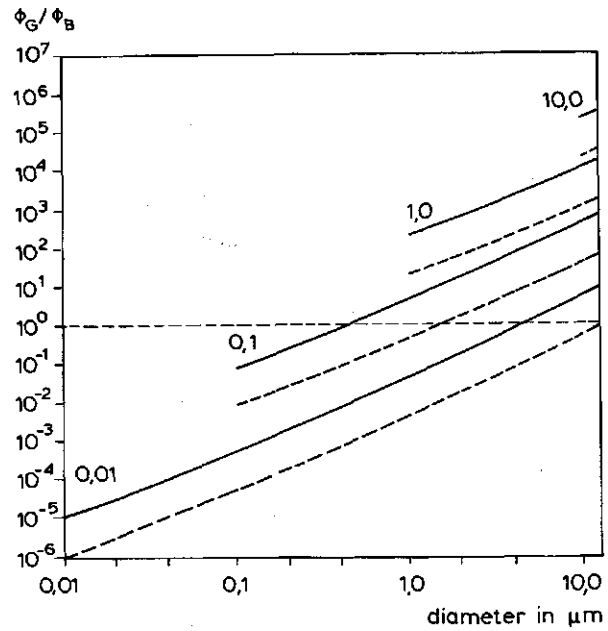


FIG. 6. Verhouding van gradiënt en brownse coagulatie van deeltjes van 0,01 µm, 0,1 µm, 1,0 µm en 10 µm met grotere deeltjes.
—— $\Gamma_0 = 100\,000\ (s)^{-1}$
- - - - - $\Gamma_0 = 10\,000\ (s)^{-1}$

van 1 µm en groter is wel groter dan de brownse, bij botsingen met kleinere deeltjes dan 1 µm is de verhoging verwaarloosbaar. Ook de coagulatiesnelheden van deeltjes van 1 µm met gelijke en grotere deeltjes zijn vergroot. Terwijl de onderlinge coagulatie van deeltjes van 10 µm zeer sterk vergroot is. Eenzelfde effect is ook te zien bij een Γ van 10000/s.

2.5. SECUNDAIRE REACTIES VAN AEROSOLEN

De fysisch-chemische processen die plaatsvinden aan en in het aerosol tussen de uitworp en meting worden in dit onderzoek de secundaire reacties genoemd. Deze worden hier onderscheiden in snelle reacties, die binnen een paar minuten plaatsvinden, en de trage reacties die langzamer verlopen. Deze twee vormen worden achtereenvolgens besproken.

2.5.1. *Snelle reacties*

Hierbij kan een onderscheid gemaakt worden tussen chemische reacties, zoals bijvoorbeeld de neutralisatie van zwavelzuur aerosolen door ammonia (LAMOTHE, DZUBAY, e.a., 1976), die hier niet verder besproken zullen worden gezien de relatief geringe beïnvloeding van de deeltjesgrootteverdeling, en fysische processen als condensatie, coagulatie en de invloed van de relatieve luchtvochtigheid. Zoals al bij de vorming van aerosolen door verbrandingsprocessen is uiteengezet, is condensatie in de uitlaat een van de vormingsprocessen van aerosolen. Het is echter niet duidelijk of deze condensatie ook na de emissie nog doorgaat.

Hierover bestaan geen literatuurgegevens. Gezien de sterke plotselinge verdunning achter de uitlaat kan echter gesteld worden, dat de relatieve betekenis ten opzichte van de condensatie in het uitlaatsysteem zelf gering is. In het onderhavige onderzoek wordt ervan uitgegaan dat alleen de in 2.3. en 2.4. besproken invloed van de relatieve luchtvochtigheid en de coagulatie van belang is voor de deeltjesgrootteverdeling.

2.5.2. *Trage reacties*

Het veranderingsproces van de deeltjesgrootteverdeling aerosolen dat hieronder valt is de fotochemische smogvorming. Ondanks het feit dat hier in Nederland fotochemische smogvorming veel minder frequent voorkomt dan in de Verenigde Staten zijn er wel degelijk aanwijzingen dat deze processen ook in Nederland plaatsvinden. (GUICHERIT, 1978). De tijdbasis waarop deze veranderingen plaatsvinden is echter veel groter dan de twee minuten waarbinnen de verblijftijden in het onderhavige onderzoek liggen, zodat invloed hiervan op de resultaten uitgesloten kan worden geacht.

2.6. VERWIJDERING DOOR DROGE DEPOSITIE

Nadat de vorming, verspreiding en de verandering van de deeltjesgrootteverdeling aan bod zijn gekomen, wordt nu de verwijdering van aerosolen uit de atmosfeer door verschillende processen besproken. Allereerst wordt depositie onder invloed van thermische krachten aangestipt, daarna worden de sedimentatie onder invloed van de zwaartekracht en tenslotte de droge depositie ten gevolge van diffusie en impactie besproken.

2.6.1. *Verwijdering door thermophorese*

De verwijdering door thermophorese van atmosferische aerosolen is een proces dat in het algemeen een ondergeschikte rol speelt gezien de geringe temperatuur gradiënten die normaal tussen de lucht en de bodem heersen. In een uitlaatsysteem kan dit verwijderingsmechanisme een grotere rol spelen omdat er vaak een temperatuurverschil van 100 tot 170°C tussen het gas en de uitlaat heerst (SAMPSON en SPRINGER, 1973). Voor een behandeling van de theorie van thermophorese wordt verwezen naar FUCHS (1964), CHA en MCCOY (1974) en FRIEDLANDER (1977).

2.6.2. *Verwijdering door sedimentatie*

Hieronder valt het uitzakken van deeltjes onder invloed van de zwaartekracht. Als de deeltjesdiameter veel groter is dan de gemiddelde vrije weglengte van de gasmoleculen, wordt de wrijvingskracht gevonden uit de Wet van Stokes. Wanneer de deeltjesdiameter in de buurt van de vrije weglengte komt, of zelfs kleiner wordt, worden de deeltjes minder geremd dan volgens de Wet van Stokes. Ze bewegen zich als het ware tussen de gasmoleculen door. Voor het geval de diameter veel kleiner is dan de vrije weglengte kan de wrijvingskracht op grond

van de gaskinetische theorie berekend worden. Om de wrijvingskracht in het totale deeltjesgamma met Knudsen getallen tussen ∞ en 0 te kunnen beschrijven, wordt de Cunningham corectie ingevoerd (FUCHS, 1964):

$$C = 1 + \frac{\lambda}{r} \cdot \{1{,}246 + 0{,}42 \cdot \exp(-0{,}87 \cdot r/\lambda)\} \qquad 15$$

Davies heeft in 1945 na een hernieuwde berekening van de oorspronkelijke gegevens van Millikan iets andere waarden voor de constantes in formule 15 gevonden (DAVIES, 1979). Deze hebben echter een gering effect (minder dan 5%) op de met formule 15 berekende waarde van C. De valsnelheid van een deeltje kan berekend worden uit het product van de zwaartekracht versnelling en de relaxatietijd. De relaxatietijd wordt gegeven door (FRIEDLANDER, 1977):

$$\tau = \frac{2 \cdot \rho_p \cdot (r)^2}{9 \cdot \eta} \cdot C \cdot (1 - \frac{\rho}{\rho_p}) \qquad 16$$

De relaxatietijd τ is de tijd, die het deeltje nodig heeft om na een bewegingsverandering 1/e gedeelte van de snelheid van het omringende gas aan te nemen. Voor de in het onderhavige onderzoek bestudeerde submicrone aerosolen is de sedimentatie geen verwijderingsmechanisme van enige betekenis. Een deeltje van 1 µm met een soortelijke massa van 1 g/cm³ heeft een valsnelheid van slechts 0,0035 cm/s. Zelfs een extreme/soortelijke massa van 5 g/cm³ geeft slechts een verhoging tot 0,0175 cm/s. Submicrone deeltjes hebben nog kleinere valsnelheden.

2.6.3. *Verwijdering door combinatie van sedimentatie, impactie en diffusie*

Doordat deeltjes na botsing tegen een oppervlak vast kunnen blijven zitten, kan er materiaal tengevolge van droge depositie verloren gaan. De depositiesnelheid van een gas of een deeltje met een bepaalde diameter is te berekenen uit het quotiënt van de flux naar het oppervlak toe en de concentratie boven dat oppervlak. Wanneer er materiaal tengevolge van droge depositie verloren gaat, ontstaat er een concentratie gradiënt tussen het oppervlak en de omringende atmosfeer. Deze vormt de drijvende kracht achter de depositie van de kleine deeltjes, die tengevolge van diffusie neerslaan.

De snelheid van de droge depositie wordt beïnvloed door een groot aantal variabelen. De deeltjesgrootte is bijvoorbeeld van belang. Deeltjes kleiner dan 0,2 µm deponeren voornamelijk onder invloed van diffusie. Terwijl deeltjes groter dan 25 µm à 30 µm voornamelijk door sedimentatie neerslaan, is in het gebied met deeltjesdiameters tussen 1 µm en 25 µm impactie, soms gecombineerd met sedimentatie, de belangrijkste drijvende kracht. Bij sedimentatie en impactie is niet alleen de deeltjesdiameter van belang, maar ook de relaxatietijd en daarmee de soortelijke massa van de deeltjes. De depositiesnelheden in het laatstgenoemde deeltjesgroottegebied zijn door metingen van LIU en AGARWAL (1974) heel redelijk bekend. Er zit een duidelijk minimum in de depositie bij deeltjes tussen 0,1 en 0,5 µm, omdat de genoemde mechanismen een relatief geringe

bijdrage leveren. De depositie op gladde oppervlakken voor het totale deeltjesspectrum van 0,01 μm tot 100 μm wordt behandeld door DAVIES (1966) en SEHMEL (1971).

Verder is de depositie evenredig met de mate van turbulentie in de lucht. Daardoor bestaat er een afhankelijkheid met de wrijvingswindsnelheid u_* (SEHMEL en HODGSON, 1976). Ook de aard van het oppervlak speelt een hele belangrijke rol bij de depositie. SEHMEL (1971) heeft in een windtunnel de depositie bepaald voor verschillende deeltjesdiameters op een glad en electrisch neutraal koperen oppervlak. Hij beschouwt dit als de minimale depositiesnelheid. In de natuur is dit vaak niet het geval en zal de depositie groter zijn. De bepaling van de depositiesnelheid aan bijvoorbeeld filtreerpapier levert hogere waarden op. (CLOUGH, 1973; VAN DER HOVEN, 1968; LITTLE en WIFFEN, 1977). Op natuurlijke oppervlakken als bladeren, gras en dergelijke kan de depositiesnelheid nog meer variëren tengevolge van bijvoorbeeld de beharing van een blad (LITTLE en WIFFEN, 1977). SEHMEL en HODGSON (1976) hebben in hun artikel over de theoretisch te verwachten depositiesnelheid ook de invloed van de ruwheidslengte (z_o) op de depositie gekwantificeerd. In hetzelfde artikel wordt ook ingegaan op de referentiehoogte ten opzichte waarvan de depositiesnelheid wordt berekend. CHAMBERLAIN (1967) geeft een iets handzamer formule dan SEHMEL en HODGSON om de depositiesnelheid te berekenen als die op een referentiehoogte bekend is:

$$1 - v_s/v_d = (1 - v_s/v_{dr}) \cdot (z_r/z)^{v_s/k.u_*} \qquad 17$$

Ter contrôle op de door SEHMEL en HODGSON (1976) gegeven theoretische depositiesnelheden worden nu enige experimenteel bepaalde depositiesnelheden daarmee vergeleken. VAN DER HOVEN (1968) citeert een zevental depositiemetingen van radioactieve iodide aerosolen. Deze zijn weliswaar als damp geëmitteerd, maar men veronderstelt, dat ze, door diffusie, in de atmosfeer slechts voorkomen geassocieerd met condensatie kernen. Hieruit is af te leiden, op grond van hun aantalsverdeling dat hun diameter 0,01 μm à 0,04 μm zal zijn. De gemeten depositiesnelheid varieert van 1,1 tot 3,5 cm/s met een u_* van 15 cm/s tot 48 cm/s en een z_o van 1 cm tot 3 cm. De door Sehmel en Hodgson voorspelde waarden variëren ook van 1 cm/s tot 3 à 4 cm/s onder de bovengegeven omstandigheden. DAVIDSON, HERING, e.a., (1975) hebben een depositiesnelheid gemeten van 0,9 cm/s ten opzichte van 4 m hoogte met een condensatiekernenteller. Ten opzichte van 1 m hoogte is de v_d 1 cm/s. De u_* bedroeg 43 cm/s. Aangezien de meting met een condensatiekernenteller uitgevoerd is, mogen we aannemen, dat de geometrisch mediane diameter ongeveer 0,03 μm is geweest. Uit de door de auteurs gegeven vegetatiehoogte van 70 cm kan een z_o van ongeveer 8 cm afgeleid worden. Volgens SEHMEL en HODGSON (1976) bedraagt de depositiesnelheid ten opzichte van 1 m hoogte onder deze omstandigheden 2,6 cm/s. Gezien de schatting van de deeltjesdiameter en z_o hoeft dit verschil van een factor 2,6 geen verbazing te wekken. Zoals met bovenstaande voorbeelden is aangetoond, is er sprake van een redelijke overeenstemming qua grootte orde tussen de door SEHMEL en HODGSON (1976) theoretisch voorspelde depositiesnelheden en de

onder verschillende omstandigheden experimenteel bepaalde depositiesnelheden. De in hoofdstuk 8 gebruikte depositiesnelheid is de door SEHMEL en HODGSON (1976) gegeven depositiesnelheid bij de uit het betreffende windprofiel afgeleide u_* en z_0. Voor deeltjes met diameters tussen 0,01 μm en 1 μm levert formule 17 dezelfde depositiesnelheid op voor 0,165 m als voor 1 m hoogte, zodat de waarden van Sehmel en Hodgson voor deze diameters ongewijzigd zijn overgenomen.

Voor de experimenten uit hoofdstuk acht in de IJ-tunnel kunnen de depositiesnelheden uit bovengenoemde publicaties niet zo maar gebruikt worden, aangezien er daar geen sprake is van een bepaalde z_0, omdat er geen windprofiel is. Uit de theoretische benadering van DAVIES (1966) van de depositie vanuit een turbulente stroming onder invloed van diffusie en traagheidskrachten kan de depositiesnelheid aan een volkomen glad oppervlak berekend worden. Als aangenomen wordt, dat de ruwheid van de tunnelwand te vergelijken is met die van filtreerpapier, kan uit de waarnemingen van CLOUGH (1973) een factor geëxtrapoleerd worden, waarmee de zojuist berekende depositiesnelheid op een volkomen glad oppervlak bij een bepaalde u_* vermenigvuldigd moet worden om die in de IJ-tunnel te vinden. Deze factor is ongeveer 6 voor $u_* \simeq 110$ cm/s, 5 voor $u_* \simeq 90$ cm/s, 4 voor $u_* \simeq 70$ cm/s en 3 voor $u_* \simeq 40$ à 60 cm/s. De nu verkregen depositiesnelheid op de tunnelwand (zie tabel 25) ligt nog duidelijk onder de depositie op ruwere natuurlijke oppervlakken. Uit metingen van de depositiesnelheid van radioactieve iodide aerosolen met een diameter onder 0,1 μm, geciteerd door VAN DER HOVEN (1968), blijkt, dat de depositiesnelheid op gras een factor 2 à 6 groter is dan op filtreerpapier. LITTLE en WIFFEN (1977) geven aan, dat de depositie van radioactieve loodaerosolen met een diameter van 0,01 μm à 0,04 μm een 2 à 5 keer zo snel gebeurt op een niet begroeide bodem als op filtreerpapier.

2.7. VERWIJDERING DOOR NATTE DEPOSITIE

Natte depositie is naast droge depositie een belangrijk verwijderingsmechanisme voor aerosolen. MARENCO en FONTAN (1976) geven aan, dat in het algemeen de droge depositie het belangrijkste onderdeel vormt (ongeveer 75%) van de aerosolverliezen ten gevolge van depositie voor aerosolen met een diameter van 0,3 μm in de onderste kilometer van de atmosfeer. Voor dezelfde aerosolen is in de laag boven 5 kilometer hoogte de natte depositie het belangrijkste. Deze is dan verantwoordelijk voor wederom ongeveer driekwart van de totale depositieverliezen. Door de experimentele opzet van het onderhavige onderzoek is verwijdering door natte depositie uit te sluiten. Vandaar dat dit hier niet verder besproken zal worden. Voor een beschrijving van de processen en gegevens over de uitwasefficiency wordt verwezen naar HIDY (1973), VOLOSHUCK en MUYDINOVA (1974), K.N.M.I. (1974) en RÖBIG en PORSTENDÖRFER (1978).

2.8. Reentrainment van deeltjes

Er is nog slechts relatief weinig onderzoek gedaan naar de reentrainment van submicrone aerosolen, zodat de hierover gemaakte opmerkingen slechts kwalitatief kunnen zijn. Over de reentrainment van gronddeeltjes, die beter bekend onder de naam aeolische erosie in sommige gebieden een groot landbouwkundig probleem vormt, is meer informatie bekend (Slinn, 1976) dan over de reentrainment van submicrone deeltjes. Uit de door Slinn (1976) geciteerde onderzoeken blijkt, dat er een bepaalde kritische u_* (in de orde van 0,2 m/s à 0,3 m/s) overschreden moet worden om deeltjes in de lucht te krijgen. Deeltjes tussen 50 μm en 100 μm kunnen bij deze kritische u_* in de lucht komen, terwijl voor de reentrainment van grotere en kleinere deeltjes een hogere wrijvingswindsnelheid vereist is.

Bekendheid met de mate van reentrainment is met name van belang voor de beantwoording van de vraag in hoeverre de gemeten aerosol concentraties in de buurt van een weg direct afkomstig zijn van de auto's en in hoeverre deze veroorzaakt zijn door reentrainment van eerder neergeslagen aerosolen tengevolge van de turbulentie door de passerende voertuigen. Demuynck (1978) deelt mee, dat de gemeten loodconcentraties in de atmosfeer naast een weg na een regenbui sterk afnemen. Dit kan aan (een combinatie van) twee oorzaken liggen: het in de lucht aanwezige loodhoudende aerosol kan uitgewassen zijn of de straat kan schoongewassen zijn door de regen, zodat er geen loodhoudend aerosol door reentrainment in de lucht gebracht kan worden.

Negatieve correlaties tussen windsnelheid en de gemeten deeltjesconcentraties geven geen uitsluitsel over het optreden en eventueel de grootte van het proces van reentrainment. Zowel Buck, Pedersen, e.a., (1976) als Jennings en Elleson (1977) en Knutson en Stockham (1978) geven aan, dat er in het algemeen bij hogere windsnelheden lagere concentraties aan deeltjes tussen 0,1 μm en 5 μm gemeten worden. Omdat de dispersie met een toenemende windsnelheid groter is, hoeven de bovengenoemde negatieve correlaties nog niet tot de conclusie te leiden, dat in het genoemde deeltjesgrootte gebied geen reentrainment plaats vindt. Slinn (1976) geeft aan, dat naarmate de windsnelheid verder toeneemt, de concentratie ook weer zal stijgen (stofstormen). De afnemende monstername efficiency met toenemende windsnelheid voor aerosolen met diameters groter dan 5 à 10 μm is er debet aan, dat de experimenteel bepaalde relatie tussen windsnelheid en deeltjesdiameter er niet duidelijker op wordt.

In de Verenigde Staten zijn verschillende proeven genomen, waarbij de reentrainment van deeltjes door verkeer experimenteel bepaald is. Cowherd, Maxwell, e.a., (1977) hebben een stuk weg met een bepaalde laag van verschillende grondsoorten bedekt en vervolgens gemeten hoeveel stof er door passerende voertuigen in de lucht werd gebracht. Sehmel (1973) heeft zinksulfide met een diameter van 8 μm tot 25 μm als tracer op een weg aangebracht. Hij vond, dat de hoeveelheid in de lucht gebrachte deeltjes evenredig was met het kwadraat van de snelheid van de passerende auto's. Met andere woorden, dat de reentrainment evenredig was met de door de auto's veroorzaakte turbulentie. In beide genoem-

de onderzoeken zijn deeltjes gebruikt, die een factor 10 à 100 groter zijn dan de in het onderhavige onderzoek gemeten aerosolen, zodat de resultaten niet zo maar geëxtrapoleerd mogen worden.

CARLSON, BASSAZ, e.a., (1976) hebben de reentrainment van 1 μm à 3 μm grote loodchloride deeltjes op sojabonen onderzocht. Bij windsnelheden tot 6,7 m/s vonden zij geen reentrainment. Hogere windsnelheden hebben ze niet trachten te simuleren. Ook KLEPPER en CRAIG (z.j.) vonden bij depositieproeven op bladeren van 0,8 μm grote radioactieve goudaerosolen geen reentrainment. Van kleinere submicron deeltjes bestaan geen directe metingen. Metingen van SEHMEL en LLOYD (1976) over de reentrainment van uit een proefterrein voor radioactieve aerosolen ontsnapte plutoniumoxidedeeltjes met een oorspronkelijke diameter van 0,08 μm (HAYDEN, 1976) laten zien, dat slechts 2,8% tot 6% van het atmosferische plutoniumoxide aan deeltjes met een diameter van 1,1 μm of kleiner vast zaten. Het grootste gedeelte was geassocieerd met grotere deeltjes. Dit geeft aan, dat de reentrainment van submicrone deeltjes als submicrone deeltjes een proces is, dat minder belangrijk is. Reentrainment van deeltjes groter dan 1 μm beïnvloedt de resultaten van het onderhavige onderzoek niet, omdat deze deeltjes buiten het meetbereik vallen. Concluderend kan gesteld worden, dat de reentrainment van submicrone aerosolen verwaarloosbaar is ten opzichte van allerlei andere deeltjesgrootteverdeling beïnvloedende factoren als de relatieve luchtvochtigheid, depositie en coagulatie.

3. MONSTERNAME VAN AEROSOLEN

3.1. PRINCIPES VAN MONSTERNAME

Bij de monstername van aerosolen is het nuttig om een scheiding aan te brengen in de grootte van de aerosolen. De submicrone deeltjes zullen onder vrijwel alle omstandigheden de stroomlijnen van het medium volgen (FUCHS, 1975) en kunnen daarom op een heel andere manier bemonsterd worden dan de deeltjes met een diameter groter dan 1 μm. De problemen verbonden aan de monstername van de grotere deeltjes zullen hier slechts aangestipt worden, omdat deze deeltjes niet tot het terrein van het onderhavige onderzoek behoren. Voor een uitgebreidere behandeling hiervan wordt verwezen naar de opgegeven literatuur. DAVIES (1968) geeft een aantal criteria waaraan de monstername moet voldoen om nog representatief te zijn. FUCHS (1975) geeft een uitgebreid overzicht van de monstername. Daaruit blijkt dat alleen de monstername efficiëncy voor isokinetische en anisokinetische monstername in laminair stromende lucht theoretisch te beschrijven valt. De monstername efficiëncy in de turbulente lucht is nog een grotendeels onbekend terrein. Door praktische metingen komt er langzamerhand meer materiaal beschikbaar (zie RAYNOR; 1971), maar de theoretische integratie ontbreekt nog.

De submicrone deeltjes zijn niet richtingsgevoelig en kunnen met anisokinetische monstername nog met een efficiëncy van 100% gemonsterd worden (FUCHS, 1975). Eigen metingen hebben dit laatste feit nog eens bevestigd. Bij de IJ-tunnelproeven is een verdunningssysteem gebruikt zoals beschreven door WHITBY, LIU, e.a., (1972). Daarbij wordt een groot gedeelte van de lucht door een absoluut filter heen geleid en een klein gedeelte gaat door een kritisch capillair. De aanzuiging vindt dan plaats vanuit lucht met een stroomsnelheid kleiner dan 0,5 m/s door een capillair met een snelheid van 333 m/s zodat van een zeer anisokinetische situatie gesproken kan worden. De op grond van de doorgezogen volumina berekende verdunningsfactor bedroeg 402 en de gemeten verdunningsfactoren varieerden van 406 tot 394. Hieruit blijkt dat oriëntatie en aanzuigsnelheid niet van invloed zijn op de gemeten deeltjesconcentraties aan submicrone aerosolen.

3.2. VERLIEZEN IN LEIDINGEN

Bij submierone aerosolen en ook bij grotere deeltjes kunnen ook de verliezen in de aanzuigleidingen van invloed zijn op de gemeten concentraties. Ook hier is weer een onderscheid in twee fracties op zijn plaats. De deeltjes met diameters groter dan 1 μm moeten na de monstername door verticale leidingen zonder bochten naar de telapparatuur c.q. filters gevoerd worden. Zelfs dan kunnen nog behoorlijke verliezen in de leidingen optreden. Door nauwkeurige experimenten

TABEL 1. Correctiefactor voor de verliezen in de aanzuigleiding.

diam. in μm	0,013	0,024	0,042	0,075	0,133	0,237	0,422	0,750
gemeten correctiefaktor	1,212	1,114	1,103	1,083	1,068	1,076	1,101	1,122
correctiefaktor berekend op grond van theorie Davies (1966)	1,237	1,102	1,047	1,023	1,012	1,008	1,005	1,003

met monodisperse aerosolen van 1,4 tot 21 μm diameter hebben LIU en AGARWAL (1974) een relatie kunnen leggen tussen de depositieverliezen en de transportsnelheid en diameter van de leiding.

De depositieverliezen voor submicron aerosolen zijn ingewikkelder te beschrijven omdat daarbij naast de traagheidseffecten die voor deeltjes groter dan 1 μm de depositie bepalen ook de diffusiekrachten belangrijk worden. Juist in het overgangsgebied waar geen van beide effecten duidelijk de overhand heeft, ruwweg voor deeltjes met diameters tussen ongeveer 0,1 en 1 μm, ontbreken betrouwbare experimentele resultaten. Voor deeltjes kleiner dan 0,1 μm is de theorie met betrekking tot depositie onder invloed van diffusie ver genoeg ontwikkeld en experimenteel geverifieerd. Het bovenstaande is voldoende reden om de verliezen door de tijdens de eigen metingen gebruikte aanzuigleiding experimenteel te bepalen, omdat naast depositie onder invloed van diffusie en traagheid ook verliezen verwacht mogen worden ten gevolge van depositie onder invloed van electrische krachten en coagulatie tijdens het verblijf in de leidingen.

De depositieverliezen werden berekend door de verhouding van de concentraties van een met behulp van een collison vernevelaar verstoven ammoniumsulfaat aerosol te bepalen met en zonder de plastic monsterleiding (lengte 10.3 m, inwendige diameter van 1,23 cm, aanzuigsnelheid 7 m/s, Reynolds-getal 5800). De meting werd verricht met een electrische verdelings analysator. Het aerosol werd eerst ontladen met een radioactieve bron (LIU en PUI, 1974). In tabel 1 staat de verhouding van de oorspronkelijke concentratie en de aerosol concentratie na het passeren van de leiding weergegeven.

De verblijftijd in de aanzuigleiding is 1,5 seconden. Wanneer de invloed van coagulatie gedurende twee seconden op deze deeltjes met een totaal concentratie van 4 E5/cm^3 werd berekend bleek de afname van de deeltjesaantallen van iedere grootteklasse voor minder dan 2% door coagulatieverliezen verklaard te kunnen worden. De coagulatie als oorzaak van verliezen in de leiding wordt verder verwaarloosd, te meer daar de in de praktijk gemeten concentraties ver onder de hierbij gebruikte concentraties liggen. Op grond van de theorie van DAVIES (1966) zijn voor de vier deeltjesklassen kleiner dan 0,1 μm de depositiesnelheden uitgerekend voor het geval van diffusie door een turbulente grenslaag. Voor de vier klassen tussen 0,1 en 1 μm spelen de traagheid en de brownse beweging van de deeltjes een belangrijke rol en is de depositiesnelheid uitgerekend in een turbulente stroming. Met de door LIU en AGARWAL (1974) gegeven betrekking voor het verband tussen depositiesnelheid en het gedeelte P van de oorspronkelijke concentratie dat de leiding passeert wordt v_d:

$$v_d = \frac{Q''}{\pi \cdot 2R' \cdot L} \ln (1/P) \qquad 18$$

Met formule 18 is de berekende depositiesnelheid (DAVIES, 1966) omgerekend in de in ons geval verwachte fractie die de leiding passeert. In tabel 1 is de goede overeenstemming te zien voor de gemeten en berekende correctiefactor bij deeltjes met diameters van 0,013 en 0,024 μm. Voor de grotere deeltjes diameters ontstaat er een discrepantie tussen de gemeten en berekende correctiefactor. Hiervoor zijn een tweetal verklaringen te geven.

Hoewel het aerosol ontladen is, wil het niet zeggen dat er geen electrische ladingen meer op het aerosol zitten. De ladingsverdeling zal overeenkomstig een boltzmann verdeling zijn (LIU en PUI, 1974). Hetgeen inhoudt dat de deeltjes rond 0,01 μm vrijwel geheel ontladen zullen zijn, terwijl de deeltjes van 1 μm gemiddeld nog drie eenheidsladingen bezitten. Bij de grotere deeltjes kunnen dus met name ook electrische krachten, die in de gebruikte plastic monstername leiding een belangrijke rol kunnen spelen, de oorzaak van de grotere verliezen geweest zijn dan op grond van de theorie verwacht had mogen worden. Een tweede oorzaak van de verschillen tussen de theoretisch verwachte depositie en de in de praktijk gemeten depositie voor deeltjes tussen ongeveer 0,1 en 1,0 μm kan ook gelegen zijn aan het feit dat van deeltjes met deze grootte weinig experimentele depositieverliezen bepaald zijn en de theorie meer een verbinding is tussen de depositie in leidingen alleen op grond van de diffusie en de depositie in leidingen alleen op grond van de traagheid. De in tabel 1 gemeten correctiefactoren worden verder tijdens de experimenten gebruikt om voor de verliezen in de aanzuigleiding te corrigeren.

4. MEETINSTRUMENTEN

4.1. INLEIDING

Bij de meeste onderzoeken wordt zoveel mogelijk getracht om met behulp van verschillende instrumenten het totale deeltjesspectrum te meten, omdat dit vergelijkingen tussen de verschillende meetprincipes mogelijk maakt en de betrouwbaarheid van de meetresultaten vergroot. Zowel bij de MAAS (Minnesota Aerosol Analyzing System) van WHITBY, LIU, e.a., (1972) en de ACHEX (Aerosol Characterization Experiment met een instrumentele beschrijving door SEM, WHITBY, e.a., (1976)) is een controle op de metingen van de electrische verdelings analysator ingebouwd. Dit gebeurd door simultane metingen met een condensatie kernen teller waarbij controle mogelijk is op metingen in het gebied rond 0,02 μm en met een optische deeltjes teller voor deeltjes groter dan 0,4 μm. Ook bij de door het Environmentel Protection Agency vanaf 1975 gebruikte meetwagen is voor dezelfde overlapping van de meetbereiken gezorgd (WHITBY, KITTELSON, e.a., 1976). Bij de eigen onderzoeken is de optische deeltjes teller om een aantal redenen niet gebruikt. Bij verse verkeersaerosolen valt de belangrijkste hoeveelheid deeltjes, meer dan 99%, onder het meetbereik van de optische deeltjes teller. Een tweede reden was de lage precisie bij de ijking van de aanwezige optische deeltjes teller. Een derde is de bij de optische deeltjes tellers falende telefficiëncy voor deeltjes in het gebied tussen 0,3 μm en 1,0 μm (VAN DER MEULEN, PLOMP, e.a., 1979).

4.2. WERKING MEETINSTRUMENTEN

4.2.1. *Electrische verdelings analysator*

De in het onderhavige onderzoek gebruikte electrische verdelings analysator (Model 3030 van TSI, serie nr. 72) is beschreven door WHITBY (1976) en LIU en PUI (1975). Dit instrument is een verdere ontwikkeling van het prototype (model 3000 van TSI) beschreven door WHITBY en CLARK (1966). Een diepgaande studie met betrekking tot de oplading van aerosolen is verricht door PUI (1976). Een vervolgstudie is beschreven door PUI en LIU (1976) en LIU, PUI en KAPADIA (1976). In figuur 7 is een schematisch diagram van de electrische verdelings analysator opgenomen. Voor meer details met betrekking tot het instrument wordt verwezen naar de hierboven geciteerde publicaties.

Het meetprincipe van de electrische verdelings analysator berust op het opladen van aerosolen met positieve gasionen in een diffusieoplader. Deze oplading vindt plaats wanneer een hoge positieve spanning op een wolfraam draad wordt gebracht om een corona ontlading voort te brengen. De op het aerosol gebrachte lading is afhankelijk van het product van ionen concentratie en de verblijftijd van het aerosol bij de oplader (PUI, 1976). Verder is de hoeveelheid ladingen per

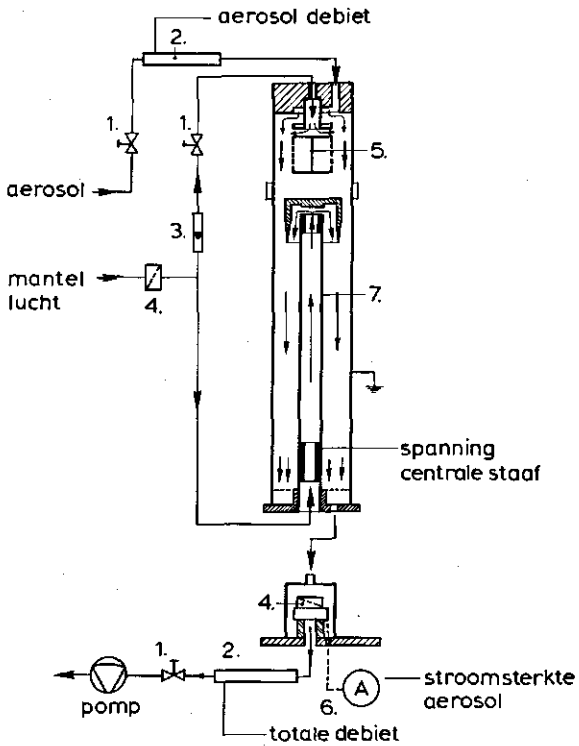


FIG. 7. Schema van de electrische verdelingsanalysator.

1. afsluiter
2. debietmeter
3. rotameter
4. filter
5. diffusie oplader
6. ampère meter
7. centrale staaf

deeltje afhankelijk van de diameter. Hoe groter de diameter hoe meer ladingen erop zullen zitten. Dit varieert van gemiddeld één eenheidslading per deeltje met een diameter van 0,03 μm tot 42 voor een deeltjes van 1,0 μm. De resulterende electrische mobiliteit is echter een monotoon dalende functie voor deeltjes met een diameter groter dan 0,006 μm tot ongeveer 1,0 à 1,5 μm. Doordat over de centrale staaf vervolgens een negatieve spanning wordt aangelegd variërend van 19 V tot 1060 V worden achtereenvolgens de deeltjes met een hoge tot een lage mobiliteit afgevangen. De overblijvende deeltjes zijn nog opgeladen. Wanneer deze afgevangen worden op een zeer goed geïsoleerd filter ontstaat er een stroompje variërend van 0,01 pA tot ongeveer 13 pA. Deze stroom is een maat voor de deeltjesconcentratie, terwijl de bijbehorende spanning van de centrale staaf een maat is voor de mobiliteit en daarmee de maat van de deeltjes. Door het verschil te nemen van de gemeten stroomsterktes bij opklimmende spanning ontstaat een indruk van de deeltjesgrootteverdeling. Een complete meting van deeltjes van 0,003 μm tot 1,0 μm, waarbij het apparaat achtereenvolgens de stroomsterktes bij verschillende diameters meet, kost ongeveer 135 seconden. Het totale debiet door het instrument is 833 cm^3/s. Daarvan wordt 66.7 cm^3/s, het eigenlijke aerosolmonster, opgeladen en 16.7 cm^3/s gebruikt als mantel lucht voor de diffusie ontlader. De rest wordt gebruikt als luchtmantel rond de centrale staaf.

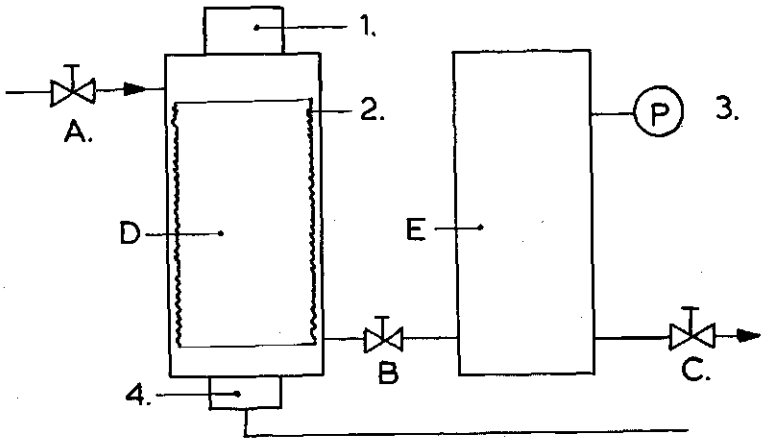


FIG- 8. Schema van de condensatiekernenteller.
1. lamp
2. vochtigfiltreer papier
3. manometer
4. Cd-Se cel

4.2.2. *Condensatie kernen teller*

De condensatie kernen tellers die gebruikt zijn in dit onderzoek zijn twee handtellers van Gardner Ass. Inc. (serienummers 1146 en 1225). Dit instrument is beschreven door RICH (1955). Bij een concentratiemeting is de procedure als volgt (zie figuur 8). In het vat D wordt een aerosolmonster gepompt. Doordat de wand van dit vat voorzien is van een vochtig filtreerpapier wordt het aerosol bevochtigd tot maximaal de verzadigingsspanning van waterdamp bij de heersende temperatuur. Na het sluiten van kranen A en B wordt met de pomp in vat E een onderdruk van 27,1 kPa aangebracht. Na het sluiten van kraan C en het openen van B ontstaat een plotselinge expansie van het in D aanwezige luchtmengsel. Ten gevolge van de afkoeling wordt de verzadigingsspanning van waterdamp overschreden. Er vindt condensatie plaats op de aanwezige kernen. De daaruit gevormde mist verlaagt de intensiteit van een lichtbundel door het meetvolume. Dit wordt geregistreerd met behulp van een Cd-Se foto-electrische cel. De afname is een maat voor de concentratie van de aerosoldeeltjes.

4.3. BEPERKINGEN AAN DE GEBRUIKTE INSTRUMENTEN

4.3.1. *Electrische verdelings analysator*

Bij de electrische verdelings analysator kunnen de fouten op twee verschillende manieren doorwerken. Er kan een onjuiste concentratie worden aangegeven en er kan een onjuiste grootteclassificatie plaatsvinden. Aangezien beiden met de electrische mobiliteit en de oplading van het aerosol te maken hebben, zijn deze twee invloeden niet zo scherp te scheiden. Beide fouten zullen in het volgende verhaal gezamenlijk aan de orde komen.

De vorm van de deeltjes heeft invloed op de grootteclassificatie. Alle ijkingen van het instrument zijn uitgevoerd met monodisperse bolvormige aerosolen, zodat de respons niet zonder meer vertaald kan worden naar deeltjesgroottes en concentraties van bijvoorbeeld de kettingstructuren van echte coagulaat aerosolen. VOMELA en WHITBY (1967) geven aan dat de electrische mobiliteit van kettingvormige coagulaat aerosolen anders is dan van sferische aerosolen. KOPS (1976) kon, doordat hij met behulp van een stöber-centrifuge nauwkeurige metingen aan deze aerosolen heeft uitgevoerd, aannemelijk maken dat in de metingen van Vomela en Whitby een fout van ruwweg een factor twee zit. KOPS (1976) acht hiervoor met name de experimentele opzet van de beide genoemde onderzoekers verantwoordelijk. Een vers verkeersaerosol bestaat grotendeels uit bolvormige deeltjes, zoals blijkt uit electronen microscopische foto's van LITTLE en WIFFEN (1978). De vormfactor zal voor het onderhavige onderzoek van ondergeschikte betekenis zijn.

Als *ondergrens* van de electrische verdelings analysator wordt 0,0032 μm opgegeven volgens de eerste publicaties van LIU, WHITBY, e.a., (1974). Later is deze grens van fabriekswege wat gerelativeerd door SEM (1976) die aangeeft dat het instrument onder 0,01 μm zijn beperkingen heeft en dat de calibratiefactor van LIU en PUI (1975) voor deeltjes tussen 0,005 en 0,01 μm slechts onder voorbehoud gegeven is. Wanneer metingen van aerosolen tot 1,0 μm gewenst zijn, vervolgt SEM (1976), kunnen de concentraties aan deeltjes onder 0,01 μm niet vertrouwd worden. In het onderhavige onderzoek zijn daarom alleen de concentraties van deeltjes groter dan 0,01 μm bepaald. Wanneer bij andere onderzoeken getracht wordt om deeltjes onder 0,01 μm te meten kunnen fouten ontstaan. Een voorbeeld zijn de metingen van HUSAR (1971) met betrekking tot de coagulatie van submicron aerosolen. DAVIES (1979) geeft aan dat de door Husar gemeten resultaten theoretisch inconsistent zijn en ziet de electrische verdelings analysator als mogelijke oorzaak hiervan. De grote meetproblemen bij deeltjes kleiner dan 0,01 μm worden veroorzaakt door een onvolledige oplading van deeltjes onder 0,03 μm en door verliezen in het instrument. LIU en PUI (1975) geven aan dat de correctiefactoren respectievelijk 3,8; 2,0 en 1,4 bedragen voor aerosolen van 0,013; 0,024 en 0,042 μm. Voor grotere deeltjes is deze factor kleiner dan 1,2. Bij deeltjes met een diameter van 0,0075 μm bedraagt deze factor al 100. Kleine meetfouten en electronische fluctuaties werken ten gevolge van deze grote correctiefactoren zeer sterk door en maken daardoor de betrouwbaarheid onder 0,01 μm klein.

Een ander effect dat zijn invloed kan hebben op de deeltjesgrootteverdeling is de reeds aanwezige *lading* op het aerosol. Gezien de in-complete oplading van deeltjes kleiner dan 0,03 μm kunnen reeds aanwezige electrische ladingen grote verschillen bij de concentratiemeting opleveren. Daarom wordt door LIU en PUI (1974) aanbevolen om het aerosol eerst te ontladen met behulp van een radioactieve bron. De ladingsverdeling op het aerosol is dan overeenkomstig een boltzmann evenwicht. Omdat LIU en PUI (1975) deze procedure bij de ijking ook gevolgd hebben is het aerosol tijdens het grootste gedeelte van het practische werk ook ontladen.

Sterk met de oplading samenhangend is de sprong in de *electrische mobiliteit* van deeltjes met een diameter dan 0,042 m. Dat het verschil in mobiliteit van deeltjes met één of twee eenheidsladingen bij deze diameter zeer groot is, blijkt uit het feit dat in de responsmatrix van LIU en PUI (1975) slechts 7% van de deeltjes van 0,042 m goed geclassificeerd worden. Van deze deeltjes wordt 49% geteld als deeltje van 0,024 μm en 44% als deeltje van 0,075 μm. Deze onderschatting van de concentratie is met name voor deeltjes van 0,042 μm belangrijk. Bij grotere deeltjesdiameters zijn de verschillen in mobiliteit bij een verschil van één eenheidslading veel geringer. De oorzaak hiervan is een groter aantal eenheidsladingen op één aerosoldeeltje en de grotere massa van het aerosoldeeltje. Door de toenemende aantallen eenheidsladingen op aerosoldeeltjes van 0,042 μm en groter wordt de afnemende electrische mobiliteit sterk afgezwakt. Hoewel deze curve dalend is tot 1,0 à 1,5 μm is de geringe daling bij deeltjesdiameters groter dan 0,5 μm de oorzaak van de grotere standaardafwijking bij concentratiemetingen van deeltjes van 0,75 μm.

Doordat de ijking van de electrische verdelings analysator alleen met *monodisperse aerosolen* is uitgevoerd, is de invloed van heterodisperse en polydisperse aerosolen op de respons van het instrument helaas niet te schatten. Daarom worden in het onderhavige onderzoek de monodisperse calibraties gebruikt.

DWIGGINGS (1975) en MARLOW, REIST en DWIGGINS (1976) rapporteren dat gassen, met name SO_2, invloed hebben op de concentratiemeting met de electrische verdelings analysator. Aangezien men bij deze experimenten de mantellucht en het aerosolmonster uit gescheiden systemen betrok, kunnen er fouten ontstaan zijn en aangezien de door hen gemeten concentraties relatief laag zijn heeft de ruis een relatief grote invloed. De resultaten geven geen consistent beeld. De in deze publicaties geplaatste vraagtekens achter het functioneren van de electrische verdelings analysator kunnen gevoeglijk achter de experimentele opzet geplaatst worden. LIU (1977) geeft aan, dat toevoeging van SO_2, met concentraties die ook in de buitenlucht voorkomen, geen invloed heeft op de respons van de electrische verdelings analysator. SEM (1976) waarschuwt tegen het betrekken van de mantellucht en het aerosolmonster uit gescheiden systemen. Alleen wanneer de relatieve vochtigheid en de temperatuur van beide luchtsoorten identiek zijn, acht hij een dergelijke opzet toelaatbaar.

Het temperatuurverschil moet kleiner zijn dan 3 °C (SEM; 1975). Naast de in 3.3 beschreven invloed van de *relatieve vochtigheid* van de lucht op de deeltjesgrootteverdeling kan er ook sprake zijn van invloed op de oplading van het aerosol. De opladende ionen zijn met een aantal watermoleculen omgeven. Dit aantal watermoleculen en daarmee de massa van de ionen, is afhankelijk van de relatieve vochtigheid. PUI (1976) berekende de mobiliteit van de ionen alleen voor een relatieve vochtigheid van 10%. Aangezien de meeste aerosolmonsters bij een hogere luchtvochtigheid worden gemeten is een herhaling van de berekening voor een hogere relatieve vochtigheid op zijn plaats. Bij 90% relatieve luchtvochtigheid blijkt de meerderheid van de ionen omgeven te zijn met acht watermoleculen in plaats van zes bij 10% relatieve vochtigheid. Aangezien de gemiddelde snelheid van de ionen evenredig is met de wortel uit de massa, blijkt

dat verhoging van de relatieve luchtvochtigheid tot 90% een verschil in ionsnelheid van 15% oplevert. Met de conclusie dat door de in de electrische verdelings analysator bestaande terugkoppelingsmechanismen, om het product van het aantal ionen en de passagetijd constant te houden, de invloed van de relatieve vochtigheid zeer gering zal zijn kon PUI (1977) zich verenigen. De relatieve vochtigheid van de lucht kan wel een belangrijke invloed hebben op de concentratiemeting wanneer zich tengevolge van condensatie een waterfilmpje afzet in het instrument op de plaats waar de opladende ionenstroom gemeten wordt. Deze stroom wordt constant gehouden, door een terugkoppeling naar de diffusieontlader. Ten gevolge van het weglekken van ionen over het vochtfilmpje zal de productie van ionen vergroot worden en kan bij verder gebruik de wolfraamdraad ernstig beschadigd worden.

4.3.2. *Condensatie kernen teller*

Aangezien de condensatiekernen tellers in dit onderzoek slechts als referentie instrument gebruikt zijn, wordt voor de beperkingen verbonden aan het gebruik met name verwezen naar de uitgebreide dissertatie van HOLLÄNDER (1978) over de detectiegrens van condensatie kernen tellers voor polydisperse aerosolen. De auteur behandelt daarin de invloed van de oververzadiging, de expansietijd, de verliezen in de condensatie kernen teller en de chemische samenstelling van het aerosol. Eén van de zaken die door recent onderzoek aan het licht zijn gekomen door de publicaties van PERRIN (1976) en LIU en KIM (1977) betreft de onvolledige telefficiëncy van de condensatie kernen teller bij deeltjesdiameters rond 0,01 μm. Ook de lading op het aerosol is op deze efficiëncy van invloed (LIU en KIM, 1977).

4.4. AANPASSINGEN AAN DE INSTRUMENTEN

4.4.1. *Electrische verdelings analysator*

De bij dit onderzoek gebruikte electrische verdelings analysator is gelijk aan het commercieel verkrijgbare exemplaar door één wijziging die in oktober 1977 in het instrument is aangebracht. De teflon isolator onder aan de centrale staaf is in overeenstemming gebracht met de huidige fabrieksuitvoering. Daardoor is deze electrische verdelings analysator te vergelijken met alle andere electrische verdelings analysators boven serienummer 90. Door de geringere isolerende werking van het betreffende stuk teflon na de wijziging loopt de spanning van de centrale staaf, nadat er aan het eind van een meetcyclus korte tijd 10600 V

TABEL 2. Gemeten stroomsterktes in pA met de electrische verdelings analysator met een testaerosol van ammoniumsulfaat 0,2 g/dm³ uit een collison aerosolgenerator.

diam. μm	0,004	0,007	0,013	0,024	0,042	0,075	0,13	0,24	0,42	0,75
oud teflon	–	–	0,066	1,717	0,757	1,054	0,479	0,149	0,044	0,018
nieuw teflon	0,045	0,054	0,204	1,589	0,677	0,833	0,366	0,144	0,032	0,012

spanning op heeft gestaan, sneller naar 0 V terug dan voorheen. Bij het meten van aerosolen in de oude opzet was de op de staaf resterende spanning soms hoger dan 19 V zodat er deeltjes met een grotere diameter dan 0,0032 μm werden afgescheiden. In tabel 2 is de invloed van deze modificatie te zien.

Bij de vergelijking in 5.3. tussen de meetwaarden van de electrische verdelingsanalysator en de condensatie kernen teller zijn alleen die meetwaarden gebruikt die gemeten zijn nadat bovengenoemde wijziging is uitgevoerd.

4.4.2. *De condensatie kernen teller*

Een van de beide condensatie kernen tellers met serienummer 1225 is door Hofschreuder in 1978 omgebouwd tot een volautomatisch apparaat waarbij de gemeten extinctie op een recorder wordt geregistreerd. Dit instrument heeft na de automatisering een cyclustijd van 180 of 80 seconden. Hierover zal door Hofschreuder elders gerapporteerd worden.

5. CONTROLE EN VERGELIJKING VAN DE MEETINSTRUMENTEN

5.1. ELECTRISCHE VERDELINGS ANALYSATOR

De resultaten van de meest recente ijkingen van de electrische verdelings analysator met monodisperse aerosolen zijn beschreven door LIU, WHITBY en PUI (1974), LIU en PUI (1975), PUI (1976), PUI en LIU (1976) en LIU, PUI en KAPADIA (1976). Naarmate de technische kennis voortschreed werden ook de ijkingen nauwkeuriger dan de vóór 1974 gehanteerde waardes. MILLER, LEVY, e.a., (1974) geven aan, dat het door hen gerapporteerde volume van een autoaerosol een factor twee te hoog is, omdat zij bij de uitwerking van hun metingen nog van een oudere calibratietabel uitgegaan zijn. De uitkomsten van metingen met de electrische verdelings analysator vóór het midden van de jaren 70 moeten dan ook met de nodige voorzichtigheid betracht worden. Ook bij latere metingen bestaat nog een mogelijkheid van verwarring omdat verschillende ijktabellen gebruikt kunnen zijn, zie tabel 3. Bij de in dit proefschrift gerapporteerde metingen zijn steeds de ijkwaarden van LIU, PUI en KAPADIA (1976) gebruikt. Uit de gepresenteerde deeltjesconcentraties kunnen desgewenst de gemeten stroomsterktes teruggerekend worden. Het is belangrijk om dit gegeven te rapporteren omdat de ijkwaarden voor deeltjes van 0,013 μm, die een belangrijk onderdeel van het totaal aantal uitmaken, 19% verschillen als de calibratiefactoren van LIU, PUI en KAPADIA (1976) aangehouden worden in plaats van die van LIU en PUI (1975). Als de door WHITBY, KITTELSON, e.a. (1976) opgegeven waardes gebruikt worden ontstaat zelfs een nog groter verschil.

De vereiste technische kennis en de complexiteit van een ijking van de electri-

TABEL 3. Overzicht van de callibratiefactoren van de electrische verdelings analysator in deeltjes/cm³ per pA.

diameter in μm	bron: Liu, Whitby, Pui (1974)	Liu, Pui (1975)	Whitby, Kittelson, e.a., (1976)	Liu, Pui, Kapadia (1976)
0,0042	1,102 E7	–	–	3,25 E8
0,0075	3,596 E6	9,52 E6	1,36 E6	8,61 E6
0,013	1,069 E6	4,17 E5	3,16 E5	3,50 E5
0,024	3,062 E5	1,67 E5	1,53 E5	1,79 E5
0,042	9,866 E4	8,70 E4	1,57 E5	9,19 E4
0,075	4,775 E4	4,44 E4	3,09 E4	4,72 E4
0,133	2,356 E4	2,41 E4	2,43 E4	2,44 E4
0,237	1,356 E4	1,23 E4	1,52 E4	1,24 E4
0,422	7,781 E3	6,67 E3	5,68 E3	6,37 E3
0,750	4,461 E3	3,51 E3	1,33 E3	3,27 E3

sche verdelings analysator is er de oorzaak van dat er in de literatuur geen ijkingen gerapporteerd zijn door onderzoekers buiten de groep van Whitby en Liu. FLAGAN (1977) van het California Institute of Technology geeft aan dat men ook daar op de gerapporteerde ijkingen vertrouwt. Om bovenstaande redenen is een ijking van de electrische verdelings analysator niet overwogen. Een extra complicerende factor is het feit dat de respons van het instrument niet ideaal is te noemen. De respons van deeltjes met één bepaalde diameter wordt gedeeltelijk over de naburige deeltjesdiameters uitgesmeerd. De gemeten stroomsterktes lijken dan op die van een polydispers aerosol zelfs wanneer het aangeboden aerosol zeer monodispers is. LIU en PUI (1975) rapporteren deze responsmatrix voor het eerst. Tengevolge van de immer aanwezige toevallige fouten bij de metingen is deze niet door een eenvoudige matrix inversie op te lossen. Hiervoor is een speciaal computerprogramma ontwikkeld door LIU, PUI en KAPADIA (1976) en LIU en KAPADIA (1977), dat ook voor het onderhavige onderzoek beschikbaar gemaakt is. Uitgaande van de werkelijk gemeten responsmatrix wordt één enkele, of een tweetal lognormale verdelingen met een zekere standaardafwijking op de gemeten stroomsterktes gefit, totdat de som van de gekwadrateerde verschillen van de via de (niet ideale) responsmatrix berekende stroomsterktes en de gemeten stroomsterktes minimaal is. Vanwege het uitgangspunt dat er zo per definitie een lognormale verdeling gemeten wordt is deze procedure niet gevolgd. Een bijkomende reden was dat het gebruik van het computermodel dikwijls leidde tot een geometrisch gemiddelde deeltjesdiameter die ver lag onder de ondergrens van het instrument van 0,01 μm, wanneer de gemeten stroomsterktes van een heterodispers natuurlijk aerosol werden ingevoerd. De voorbeelden van LIU, PUI en KAPADIA (1976) waarmee de bruikbaarheid van de boven beschreven methode wordt aangegeven betreffen slechts in het laboratorium gegenereerde testaerosolen. Een derde reden om deze procedure niet te volgen was het feit dat de berekende deeltjesconcentraties daarna niet meer een eenduidige relatie zouden vertonen met de gemeten stroomsterktes. Ondanks hun onvolkomenheid vormen deze laatste toch de basis van de metingen met dit instrument.

Een belangrijk gegeven met betrekking tot het functioneren van de electrische verdelings analysator is de monsternamefrequentie en daarmee de hoeveelheid metingen die ten grondslag liggen aan een bepaalde uitkomst. Met het MAAS (WHITBY, LIU, e.a., 1972) werd één deeltjesgrootteverdeling gemeten met de electrische verdelings analysator gedurende 1200 seconden. Terwijl met de ACHEX (SEM, WHITBY, e.a., 1976) iedere 600 seconden één meting werd uitgevoerd. Tijdens deze metingen werden, om de invloed van electronische ruis tegen te gaan, de stroomsterktes 30 keer gemeten gedurende 2 seconden en de gemiddelde aflezing werd verder verwerkt. Ook bij latere metingen werd slechts éénmaal in de 600 seconden een deeltjesgrootteverdeling met de electrische verdelings analysator uitgevoerd (WHITBY, KITTELSON, e.a., 1976). Een uurgemiddelde concentratie, een veel gerapporteerd getal, bestond dus veelal uit 6 complete meetcycli met de electrische verdelings analysator. Bij het eigen onderzoek is iedere gerapporteerde atmosferische concentratie het gemiddelde van 6, 9 of 15

cycli met de electrische verdelings analysator. DAVIES (1974) geeft aan dat het bij metingen met condensatie kernen tellers gebruikelijk is om uit de afzonderlijke metingen een geometrisch gemiddelde concentratie te berekenen. Gezien de vergelijkbaarheid in meetbereik tussen de electrische verdelings analysator en condensatie kernen teller is dit ook hier toegepast. Voor de berekening van de deeltjesgrootteverdeling is het geometrisch gemiddelde van 6, 9 of 15 series stroomsterktes per deeltjesgrootte gebruikt. Hierdoor wordt de invloed van toevallige uitschieters gedempt en een lagere standaarddeviatie verkregen.

Hoewel er geen ijking van de electrische verdelings analysator is uitgevoerd, was met behulp van een collison vernevelaar een controle mogelijk op een aantal functies van de electrische verdelings analysator. In 1935 is dit apparaat door W. E. Collison gebruikt om kleine deeltjes te genereren. Sindsdien is het met name bij het testen van filters een veel gebruikte generatietechniek. Voor het onderzoek is een collison vernevelaar gemaakt volgens de specificaties van MAY (1973). Met behulp van deeltjesvrije perslucht met een druk van 172 kPa wordt een oplossing verstoven. De verstoven druppeltjes worden vervolgens gefractioneerd omdat ze met kracht tegen de wand van een vat worden geslingerd (zie figuur 9). Deze kleine druppeltjes worden daarna gedroogd door menging met droge en deeltjesvrije lucht (1033 cm^3/s) waarbij een polydispers aerosol ontstaat van de opgeloste stof met een grootte orde beginnend iets onder 0,01 μm tot 1 à 2 μm. De resulterende relatieve luchtvochtigheid is ongeveer 20% bij het in figuur 9 geschetste systeem. De lading op de deeltjes wordt vervolgens met een bolzmann verdeling in evenwicht gebracht met behulp van de β-straling uit een radioactieve bron van 10 mCi (TSI 3054). Deze methode wordt beschreven door LIU en PUI (1974).

Door de grote eenvoud van de vernevelaar, het ontbreken van mechanische en electrische delen, ontstaat een zeer goed reproduceerbaar aerosol met een stan-

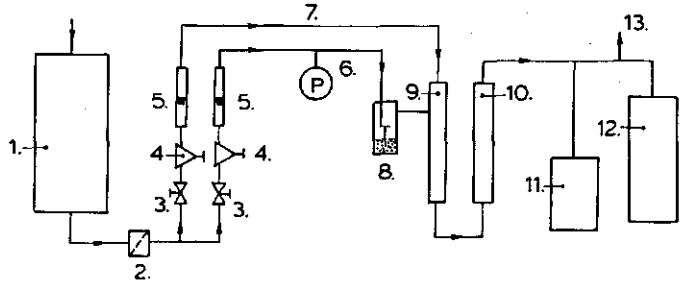


FIG. 9. Opstelling bij de controle van de meetinstrumenten met behulp van een collison vernevelaar.

1. diffusie droger
2. filter
3. afsluiter
4. flow controller
5. rotameter
6. drukmeter (manometer)
7. droge menglucht
8. collison vernevelaar
9. mengvat
10. radioaktieve bron
11. condensatie kernen teller
12. elektrische verdelings analysator
13. overloop

daard afwijking van het totaal aantal (gemeten met een condensatie kernen teller) van 3%, mits de druk van de perslucht en de concentratie van de vernevelde oplossing steeds dezelfde zijn. LIU en LEE (1975) geven aan dat verrijking van de vernevelde oplossing, met name bij het gebruik van een vluchtig oplosmiddel, de oorzaak kan zijn van een verandering van de concentratie van het geproduceerde aerosol. Bij het gebruik van een ammoniumsulfaatoplossing in water blijkt na ruim een uur nog geen verrijking op te treden en de productie in de tijd ook zeer constant te zijn, met een standaardafwijking van 3% gebaseerd op metingen met een condensatie kernen teller. De gebruikte standaardoplossing is 0,2 g/dm³ ammoniumsulfaat is gedemineraliseerd water. Voor het aanmaken van deze standaardoplossing is het gedemineraliseerd water eerst nog gefilterd over een filter met een poriediameter van 0,15 μm. ELLESTAD (1977) van het Environmental Protection Agency geeft aan dat men daar ook gedemineraliseerd water als oplosmiddel gebruikt in verband met de lage achtergrond aan deeltjes. Er is gekozen voor een ammoniumsulfaatoplossing omdat deze stof een belangrijke fractie van de natuurlijke aerosolen vormt. LEADERER, BERNSTEIN, e.a. (1978) geven aan dat 54% van het door hen onderzochte atmosferische sulfaat tussen 0,04 en 0,3 μm diameter bestaat uit ammoniumsulfaat. Ook veel andere onderzoekers wijzen op de sterke samenhang tussen ammonium en sulfaat (zie KADOWAKI; 1976, MESZAROS; 1974 en APPEL, KOTHNOY, e.a., 1978). Hoewel het gegenereerde aerosol met behulp van in figuur 9 geschetste opstelling dus onbekend is qua grootteverdeling en concentratie is het mogelijk om het als een referentie aerosol te gebruiken omdat het zeer constant is.

5.1.1. *Meetbereik*

Wanneer door de in figuur 9 beschreven opstelling alleen perslucht wordt geleid zonder dat de collison werkt kan een indruk worden verkregen van de gevoeligheid van de electrische verdelings analysator. Uit tabel 4 blijkt, dat de detectiegrens (de gemiddelde achtergrond plus driemaal de standaardafwijking) van de electrische verdelings analysator) heel laag is. De afwijkingen in de respons van de electrometer ten gevolge van de ruis van het instrument zijn tot

TABEL 4. Gevoeligheid electrische verdelings analysator. Concentraties in deeltjes/cm³ en in pA.

diameter in μm	gemiddelde achtergrond	variatie coëfficiënt	gemiddelde achtergrond en 3 × standaardafwijking (detectiegrens) deeltjes/cm³	pA
0,0075	2583	2619	10441	0,0012
0,013	53	64	244	0,0007
0,024	121	56	290	0,0016
0,042	30	24	101	0,0011
0,075	17	15	62	0,0013
0,133	10	6	29	0,0012
0,237	4	2	10	0,0008
0,422	1	1	4	0,0006
0,750	6	1	8	0,0024

een factor 10 lager dan van het prototype gepresenteerd door LIU, WHITBY en PUI (1974). LIU en PUI (1975) geven een minimaal meetbare concentratie van 5 deeltjes/cm³ met een diameter van 0,75 μm. Dit is goed in overeenstemming met de in tabel 4 gemeten waarde. Tijdens de metingen zijn alleen de deeltjes groter dan 0,01 μm gemeten zodat de detectiegrenzen gezien de concentraties in de buitenlucht geen rol van betekenis meer spelen.

De bovengrens van het concentratie bereik van de electrische verdelings analysator kan minder strak worden omschreven. Als algemene regel is uit de eigen metingen naar voren gekomen dat de totale stroom gegenereerd door het opgeladen aerosol kleiner moet zijn dan 13 pA. Aangezien dit over verschillende deeltjesgrootteklassen verdeeld is, is een exacte bovengrens niet te geven. Deze zal ergens in de buurt van de 1 à 4 E6 deeltjes/cm³ bedragen. Bij deze en hogere concentraties is een verdunning noodzakelijk om nog betrouwbare metingen te kunnen doen (zie 8.3). SEM (1976) beveelt aan om bij volume concentraties boven 100 μm³/cm³ een verdunning uit te voeren.

5.1.2.1. Reproduceerbaarheid

Met behulp van de opstelling uit figuur 9 kan de reproduceerbaarheid van metingen met de electrische verdelings analysator bepaald worden. Voor deeltjes kleiner dan 0,01 μm kan deze niet groot genoemd worden (zie tabel 5). De standaardafwijking is namelijk groter dan de meetwaarde. Deze hoge standaardafwijking wordt met name veroorzaakt door de geringe telefficiëncy van de electrische verdelings analysator voor deeltjes kleiner dan 0,01 μm. Daarom worden veelal alleen de meetwaardes boven 0,01 μm opgegeven. WILLEKE WHITBY, e.a., (1974, 1975), WHITBY, CLARK, e.a. (1975), STEVENS, LAMOTHE, e.a. (1976), FISSAN, HELSPER, e.a., (1976) en FISSAN, FRANZEN, e.a., (1978) geven allen de meetresultaten van verse verkeers aerosolen groter dan 0,01 μm. Slechts onder zeer geconditioneerde laboratorium omstandigheden worden nog betrouwbare meetwaarden met een diameter van 0,0075 μm gerapporteerd. (PUI; 1976, PERRIN; 1976).

TABEL 5. Variatie coëfficiënt in procenten van metingen met de electrische verdelings analysator.

diameter in μm	gemeten stroomsterkte in pA	variatie coëfficiënt bij 1 meting	var. coëff. bij geometr. gemidd. 3 metingen	var. coëff. bij geometr. gemidd. 6 metingen
0,004	0,065	338	214	167
0,007	0,054	163	146	46
0,013	0,208	60	26,7	15,3
0,024	1,591	4,9	3,4	2,3
0,042	0,678	5,6	3,1	1,7
0,075	0,838	5,7	2,2	2,2
0,133	0,370	7,5	2,2	1,4
0,237	0,113	7,0	5,0	3,8
0,422	0,032	29,8	15,5	5,5
0,750	0,014	30,5	12,4	10,5

Om de reproduceerbaarheid te vergroten wordt bij de verwerking van de meetgegevens een rekenkundige bewerking toegepast. De deeltjesgrootteverdeling wordt berekend op basis van een geometrisch gemiddelde over drie metingen in plaats van slechts één. Een gedeelte van de in het meetinstrument optredende fluctuaties wordt dan uitgemiddeld en daarmee wordt de reproduceerbaarheid vergroot. In plaats van over drie metingen kan ook het geometrisch gemiddelde over zes metingen bepaald worden, zoals bij de veldmetingen in Veenendaal is gebeurd. De procentuele standaardafwijking van de meetwaarden (tabel 5) wordt door deze bewerking aanzienlijk verkleind. Tijdens de metingen in Wageningen is het geometrisch gemiddelde over 15 metingen en bij de proeven in de IJtunnel over 27 metingen gebruikt.

5.1.2.2. Stabiliteit

De gegenereerde aerosolen met de in figuur 9 geschetste opstelling zijn zeer constant zodat er een controle op de verloop van de respons van het instrument mee mogelijk is. Tijdens oriënterende metingen bleek deze controle nodig te zijn omdat de meetresultaten aanleiding gaven te veronderstellen dat de respons van het instrument niet constant was in de tijd. Na monstername van buitenlucht aerosolen gedurende in totaal 75 tot 100 uur met de electrische verdelings analysator werden de concentraties van de kleinste deeltjes systematisch lager. Na het inzetten van een nieuw filter en het schoonmaken van de teflon isolator in de electrometer (iets wat volgens de gebruiksaanwijzing eens in 400 tot 500 draaiuren hoefde te gebeuren) nam de respons weer toe tot het oorspronkelijke niveau. Tijdens een studiereis naar de Verenigde Staten is bij de fabrikant van de electrische verdelings analysator een experiment uitgevoerd met een electrische verdelings analysator en een collison vernevelaar om te zien of het gevonden verloop na 75 tot 100 uur monstername van een binnenlucht aerosol zich zou herhalen. Er bleek echter geen verloop in de respons op te treden. De verklaring voor deze verschijnselen bleek achteraf niet gelegen in een filterbelading maar in de vervuiling van de isolator waar het filter op zit. Hierover lekt een fractie van de stroom weg en daardoor worden lagere stroomsterktes gemeten zodat de respons afneemt. Dit verschijnsel heeft de meeste invloed op de kleinere fracties. In tabel 6 zijn de meetwaarden te zien van een filter met een belasting van 150 uur met een schoongemaakte isolator en een nieuw filter met een eveneens schoongemaakte isolator in de electrometer. Het aangeboden testaerosol is hetzelfde.

Bij herhaling in Nederland van de hierboven beschreven proef met betrekking tot de filterbelasting in de Verenigde Staten, bleek dat er geen verloop in de respons van het instrument zat als gedurende vier dagen een aerosol van labora-

TABEL 6. Gemeten stroomsterktes in pA bij twee verschillende filters. Ammoniumsulfaat aerosol uit collison vernevelaar.

diameter µm	0,013	0,024	0,042	0,075	0,013	0,24	0,42	0,75
oud filter	0,070	1,799	0,743	1,049	0,473	0,145	0,046	0,015
nieuw filter	0,066	1,717	0,757	1,054	0,479	0,149	0,044	0,018

toriumlucht gemonsterd werd. Een complicerende factor bij de bepaling van het verloop is dat er ten gevolge van het inzetten van een nieuw filter statische electriciteit wordt opgewekt, die pas na een aantal uren van het teflon is afgelekt. Direct na het inzetten van een nieuw filter geeft de electrometer daarom onjuiste stroomsterktes aan. Het is raadzaam na het inzetten van een nieuw filter een dag te wachten voor de metingen te starten.

5.1.3. *Zuiverheid*

De afwijking in de zuiverheid van de grootteclassificatie wordt door LIU en PUI (1975) beschreven als 2%. Terwijl de fout in de nauwkeurigheid van de concentratiemeting beschreven wordt als 5% voor deeltjes groter dan 0,02 μm en meer dan 5% voor kleinere deeltjes. Aangezien de deeltjesgrootteverdeling en de concentraties van aerosol gegenereerd door de collison vernevelaar niet bekend zijn kan hier geen absolute ijking mee uitgevoerd worden. Door het verstuiven van verschillende concentraties ammoniumsulfaat in de Collison kan een indruk omtrent de zuiverheid van de deeltjesgrootteclassificatie verkregen worden. Het volume van het vernevelde en gedroogde aerosol wordt namelijk alleen bepaald door de hoeveelheid opgeloste stof, mits er evenveel oplossing wordt verneveld. Uit tabel 7 blijkt dat de verhoudingen van de berekende volumes heel redelijk overeenkomen met de concentratieverhoudingen en dat de relatieve grootteklassificatie aardig klopt.

Het feit dat de deeltjesdiameters, bij een concentratieverschil van een factor 5, een verschil van een factor 1,71 – namelijk $(5)^{0,33}$ – zouden moeten vertonen wordt met deze metingen bevestigd. In tabel 8 is te zien dat een verschil in

TABEL 7. Berekend aerosolvolume in $\mu m^3/cm^3$ bij verneveling van verschillende ammoniumsulfaat concentraties in de collison aerosolgenerator.

Concentratie g/dm^3	0,04	0,1	0,15	0,2
Volume aerosol $\mu m^3/cm^3$	44	106	153	208
Volume als percentage van het volume bij een concentratie van 0,1 g/dm^3	104%	100%	96%	98%

TABEL 8. Deeltjesaantallen per cm^3 bij verneveling van twee ammoniumsulfaat concentraties die een factor 5 verschillen.

ammoniumsulfaatconcentratie 0,04 g/dm^3				
diameter in μm	0,075	0,13	0,24	0,42
concentratie	1,10 E4	2,34 E3	4,40 E2	0,93 E2
concentratie	1,22 E4	2,27 E3	5,06 E2	2,20 E2
diameter in μm	0,13	0,24	0,42	0,75
Ammoniumsulfaatconcentratie 0,2 g/dm^3				

diameter met een factor 1,71 aardig overeenkomt met een verschuiving van één grootteklasse. Door de fabrikant is de instelling van de spanning bij de opeenvolgende stappen zodanig gemaakt dat steeds deeltjes met een diameter, die een factor $(10)^{0,25}$ groter zijn dan de voorgaande klasse (= een factor 1,78), afgevangen worden. De factor $(10)^{0,25}$ is gekozen omdat hierdoor op een logaritmiese schaal voor iedere factor tien in de deeltjesdiameter vier punten verkregen worden (zie bijvoorbeeld figuur 15). Bij deeltjesdiameters kleiner dan 0,075 µm is deze verschuiving niet zo duidelijk te zien waarschijnlijk vanwege de daarbij optredende coagulatie- en depositieverliezen, die afhankelijk zijn van de vernevelde concentraties.

De nauwkeurigheid van de concentratiemetingen is met de in figuur 9 gegeven opstelling niet na te gaan. Over de zuiverheid kunnen de reproduceerbaarheids metingen echter geen uitsluitsel geven. Concluderend kan gesteld worden dat uit 5.1.2. en 5.1.3. blijkt, dat de relatieve grootteklassificatie en concentratiemeting met de electrische verdelings analysator voldoende reproduceerbaar en stabiel zijn om er in de tijd vergelijkbare metingen mee te kunnen doen.

5.1.4. *Onderlinge vergelijking*

Het was mogelijk om twee electrische verdelings analysatoren te vergelijken. Daartoe werden de beide electrische verdelings analysatoren achtereenvolgens in de in figuur 9 geschetste opstelling geplaatst, waarbij de vernevelomstandigheden van de collison aerosolgenerator, de pompen, de besturingseenheid (Controlbox TSI 3030) en de verwerkingsapparatuur steeds gelijkgehouden werd, zodat de grootteklassificatie en de concentratiemeting met beide instrumenten

TABEL 9. Meetwaardes in pA bij de vergelijking van twee electrische verdelings analysatoren. Ammoniumsulfaat oplossingen verneveld met de collison aerosolgenerator.

Diameter in m:	0,013	0,024	0,042	0,075	0,13	0,24	0,42	0,75	totaal aantal
eigen instrument:	0,241	1,673	0,724	0,925	0,413	0,125	0,034	0,012	5,06 E5
ander instrument:	0,349	2,082	0,806	0,910	0,408	0,113	0,027	0,008	6,23 E5
afwijking van gemiddelde in %:	18	11	5	1	1	5	11	20	11
eigen instrument:	0,073	0,381	0,204	0,310	0,161	0,057	0,016	0,006	1,37 E5
ander instrument:	0,106	0,570	0,268	0,387	0,206	0,069	0,018	0,006	1,88 E5
afwijking van gemiddelde in %:	18	20	14	11	12	10	6	0	18
eigen instrument:	0,101	0,122	0,017	0,012	0,000	0,000	0,000	0,000	5,93 E4
ander instrument:	0,104	0,082	0,011	0,008	0,002	0,000	0,000	0,000	5,23 E4
afwijking van gemiddelde in %:	1	20	21	20	–	–	–	–	6
afwijking van gemiddelde over drie metingen:	12	17	13	11	7	8	9	10	11

als enige variabele overbleef. Door de grote stabiliteit van het door de collison gegenereerde aerosol zullen de afwijkingen die hierop terug te voeren zijn, hooguit 3% geweest zijn. Bij twee van de drie verschillende concentraties die in tabel 9 vergeleken worden, gaf het eigen instrument een geringere respons dan het andere. Daar het laatste experiment een hiervan afwijkend beeld gaf is deze afwijking niet systematisch te noemen. De gemiddelde procentuele afwijking tussen de beide instrumenten varieert van 17% tot 7%. Naarmate de concentraties en daarmee de stroomsterktes geringer worden, is de procentuele afwijking tussen het gemiddelde van beide instrumenten groter. Gezien tabel 5 kan geconcludeerd worden dat de interinstrumentele verschillen groter zijn dan de intra-instrumentele.

CLARK en AVOL (1976) geven de resultaten van een onderlinge vergelijking van vier electrische verdelings analysatoren. Zij vinden (met enige uitzonderingen) dat er een verschil gemeten wordt van ongeveer 10% van de gemiddelde stroomsterkte voor deeltjes van 0,024 tot 0,13 μm. Dit verschil ten opzichte van het gemiddelde nam toe tot ongeveer 15% voor deeltjes van 0,24 μm, ongeveer 30% voor 0,42 μm en ongeveer 40% voor 0,75 μm. De concentraties van deeltjes van 0,013 μm konden niet altijd gemeten worden, zodat de onderlinge vergelijkbaarheid daarbij slechter is. SEM (1976) beschrijft dat de electrische verdelings analysatoren die de fabriek verlaten vergeleken worden met een standaard instrument dat geijkt is ten opzichte van het door LIU en PUI (1975) gebruikte exemplaar. De maximale verschillen die getolereerd worden zijn 10% voor alle grootteklassen behalve voor deeltjes kleiner dan 0,02 μm en deeltjes groter dan 0,4 μm waar verschillen tot 25% nog getolereerd worden. WHITBY, KITTELSON, e.a., (1976) geven aan dat de beide electrische verdelings analysatoren die gebruikt zijn tijdens de sulfaatmetingen bij General Motors in 1975 een 15% afwijking vertoonden van de gemiddelde concentratie bij deeltjes diameters tussen 0,01 en 0,1 μm. Deze afwijking was ongeveer 8% voor deeltjes diameters tussen 0,1 en 1,0 μm. Een van de gebruikte electrische verdelings analysatoren was van het instrument van Whitby, de ander was van het Environmentel Protection Agency.

De onderlinge verschillen tussen metingen met de electrische verdelings analysator liggen bij de eigen metingen (zie tabel 9) in dezelfde orde van grootte als de door CLARK en AVOL (1976) en door SEM (1976) gerapporteerde voor deeltjes met diameters kleiner dan 0,2 μm. Voor de grotere deeltjes is de onderlinge overeenstemming van de eigen metingen beter.

5.2. CONDENSATIE KERNEN TELLER

5.2.1. *IJking*

De ijking die ten oorsprong ligt aan de commercieel verkrijgbare condensatie kernen tellers heeft plaats gevonden door het uitvoeren van berekeningen met betrekking tot de te verwachten extinctie bij verschillende deeltjesconcentraties onder de aanname van geïdealiseerde omstandigheden (HÖLLANDER, 1978). Met het beschikbaar komen van electrische classificatie (LIU en PUI, 1974a) en de

electrostatische precipitatie (MORROW en MERCER, 1964) met aansluitend electronenmicroscopie als ijkmethoden voor submicrone aerosolen is er recentelijk een stroom publicaties op gang gekomen van o.a. PERRIN (1976) en LIU en KIM (1977) betreffende de telefficiëncy van condensatie kernen tellers. LIU en KIM (1977) komen voor natriumchloridedeeltjes van 0,013 μm op een telefficiëncy van ongeveer 50% en voor deeltjes van 0,024 μm op ongeveer 85%. Daarboven komen ze tot een efficiëncy van vrijwel 100%. PERRIN (1976) komt op een telefficiëncy van ongeveer 30% voor deeltjes van 0,013 μm, ongeveer 65% voor deeltjes van 0,024 μm, ongeveer 87% voor deeltjes van 0,042 μm en bij grotere diameters op 100%. Deze recente metingen zijn in tegenspraak met de tot voor kort algemeen aanvaarde ondergrens van 0,002 μm (HOLLÄNDER, 1978) en de onlangs nog door HAAF en JAENICKE (1977) gerapporteerde ondergrens van 0,0016 μm voor een zwavelzuur aerosol. Gezien de meest recente experimentele resultaten is een telefficiëncy van 100% voor condensatie kernen tellers slechts bij een deeltjesdiameter boven 0,04 μm te verwachten en zal deze daaronder sterk afnemen. De concentratieaanwijzing van de bij de eigen experimenten gebruikte condensatie kernen tellers zijn tijdens een vergelijking van meerdere condensatie kernen tellers geijkt (PLOMP, VAN DE VATE, e.a., 1979) met behulp van een electrische precipitator (VAN DE VATE, PLOMP, e.a., 1977).

5.2.2. *Onderlinge vergelijking*

De onderlinge vergelijking van acht condensatie kernen tellers, waaronder de twee die tijdens de eigen metingen gebruikt zijn, staat beschreven bij PLOMP, VAN DE VATE, e.a., (1979). Uit deze vergelijking komt naar voren, dat de gemiddelde aanwijzingen van de acht condensatie kernen tellers zich binnen ongeveer 5% bevinden van de met behulp van electrostatische precipitatie bepaalde werkelijke concentratie. De gemiddelde standaardafwijking bij dezelfde meting door de verschillende instrumenten bedraagt 24%. Ook hierbij blijkt net als bij de in 5.1.4. beschreven vergelijking van electrische verdelings analysatoren dat de interinstrumentele verschillen groter zijn dan de intra-instrumentele. Volgens HOLLÄNDER (1978) hebben de oververzadigingsgraad en de expansietijd invloed op de gemeten concentratie in condensatie kernen tellers. Aangezien deze bij de gebruikte instrumenten niet gelijk zijn, kan dit een verklaring vormen voor de gemiddelde standaard deviatie van 24%.

5.3. VERGELIJKING CONDENSATIE KERNEN TELLER EN ELECTRISCHE VERDELINGS ANALYSATOR

Een relatie tussen de electrische verdelings analysator en de condensatie kernen teller is daarom zo interessant, omdat daarmee concentratiemetingen die met twee totaal verschillende meetmethodes gedaan zijn onderling vergeleken kunnen worden. Zowel de eigen metingen als de resultaten van anderen (zie DAVIES, 1976) wijzen uit dat met de electrische verdelings analysator tot een factor 3 à 5 meer deeltjes gemeten worden dan met een condensatie kernen teller.

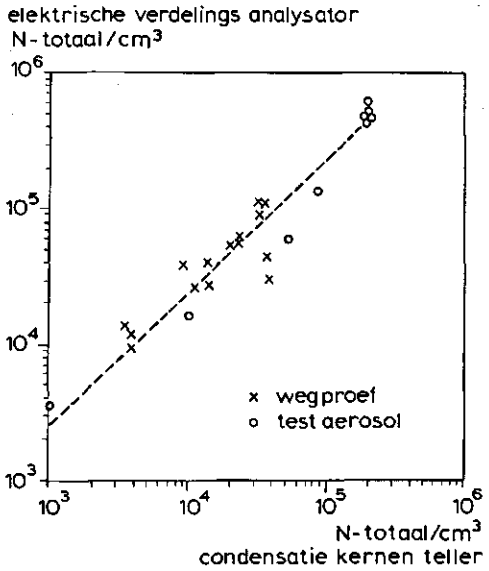


FIG. 10. Gemeten concentratie in aantallen per cm^3 door een electrische verdelings analysator en een condensatie kernen teller.

Ook LIU en PUI (1974a) rapporteren een verschil in aanwijzing van een factor 2,5 bij de vergelijking van de concentraties gemeten met een Environment One condensatie kernen teller en concentratiebepalingen met behulp van electrische methodes. In het licht van de afnemende telefficiëncy van condensatie kernen tellers bij diameters onder 0,04 μm, is deze discrepantie verklaarbaar. Bij metingen van WHITBY, CLARK, e.a., (1975) is deze discrepantie opgeheven omdat men daarbij de uitslag van de condensatie kernen teller laat overeenkomen met die van de electrische verdelings analysator. Bij latere metingen, wanneer de condensatie kernen tellers geijkt zijn volgens de methode van LIU en PUI (1974a), wordt een vergelijking tussen de totaaldeeltjesaantallen van natuurlijke aerosolen zelden in de literatuur gerapporteerd.

Op grond van de generatie van voornamelijk ammoniumsulfaat aerosolen in de collison vernevelaar is een relatie te leggen tussen de respons van de condensatie kernen teller en de electrische verdelings analysator. In figuur 10 staan de metingen grafisch uitgezet. Daarbij zijn alleen die metingen gebruikt met de aanpassing op grond van 4.4.1. omdat daarvoor de ijkwaarden nauwkeurig bekend zijn. Stuk voor stuk zijn deze punten een gemiddelde over 3 tot ruim 40 metingen. De correlatiecoëfficiënt, van de aerosol concentraties gemeten met een condensatie kernen teller en de electrische verdelingsanalysator, bedraagt $r = 0{,}98$ ($n = 9$) voor test aerosolen uit een collison vernevelaar. De correlatiecoëfficiënt $r = 0{,}96$ ($n = 24$) voor atmosferische en test aerosolen. Het verschil tussen de electrische verdelings analysator en de condensatie kernen teller bedraagt ruwweg een factor 2 tot 3 en is enigszins afhankelijk van de concentratie. Deze factor komt heel redelijk overeen met de door LIU en PUI (1974a) gerapporteerde waarde van 2,5. Op de vergelijking tussen condensatie kernen teller en

electrische verdelings analysator wordt verder ingegaan in 7.4.2.2. Uit het feit dat de aanwijzing van beide instrumenten steeds ongeveer eenzelfde verhouding heeft, kan geconcludeerd worden dat ze, hoewel de meetprincipes totaal verschillend zijn, tot een redelijke overeenstemming komen en ook als onderlinge referentie dienst kunnen doen.

6. VERKEER ALS BRON VAN AEROSOLEN

Bij de karakterisering van verkeersaerosolen kan een onderscheid gemaakt worden naar fysische en chemische kenmerken. Op de fysische kenmerken wordt in 6.1. nader ingegaan, terwijl de chemische aspecten in 6.2. worden besproken.

6.1. FYSISCHE KARAKTERISERING

Bij de fysische classificatie van aerosolen zijn de deeltjesaantallen en de totale massa van de deeltjes de meest gebruikelijke parameters. Ook vindt er tegenwoordig wel een classificatie naar deeltjesoppervlak plaats. Om de vergelijkbaarheid van de verschillende onderzoeken te bevorderen is de deeltjesemissie uitgedrukt in deeltjesaantallen per afgelegde kilometer per voertuig. Hierbij is wel steeds de kruissnelheid opgegeven, omdat deze ook een belangrijke invloed op de geëmitteerde massa heeft.

6.1.1. *Deeltjesgrootteverdeling*

De meest recente veldonderzoeken met electrische verdelings analysatoren hebben uitgewezen dat de deeltjesaantallen van verse verkeersaerosolen een sterke piek vertonen bij een mediane diameter van 0,02 tot 0,03 μm (WHITBY, CLARK, e.a., 1975; MILLER, LEVY, e.a., 1976; WHITBY, KITTELSON, e.a., 1976; WILSON, SPILLER, e.a., 1977). Ook de metingen van LITTLE en WIFFEN (1977, 1978) met behulp van een diffusie batterij en electronen microscopische foto's geven een volume mediane diameter in deze grootteorde: 0,03 tot 0,045 μm. De vorm van de deeltjes is door LITTLE en WIFFEN (1977, 1978) afgeleid uit electronen microscopische foto's. Deeltjes kleiner dan 0,1 μm zijn bolvormig, ondoorschijnend en niet opgebouwd uit clusters. Deeltjes tussen 0,1 en 1,0 μm zijn doorschijnend en hebben een ketenstructuur. Deeltjes van 0,5 tot 5 μm vertonen een vlokkige of vormloze structuur en lijken dichter dan kleinere deeltjes. Ook GANLEY en SPRINGER (1974) komen door middel van een electronen microscopische analyse van een loodhoudend autoaerosol, dat direct aan de uitlaat gemonsterd is, tot de conclusie, dat de kleinste deeltjes vrijwel bolvormig zijn. Bij toenemende aerodynamische diameters wordt ook de vorm onregelmatiger. Dit beeld komt ook naar voren uit electronen microscopische foto's van HIRSCHLER, GILBERT, e.a., (1957). SCHRECK, MCGRATH, e.a., (1978) geven aan dat het aerosol van dieselmotoren hieraan sterk verwant is. Electronen microscopische foto's van direct aan de uitlaat gemonsterd dieselaerosol laten clusters van enige tienden van μm zien. Deze blijken opgebouwd uit bolvormige deeltjes van 0,025 tot 0,03 μm diameter. Uit metingen van DOLAN, KITTELSON, e.a., (1975) met een electrische verdelings analysator Direct aan de uitlaat komt voor dieselaerosol een mediane diameter van 0,015 tot 0,025 μm naar voren. Deze literatuurgegevens betreffende de te verwachten mediane diameter worden bevestigd

TABEL 10. Emissie in deeltjesaantallen per afgelegde km per voertuig. Berekend op in de tekst genoemde wijze.

Meting	Literatuur	Diameter in µm 0,560	0,420	0,320	0,180	0,100	0,056	0,032	0,018	N-totaal	CNC	Opmerkingen	
	Miller, Levy, e.a., (1976)	–	–	–	1,8 E11	5,2 E12	4,2 E13	1,5 E14	2,2 E14	4,2 E14	–	Berekend uit een verdunning van 500 maal	
		Diameter in µm 0,750	0,422	0,237	0,133	0,075	0,042	0,024	0,013				
aan uitlaatsystemen	Fissan, Helsper, e.a., (1976)	–	8,8 E9	8,8 E10	6,3 E11	9,4 E11	1,0 E12	1,9 E12	2,5 E12	7,1 E12	–	Benzine-luchtverhouding	1,09
		–	–	6,3 E10	3,4 E11	1,1 E12	1,9 E12	3,1 E12	1,0 E12	7,5 E12	–	Benzine-luchtverhouding	0,88
	Fissan, Franzen, (1978)	–	1,3 E10	6,3 E11	8,8 E12	1,3 E13	1,4 E13	1,4 E13	1,1 E13	6,1 E13	–	Loodvrije benzine	
	Dolan, Kittelson, e.a., (1975)	–	–	–	–	2 E12	2 E13	6 E13	4 E14	4 E14	–	Dieselmotor 1/4 belasting	
		–	–	1 E13	2 E13	1 E13	2 E13	4 E13	9 E13	2 E14	–	Dieselmotor volle belasting	
		Diameter in µm 0,560	0,420	0.320	0,180	0,100	0,056	0,032	0,018	N-totaal	CNC		verblijftijd in seconden
langs verkeerswegen	Whitby, Clark, e.a., (1975) snelheid auto's 56 km/uur	5,90E10	5,45E11	3,62E12	1,20E13	5,23E13	2,32E14	6,82E14	9,98E14	1,98E15	2,65E15	RUN 54 verkeersaeros.	90
		3,30E11	1,53E12	9,78E12	2,81E12	7,69E13	1,49E14	1,83E14	1,71E14	–	–	RUN 55 *achtergrond*	–
		3,83E11	1,16E12	6,69E12	1,74E13	4,53E13	1,89E14	9,25E14	2,82E15	3,99E15	5,68E15	RUN 56 verkeersaeros.	64
		4,01E11	1,48E12	9,22E12	2,25E13	4,33E13	1,66E14	9,37E14	3,11E15	4,29E15	5,20E15	RUN 57 verkeersaeros.	69
		1,88E11	9,98E11	6,53E12	1,64E13	5,29E13	2,81E14	1,53E15	3,52E15	5,41E15	8,71E15	RUN 58 verkeersaeros.	40
		1,06E11	7,89E11	4,57E12	1,33E13	4,63E13	2,29E14	1,22E15	3,80E15	5,32E15	8,10E15	RUN 59 verkeersaeros.	32
		4,80E10	3,95E11	2,48E12	8,64E12	4,31E13	2,66E14	1,25E15	2,60E15	4,17E15	6,26E15	RUN 60 verkeersaeros.	62
	gemiddelde	1,98E11	8,94E11	5,52E12	1,50E13	4,72E13	2,27E14	1,09E15	2,81E15	4,19E15	6,10E15		
	standaardafwijking	1,59E11	4,02E11	2,44E12	0,48E13	0,44E13	0,44E14	0,30E15	0,99E15	1,24E15	2,18E15		
		Diameter in µm 0,750	0,422	0,237	0,133	0,075	0,042	0,024	0,013	N-totaal	CNC		
	Whitby, Kittelson, e.a., (1976) snelheid auto's 80 km/uur	5,00E8	0	0	2,03E11	0	1,59E13	6,65E14	1,82E15	2,50E15	2,74E15	Loodvrije benzine	46
		2,25E9	2,41E10	2,69E11	7,63E10	4,25E11	7,18E13	1,06E15	1,53E15	2,66E15	–	met katalisatoren	41
		4,71E10	4,40E11	2,65E12	1,13E13	5,72E13	8,54E14	6,46E15	3,75E15	11,14E15	–		130
	gemiddelde	1,66E10	1,55E11	9,73E11	3,86E11	1,92E13	3,14E14	2,73E15	2,37E15	5,43E15	–		
	standaardafwijking	2.64E10	2,47E11	14,59E11	6,44E12	3,29E13	4,69E14	3,24E15	1,21E15	4,94E15	–		

door de eigen metingen die in hoofdstuk zeven en acht uitgebreid besproken worden, grafisch kan deze diameter afgeleid worden uit figuur 15.

De problemen die ontstaan bij de bepaling van de deeltjesgrootteverdeling bij het monsteren direct aan de uitlaat zijn al in 2.1.1. besproken. Omdat er in de literatuur toch nog op deze wijze bepaalde metingen gerapporteerd worden is een overzicht hiervan in tabel 10 te vinden. De deeltjesemissie is in deze tabel steeds omgerekend naar deeltjesaantallen per afgelegde kilometer. MILLER, LEVY, e.a., (1976) geven aan dat een verdunning met een factor 500 van de uitlaatgassen van een auto op een testbank een concentratie oplevert die identiek is aan de aerosolconcentratie gemeten naast een snelweg. Dit betrof de aerosolconcentratie tijdens run 54 afkomstig van de snelweg minus de concentratie tijdens run 55 met een stedelijk achtergrondsaerosol, tijdens de metingen van WHITBY, CLARK, e.a., (1975). Met deze gegevens is het mogelijk de emissie in deeltjes per afgelegde kilometer te berekenen uit de oorspronkelijke meetgegevens. DOLAN, KITTELSON, e.a., (1975) hebben direct aan een uitlaatsysteem de deeltjesgrootteverdeling van een dieselaerosol gemeten bij een volle belasting en 1/4 belasting van de motor. Bij de bepaling van de emissie per kilometer is aangenomen dat de afgasproductie van een auto ongeveer 0,92 m^3 per afgelegde kilometer is (SAMPSON en SPRINGER, 1973), zodat uit de concentratie een emissie bepaald kan worden. Bij het onderzoek van DOLAN, KITTELSON, e.a., (1975) is door middel van een zeer grote verdunning de coagulatie snelheid vrijwel tot nul teruggebracht en de temperatuur verlaagd zodat analyse van het deeltjesgroottespectrum met een electrische verdelings analysator mogelijk was. De gebruikte verdunning is echter niet exact bekend. DOLAN, KITTELSON, e.a., (1975) geven een factor 1100 op. Volgens hun eigen opgave zou de verdunning echter ook een factor 10000 hebben kunnen bedragen. Gezien de relatief lage emissies lijkt deze laatste verdunningsfactor reëler. FISSAN, HELSPER, e.a., (1976) en FISSAN, FRANZEN, e.a. (1978) geven deeltjesconcentraties, die gemeten zijn aan een uitlaatsysteem met een wandtemperatuur van 20°C waarin het afgas gekoeld is tot 40°C en vervolgens verdund. Er wordt in hun studies niet getracht een schatting te maken van de coagulatie verliezen en de thermoforetische verliezen onder invloed van de extreme temperatuur gradiënt in het uitlaatgas. De hierbij verkregen lage emissie hoeft geen verbazing te wekken. Bij de omrekening van een deeltjesconcentratie naar de emissie is een afgasproductie van 0,5 m^3 per kilometer volgens SCHWANECKE (1975) aangenomen.

Emissiegegevens berekend op basis van concentratiemetingen langs een weg zijn op een totaal andere wijze tot stand gekomen als de hierboven geschetste metingen aan uitlaatsystemen. Als eerste worden de metingen van WHITBY, CLARK, e.a., (1975) langs een autosnelweg in Los Angeles gebruikt. Een probleem daarbij is echter dat de verspreiding niet bekend is omdat men geen specifieke tracer gebruikt heeft voor de verkeersemissie. Een bijkomend nadeel aan deze metingen is dat er steeds gebruik gemaakt is van slechts één vaste meetopstelling, zodat de in Los Angeles bepaald niet te verwaarlozen voorbelasting niet gemeten is. De invloed van de verspreiding op de aerosolconcentraties

kan geschat worden uit de loodmetingen die door Whitby c.s. simultaan zijn verricht. Volgens HUNTZICKER, FRIEDLANDER, e.a., (1975) was het loodgehalte in de benzine in Californië in 1972 0,56 g/dm^3. Lineaire interpolatie van de loodemissie als percentage van het totaal verbrande lood uit de gegevens van TER HAAR, LENANE, e.a., (1972) voor een kruissnelheid van 56 km per uur (de betreffende kruissnelheid wordt door MILLER, LEVY, e.a., (1976) gegeven) levert een loodemissie op van 13,8 mg/km. Wanneer deze theoretische emissie van één auto gedeeld wordt door de gemeten loodconcentratie in mg/m^3, tijdens de waarnemingen van WHITBY, CLARK, e.a., (1975), ontstaat een factor die de verspreiding beschrijft ten opzichte van de emissie per afgelegde kilometer.

De deeltjesemissie per kilometer is bij de proeven van WHITBY, CLARK, e.a., (1975) niet gecorrigeerd voor de achtergrondsconcentratie omdat deze niet gemeten was. Tijdens run 55 draaide de wind ongeveer 180 graden, zodat een stedelijk 'achtergronds' aerosol werd gemeten in plaats van het verkeersaerosol van de snelweg. Alleen bij deeltjes kleiner dan 0,1 μm blijkt er een van deze achtergrond te onderscheiden verkeersbijdrage te zijn. De emissies van deeltjes met diameters groter dan 0,1 μm moeten dus met de nodige voorzichtigheid betracht worden. Doordat de voorbelastingsconcentraties niet bekend zijn zal er naarmate de deeltjesdiameter groter wordt een systematische overschatting van de emissie plaatsvinden. Afgezien van de onzekerheid die ontstaat door het aannemen van een loodemissie per kilometer op grond van literatuurgegevens, die natuurlijk ook in deze getallen doorwerkt, is het gebruik van de gemeten loodconcentratie om de verspreiding mee te schatten in zoverre onjuist, dat ook bij loodmetingen zonder voorbelastingsbepalingen dit getal de som is van de bijdrage van de weg en de stedelijke achtergrond. De stedelijke achtergrond is zeker niet uit de loodconcentratie tijdens run 55 te halen omdat de loodconcentratie toen hoog was, namelijk vrijwel net zo hoog als toen de wind regelrecht van een autosnelweg afkwam met een verkeersaanbod van 11.000 tot 14.000 voertuigen per uur. Doordat de loodconcentratie niet gecorrigeerd is voor de achtergrond, is de uit deze loodmetingen geschatte deeltjesemissies lager dan de werkelijke emissie. Dit mechanisme werkt precies tegengesteld aan de zojuist beschreven overschatting ten gevolge van het ontbreken van voorbelastingsmetingen, die het meeste invloed heeft op de grotere deeltjes.

Uit de sulfaat verspreidingsproeven van General Motors in 1975 kan een schatting gemaakt worden van de deeltjesgrootteverdeling van een vers verkeersaerosol van loodvrije benzine in auto's met katalysatoren om de koolmonoxide en de koolwaterstof emissies te verminderen. Van deze proeven is slechts voor een drietal runs een complete deeltjesgrootteverdeling gerapporteerd, dit zijn run 7, 10 en 12 door WHITBY, KITTELSON, e.a., (1976) en WILSON, SPILLER, e.a., (1977). De autodichtheid van 5460 auto's per uur wordt gegeven door LAMOTHE, DZUBAY, e.a., (1976). De tracergas emissie tijdens deze runs worden gerapporteerd door PETERSEN (1976). De windrichting, windsnelheid en de tracergasconcentraties op 4,5 m hoogte en op 30 m afstand van de weg (105 meter parallel aan het monsterpunt van WHITBY, KITTELSON, e.a., (1975)), worden door CADDLE, CHOCK, e.a., (1976) gegeven. De tracergasconcentraties zijn helaas niet gemeten

op het aerosolmeetpunt zelf. De door Whitby c.s. gegeven volumeverdeling is onder dezelfde vooronderstelling van bolvormigheid van de deeltjes bij de eerste transformatie van aantallen naar volume, teruggerekend naar deeltjesaantallen. De op deze wijze verkregen deeltjesaantallen zijn gecorrigeerd voor de achtergrond omdat in de presentatie de achtergrond aan deeltjes reeds in rekening is gebracht. Omdat de tracergasconcentratie op het monsterpunt zelf niet gemeten is, zal er een lichte onderschatting (10 à 15%) van de emissie plaatsvinden. De metingen tijdens de sulfaat verspreidingsproeven leveren de meest betrouwbare emissieschattingen op, want er zijn zowel voorbelastingsmetingen gedaan als tracergasmetingen. De resultaten zijn echter niet zo goed vergelijkbaar met de in dit onderzoek geschatte emissies, omdat de metingen van WHITBY, KITTELSON, e.a., (1976) betrekking hebben op auto's die rijden op loodvrije benzine. In 2.1.1. is reeds beschreven dat de resulterende deeltjesgrootteverdelingen voor loodhoudende of loodvrije benzines niet vergelijkbaar zijn. Ook de katalysatoren ontbreken op de auto's, waarvan tijdens dit onderzoek in Nederland de emissie geschat is.

In tabel 10 is te zien dat er een sterk verschil bestaat tussen emissieschattingen uit metingen direct aan een uitlaatsysteem en metingen in veldsituaties. Aan een uitlaat worden tussen een factor 10 en 1000 minder deeltjes gemeten. Zoals al in 2.1.1. is vermeld hebben met name coagulatie, depositie en thermophorese een grote invloed op de onderschatting van de deeltjesemissie bij monstername aan een uitlaatsysteem. Ook de invloed van de voor meting noodzakelijke verdunning op de deeltjesgrootteverdeling is onbekend. De oriëntatie op de receptor is een belangrijke reden om de emissieschattingen uit te voeren onder omstandigheden waar de mens in steden ook in kan verkeren. De eventueel ook nog na de uitlaat plaatsvindende condensatie op het verkeersaerosol en coagulatie tijdens de opmenging door mechanische turbulentie en de invloed die dit heeft op de deeltjesgrootteverdeling en daarmee op de receptor, wordt tijdens metingen langs een weg meegenomen. Hierbij ontstaat een beeld van de emissie van het aerosol dat qua grootteverdeling vertaalbaar is naar de belasting van het natuurlijk milieu.

6.1.2. *Andere fysische parameters*

Om de zichtvermindering ten gevolge van aerosolen te kunnen weergeven wordt vaak het oppervlak van de deeltjes berekend uit de gemeten deeltjesgrootteverdeling. Hierbij worden de gemeten diameters bolvormig vooronderstelt (LIU, WHITBY en PUI, 1974). Ook kan het volume op deze wijze worden weergegeven. In deze studie is daar vanaf gezien omdat er vraagtekens gezet kunnen worden achter de bolvormigheid van de deeltjes in de buurt van 1 μm. Juist deze fractie van submicrone deeltjes levert relatief de grootste bijdrage aan het volume. Geringe afwijkingen in de grootteklassificatie werken ten gevolge van de derde macht van de straal sterk door.

Filtermetingen leveren de totaal geëmitteerde massa op, ook dit is een fysische parameter. MILLER, LEVY, e.a., (1976) hebben zowel een volumeberekening aan de hand van metingen met een electrische verdelingsanalysator uitgevoerd als een totale massa gemeten op een filter. Wanneer beide waardes door de auteurs

met elkaar in overeenstemming gebracht worden, levert dit een soortelijke massa op van 2,5 g per cm^3 op. Tevens schrijven ze dat de gepresenteerde volumina op grond van nieuwe ijkfactoren van de electrische verdelings analysatoren een factor twee te hoog zijn, maar houden hier verder geen rekening mee. Daardoor zal de dichtheid niet de door hen gepresenteerde 2,5 g per cm^3 zijn maar 5 g per cm^3. Deze laatste waarde is onwaarschijnlijk hoog, vandaar dat de auteurs deze berekening niet gemaakt hebben. Een verklaring voor deze hoge waarde is echter wel te vinden. Doordat het zeer waarschijnlijk is dat zich gasreacties aan het filter voordoen, vindt er op het filter een overschatting van de totale massa plaats. Dit verschil zou ook gedeeltelijk door problemen met de monstername veroorzaakt kunnen zijn. De parameter aerosolmassa wordt meestal met behulp van filters bepaald. Omdat een gedeelte van de massa in de fractie boven 1,0 μm zit, is deze parameter voor het huidige onderzoek dat met name op submicronaerosolen is gericht, niet zo goed bruikbaar als vergelijkingsmateriaal. GANLEY en SPRINGER (1974) vonden bijvoorbeeld dat ongeveer 25% van de massa van verkeersaerosolen in deeltjes zit met een diameter groter dan 1,0 μm. Afhankelijk van de efficiëncy van het monsternamesysteem voor grote deeltjes komen andere auteurs tot waardes tussen 10% en 40%.

6.2. CHEMISCHE KARAKTERISERING

6.2.1. *Loodverbindingen*

Het onderstaande verhaal geldt natuurlijk alleen voor benzines waaraan lood is toegevoegd om het oktaan-getal te verhogen. In hoofdstuk 2.1.1. zijn de verschillende toevoegingen en hun functies besproken. Volgens SAMPSON en SPRINGER (1973) zijn de gevormde loodverbindingen in de uitlaat met name PbClBr en $PbO.PbBr_2$. Volgens GANLEY en SPRINGER (1974) zijn dit voornamelijk PbO.PbBr en $PbCl_2.PbClBr$. De beide laatste auteurs vonden bij een uitlaatgastemperatuur van 35°C naast bovengenoemde twee loodverbindingen ook nog $2PbO.PbBr_2$ en sporen Pb, PbO. PbClBr, $Pb_2P_2O_7$ en $PbSO_4$. Zowel HIRSCHLER, GILBERT, e.a., (1975) als HABIBI (1970) vonden naast bovengenoemde verbindingen nog $PbO.PbBr_2$, 2PbO.PbClBr, $3Pb_3(PO_4)_2$ en de volgende loodammoniumhalogenides $2NH_4Cl.PbClBr$, α- en β-$NH_4Cl.2PbClBr$ en $2PbClBr.NH_4Cl$ en Fe_2O_3. De loodammoniumhalogenides worden echter blijkens de experimenten van HABIBI (1970) pas gevormd nadat de gasstroom de uitlaat verlaten heeft. Van de in de uitlaat gevormde loodverbindingen is volgens LEE, PATTERSON, e.a., (1971) tussen de 71% en 87% in water oplosbaar.

Wanneer het verkeersaerosol verandert, verandert nasst de deeltjesgroottevertdeling ook de chemische samenstelling. Volgens sommige auteurs (HOPKE, GLADNEY, e.a., 1976 en MARTENS, 1973) verliezen de looddeeltjes het bromide en verandert daarmee de loodbromideverhouding. Het verlies aan bromide en het ontstaan van ammoniumverbindingen geeft aan dat de loodverbindingen in een vers verkeersaerosol nog verder reageren in de chemische smeltkroes die atmosfeer heet. Na een verblijf in de atmosfeer kunnen deeltjes door depositie en

sedimentatie verdwijnen. De chemische samenstelling van deze deeltjes, aan het andere eind van het verblijftijdsspectrum is door KOSLOW, SMITH en STASKAWICZ (1977) bekeken. Deeltjes groter dan 1 μm en die gedeponeerd waren op bladeren bevatten voornamelijk $PbSO_4$ en $Pb_3(PO_4)_2$.

Naast bovengenoemde anorganische loodverbindingen heeft de mogelijke emissie van organisch lood (tetraethyl- en tetramethyllood), vanwege de extreme giftigheid van deze verbindingen, geleid tot veel onderzoek om een scheiding in beide kategorieën aan te brengen. HARRISON en PERRY (1977) komen op grond van een kritische evaluatie van alle bekende bepalingsmethoden voor organische loodverbindingen en een aantal recente publicaties over de gemeten fractie aan organisch lood, tot de conclusie dat hooguit 1% tot 4% van het lood in de lucht in organische vorm aanwezig is. Hieruit concluderen zij, dat het anorganisch lood vanuit gezondheidskundig oogpunt belangrijker is. Op punten in de buurt van benzinetankstations kunnen volgens beide auteurs ten gevolge van benzineverliezen echter hogere percentages organisch lood verwacht worden. Ditzelfde geldt ook voor plaatsen waar veel koude automotoren met choke gestart worden, zoals parkeergarages.

De emissie van lood door auto's is in de loop van de laatste jaren door verschillende auteurs beschreven. De resultaten van HIRSCHLER, GILBERT, e.a., (1957), HABIBI (1970) en TER HAAR, LENANE, e.a., (1972) worden door GANLEY en SPRINGER (1974) met eigen waarnemingen vergeleken. Daaruit blijkt dat de laatste twee series meetresultaten zeer dicht bij elkaar liggen, zie tabel 11. GANLEY en SPRINGER (1974) vonden bij metingen aan één motor dat 26% van het in de benzine aanwezige lood bij een kruissnelheid van 88 km/uur geëmitteerd werd. TER HAAR, LENANE, e.a., (1972) komen op grond van metingen aan 26 auto's tot een emissie van 12% bij een kruissnelheid van 40 km/uur, 18% bij 72 km/uur en 33% bij 97 km/uur. GANLEY en SPRINGER (1974) citeren verder nog een rapport van Sampson en Springer uit 1972 over metingen aan één motor waarin uitgekomen wordt op een emissie van 14% bij 40 km/uur en 23% bij een kruissnelheid van 88 km/uur. Aangezien de metingen van TER HAAR, LENANE, e.a., (1972) het gemiddelde vormen van de metingen aan 26 auto's worden voor de bepaling van de theoretisch te verwachten loodemissie bij een bepaalde kruissnelheid hun gegevens voor het geëmitteerde percentage lood aangehouden. De beide onderzoeken van oudere datum, die tot hogere percentages geëmitteerd lood komen, worden buiten beschouwing gelaten. De emissies tijdens de officiële Amerikaanse testcyclus zijn veel hoger dan de hiergenoemde voor auto's met een

TABEL 11. Loodemissie bij een bepaalde kruissnelheid als percentage van het lood in de benzine.

Ter Haar, Lenane, e.a., (1972)	Sampson en Springer (1972)	Ganley en Springer (1974)
40 km/uur: 12%	40 km/uur: 14%	
72 km/uur: 18%	88 km/uur: 23%	88 km/uur: 26%
97 km/uur: 33%		
Gemiddelde van 26 auto's	1 auto	1 auto

bepaalde kruissnelheid. Dit wordt veroorzaakt door het afwisselend optrekken, rijden en afremmen, zodat meer een gemiddelde stadsrit gesimuleerd wordt. Bij het eigen onderzoek was er slechts sprake van een doorgaande verkeersstroom.

In hoofdstuk 2.1.1. is al het één en ander geschreven over de deeltjesgrootteverdeling van het te verwachten aerosol en de processen die aan de vorming ten grondslag liggen. Bij de bepaling van de deeltjesgrootteverdeling heeft de monstername efficiëncy van het betreffende meetsysteem voor de deeltjes groter dan 1 μm een belangrijke invloed op de verdeling van de uiteindelijk gemeten deeltjesmassa over de groottefractie onder en boven 1 μm. Omdat in het onderhavige onderzoek via filtermetingen – met een constante efficiëncy – het totaal loodgehalte gemeten is, is de deeltjesgrootteverdeling minder belangrijk. Dat de grootteverdeling van verkeerslood een terrein is waar nog het nodige onderzoek op verricht moet worden, blijkt uit de recente resultaten van LITTLE en WIFFEN (1977, 1978) waarbij gevonden is dat de mediane diameter van verkeerslood in de buurt van 0,003 en 0,045 μm ligt. Dit is veel kleiner dan tot nu toe algemeen is aangenomen.

6.2.2. *Andere componenten*

Zoals al eerder is uiteengezet valt de chemische karakterisering van andere componenten dan lood buiten het kader van het eigenlijke onderzoek. Hiervoor wordt verwezen naar de publicaties van onder andere: LEE, PATTERSON, e.a., (1971), TER HAAR, LENANE, e.a., (1972), MILLER, FRIEDLANDER, e.a., (1972), FRIEDLANDER (1973), SPRINGER (1973), GIAUQUE, GODA, e.a., (1974), SCHRECK, MCGRATH, e.a., (1978).

Eén van de andere componenten wordt hier nog belicht en wel het sulfaataerosol. Hierop is een belangrijk deel van het Amerikaanse onderzoek gericht. Een beperking van de emissie van de koolwaterstoffen en koolmonoxide blijkt als keerzijde te leiden tot een verhoging van de emissie van zwavelhoudende aerosolen door de omzettingen die plaatsvinden op de gebruikte katalysatoren (WILSON, SPILLER, e.a., 1977). De zeer kleine hoeveelheden zwavel in benzine (0,03 gewichtsprocent) worden tijdens de verbranding omgezet in zwaveldioxide. Een gedeelte hiervan wordt weer verder geoxideerd tot zwaveltrioxide door de katalysator. Zwavelzuur aerosolen ontstaan vervolgens door de reactie van zwaveltrioxide met waterdamp. Uit de General Motors sulfaat verspreidingsexperimenten in 1975 (CADLE, CHOCK, e.a., 1977) met loodvrije benzine met 0,03 gewichtsprocent zwavel komt te voorschijn dat 12 ± 3% van de zwavel in de benzine omgezet wordt in aerosolvorm. De emissie van sulfaataerosolen werd bepaald op 3.5 ± 0,8 mg/km (WILSON, SPILLER, e.a., 1977) met een geometrisch mediane diameter van 0,02 tot 0,24 μm. PIERSON, BRACHASZEK, e.a., (1978) kwamen door metingen in tunnels tot lagere omzettingspercentages, de sulfaatemissies liggen echter in dezelfde orde van grootte. Deze waren 30 mg/km voor zware (diesel)vrachtauto's, 4 tot 7 mg/km voor met katalysatoren uitgeruste auto's en minder dan 1 mg/km voor auto's zonder katalysatoren. LARESGOITI en SPRINGER (1977) geven een overzicht van te verwachten zwavelzuur aerosolen bij een bepaalde kruissnelheid, katalysator temperatuur en zwavelgehalte van

(loodvrije) benzine door middel van proeven op een testbank. In Nederland zijn deze zwavelzuur aerosolen voorlopig nog niet te verwachten zolang deze katalysatoren hier nog niet worden ingevoerd. De noodzaak om hier ook tot invoering van deze katalysatoren over te gaan is minder groot aangezien de gemiddelde europese wagen een veel lagere koolmonoxide en koolwaterstoffen emissie veroorzaakt dan zijn grotere Amerikaanse broer.

7. WEGPROEVEN

7.1. INLEIDING

De wegproeven zijn opgezet met een tweeledig doel. Enerzijds de bepaling van de emissie van een verkeersweg en anderzijds de bestudering van de processen depositie en coagulatie. Daartoe is er op verschillende afstanden, variërend van 20 tot 140 meter van een matig drukke verkeersweg de deeltjesgrootteverdeling en de aerosolconcentratie gemeten. Tegelijkertijd is ook de voorbelasting gemeten, zodat de concentratieverhoging door de verkeersweg bepaald kon worden. Door tijdens de metingen een auto, van waaruit een inert tracergas geloosd werd, met de verkeersstroom te laten meerijden, kon de verspreiding tijdens de metingen berekend worden, aangezien de emissie daarvan bekend is. Als tracer is zwavelhexafluoride gekozen. Dit gas is namelijk in zeer lage concentraties detecteerbaar, het komt in de natuur niet voor, zodat de voorbelasting vrijwel nihil is en het is fysisch en chemisch gezien inert. Deze techniek is op de vakgroep luchthygiëne en -verontreiniging al langer in gebruik (VOETBERG en BOECKHOUT, 1976) en is voor de simulatie van de dispersie van verkeersaerosolen gebruikt tijdens de General Motors sulfaat verspreidingsexperimenten door CADLE, CHOCK, e.a., (1976).

Tijdens de metingen zijn ook het windsnelheidsprofiel en de windrichting bepaald, zodat daaruit de verblijftijden en de voor depositie belangrijke parameters als wrijvingswindsnelheid en ruwheidslengte afgeleid konden worden. Doordat de verblijftijd van de deeltjes varieert, omdat ze op verschillende afstanden van de weg gemeten worden, zijn naast de dispersie de verwijderingsmechanismen depositie en coagulatie actief. Aangezien de verspreiding nauwkeurig bepaald is met het tracergas kan onderzocht worden of de concentraties met een toenemende verblijftijd sneller afnemen dan alleen door de verspreiding; dit is in 7.4. beschreven. De invloed van de dispersie, depositie en coagulatie kan worden berekend met behulp van een model, dat in 7.2. beschreven wordt en dat 'Weg' genoemd is. Ter contrôle op de simulatie van de verspreiding van aerosolen zijn ook de loodconcentraties naast de weg simultaan gemeten. Indien de uit de wegproeven bepaalde loodemissies gelijk zijn aan de op grond van literatuurgegevens berekende loodemissie kan geconcludeerd worden, dat de met behulp van het tracergas bepaalde verdunningsfactoren reëel zijn. Ter contrôle op de metingen met de electrische verdelings analysator is ook het totaal aantal deeltjes met een condensatiekernenteller bepaald.

Er moet aan een groot aantal voorwaarden voldaan zijn, wil deze experimentele opzet slagen. De verkeersemissie moet voldoende groot zijn en regelmatig gespreid over de hele dag. Er moet een weg zijn, die dwars op de eigenlijke verkeersweg staat, waar de meetapparatuur over heen en weer gereden moet kunnen worden. In verband met mogelijke contaminatie mag hier geen verkeer rijden. De verkeersweg moet een paar honderd meter links en rechts van de

meetplaats recht zijn, om te kunnen meten als de wind niet helemaal dwars op de weg staat. De voorbelasting door andere wegen moet gering zijn. Verder moet er op de verkeersweg op redelijke afstand van het meetpunt een plaats voor de emissie auto zijn om te keren. Het gebied moet voldoende open zijn, zonder bomen langs de weg, om een 'vrije' aanstroming te hebben in verband met een zo min mogelijk gestoord windprofiel. Deze beperkende voorwaarden reduceerden het aantal geschikte meetplaatsen in een straal van 40 kilometer rond Wageningen tot twee stuks. Ook wat betreft de meteorologische omstandigheden moet er aan een aantal voorwaarden voldaan zijn. Er mogen geen grote veranderingen in de relatieve luchtvochtigheid optreden. Regen is helemaal uit den boze in verband met de dan optredende verandering van de deeltjesgrootteverdeling onder andere ten gevolge van natte depositie. Verder is alleen gemeten bij een uniforme windrichtings- en windsnelheidsverwachting gedurende de dag. Hierbij moest de windrichting zoveel mogelijk dwars op de weg zijn. De nadruk, die gelegd wordt op het feit, dat de atmosferische processen zoveel mogelijk constant moesten zijn, is vrij essentieel, omdat de metingen bij de wegproeven steeds vergelijkingen tussen enige punten betreffen, waarop niet simultaan gemeten kon worden. Deze meteorologische voorwaarden beperkten het aantal potentieel geschikte meetdagen sterk, aangezien de weersituatie in Nederland vaak wisselt.

7.2. Gedrag van een vers verkeersaerosol

Zodra het aerosol de uitlaatpijp verlaten heeft, begint de verspreiding. Deze is onder andere tijdens de sulfaat verspreidingsexperimenten van General Motors bestudeerd door Cadle, Chock, e.a., (1976, 1977) en Chock (1977, 1978). Verandering van de deeltjesgrootteverdeling onder invloed van coagulatie onder veldomstandigheden wordt door Whitby, Clark, e.a., (1975) en Whitby, Kittelson, e.a., (1976) gerapporteerd. De verwijdering van verkeersaerosolen tengevolge van droge depositie en sedimentatie is onderdeel geweest van een studie van Little en Wiffen (1977, 1978). Door de experimentele opzet van dit onderzoek of door literatuurstudie kon de invloed van andere voor aerosolgedrag belangrijke processen verwaarloosbaar geacht worden. Condensatie op het aerosol en coagulatie vlak achter de uitlaat wordt tijdens dit onderzoek niet verder bestudeerd. De eventuele invloed van condensatie reacties wordt namelijk als integraal onderdeel van de emissie beschouwd, omdat het in de op de receptor gerichte oriëntatie belangrijk is om van die emissie uit te gaan, die na dispersie de algemeen voorkomende immissie concentraties oplevert. De relatieve vochtigheid is als deeltjesgrootteverdeling beïnvloedend proces onbelangrijk voor deeltjes kleiner dan 0,06 μm. Door de keuze van de meetomstandigheden is verder getracht deze parameter zo constant mogelijk te houden. Verwijdering door natte depositie is tengevolge van de keuze van de meetomstandigheden in dit onderzoek niet van belang. Zoals reeds eerder is uiteengezet, is de reentrainment van submicrone aerosol deeltjes een mechanisme, dat verwaarloosd kan worden. Een studie, waarbij zowel de dispersie, depositie en coagulatie van een vers

verkeersaerosol als belangrijke parameters worden beschouwd, waarbij één model gebruikt is om de invloed van deze processen te beschrijven en getracht is dit experimenteel te verifiëren, is tot dusver niet uitgevoerd. Het gebruikte model wordt hieronder besproken.

7.2.1. *Het model Weg*

Om de invloed van verspreiding, depositie en coagulatie op een vers verkeersaerosol te kunnen beschrijven, is een computermodel geschreven. Er is gekozen voor een model, dat gebaseerd is op de gradiënttheorie (zie 2.2.2.), omdat de processen plaatsvinden in dat deel van de atmosferische grenslaag, waar de windsnelheid sterk varieert met de hoogte. RAGLAND en PIERCE (1975) beschrijven een vergelijkbaar model voor de schatting van de luchtverontreinigingsconcentraties van een weg. Dit laatste model is als basis genomen voor het gebruikte. De verspreidingskant in het model en de redactie in simula is verzorgd door VERWAART (1978). De werking van het model wordt in het onderstaande summier beschreven. Het transport van de luchtverontreiniging door de ruimte komt tot stand onder invloed van de wind en van diffusie. Voor de diffusie is op grond van de wet van Fick en het behoud van massa van een niet reagerend medium in een turbulente stroming een differentiaal vergelijking op te stellen. Voor de numerieke oplossing van de diffusievergelijkingen wordt een implicite methode gebruikt. In dit model wordt de luchtverontreiniging geacht zich te bevinden in een eindige rij blokjes met hoogte Δz, lengte Δx en een eenheidsbreedte in de y-richting (omdat het hierbij om een lijnbron gaat). Laat de coördinaten in de x-richting: i lopen van 1 tot m en in de z-richting :j van 1 tot n. De concentraties in het blokje met coördinaten i,j zijn bekend, maar in het verder weg gelegen blokje i + 1,j nog onbekend. Door het behoud van massa kan de concentratie in i + 1,j geschreven worden als:

$$u_j \cdot C_{i+1,j} \cdot \Delta z + \{(k_z)_{j+\frac{1}{2}} \cdot \Delta x \cdot (C_{i+1,j} - C_{i+1,j+1})\} / \Delta z + \{(k_z)_{j-\frac{1}{2}} \cdot \Delta x \cdot (C_{i+1,j} - C_{i+1,j-1})\} / \Delta z = u_j \cdot C_{i,j} \cdot \Delta z \qquad 19$$

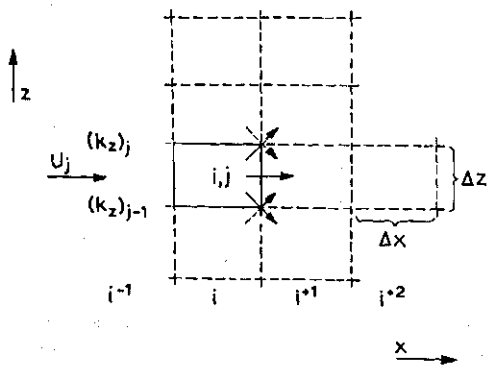


FIG. 11. Schematische werking van het model Weg

Als randvoorwaarde geldt, dat de flux door de vlakken $z = 0$ en $z = n$ nul is. Rechts van het gelijkteken staat de bekende concentratie, terwijl links de onbekende concentraties staan. De waarden van de windsnelheid en k_z op hoogte j worden bekend verondersteld. Eenzelfde vergelijking moet voor ieder blokje in het $i + 1$ vlak geschreven worden en dan kunnen de n vergelijkingen met n onbekenden opgelost worden. Vervolgens wordt het $i + 2$ vlak uitgerekend met de concentraties uit het $i + 1$ vlak als bekenden. Vergelijking 19 kan in matrixnotatie geschreven worden als:

$$[A] \times [B] = [E] \qquad 20$$

[A] is de $n \times n$ matrix met de transport- en diffusiteitstermen, [B] is de $1 \times n$ matrix van de onbekende concentraties in het vlak $i + 1$ en [E] is de $1 \times n$ matrix met de bekende concentratie flux van het i naar het $i + 1$ vlak.

De oplossing in het $i + 1$ vlak is eenvoudigweg:

$$[B] = [A]^{-1} \times [E] \qquad 21$$

Aangezien A groot is, bestaan er efficiëntere methoden van oplossen dan het inverteren van A. Hierbij wordt A vervangen door $A = MM^T$, waarbij M de onderdriehoeksmatrix is en M^T de getransporteerde van M. Dit is geoorloofd, omdat A een positieve, eindige en symmetrische bandmatrix is. De oplossing wordt gevonden door $Y = M^TB$ en het terugrekenen van Y in de vergelijking $MY + E$. Wanneer Y bekend is, kan B gevonden worden door terugsubstitutie in $M^TB = Y$.

Bij het gebruik van het model Weg wordt de valsnelheid van de deeltjes verwaarloosd, omdat de diameters van de onderzochte deeltjes kleiner zijn dan 1 μm en de valsnelheden dus zeer klein zijn. De gedeponeerde hoeveelheid op een oppervlak met lengte Δx en eenheidsbreedte bedraagt: $C_{i,1} \cdot v_d \cdot t_1$. De concentratie $C_{i,1}$ in het onderste blokje wordt verminderd met $C_{i,j} \cdot v_d \cdot t_1/u_1$ om de flux constant te houden. Bij de berekeningen is een stapgrootte van 0,33 m in de x en de z richting gekozen in de y-richting is de stapgrootte 1 m. Onder de veldomstandigheden is de windsnelheid in het onderste blokje groter dan 0,14 m/s, zodat de maximale tijdstap 2,4 seconden is. Voor alle ander blokken is de tijdstap kleiner dan 0,7 seconden. Voor een x afstand groter dan 5 Δx is de fout in de concentratieberekeningen kleiner dan 1% op hoogten, waar de concentratie groter is dan 10% van de concentratie in de pluimas. Het aantal stappen in de z richting (120) is zo gekozen, dat de concentraties niet noemenswaard beïnvloed worden door de reflectie tegen de as $z = 120\,\Delta z$. De coagulatieberekeningen in het model Weg worden uitgevoerd als eerste orde benadering, doordat voor iedere stap Δx, per blokje, en per grootteklasse de coagulatie berekend wordt met formule 8 en de respectievelijke concentraties daarmee verminderd worden. Deze benadering is natuurlijk alleen geoorloofd als de tijdstap t_j klein is ten opzichte van de verandering in concentratie ten gevolge van coagulatie. De gebruikte coagulatie parameters zijn berekend volgens WALTER (1973).

7.2.2. *Contrôle van het model Weg*

Een vergelijking van het model Weg met andere verspreidingsmodellen, gebaseerd op de gaussische benadering, is alleen mogelijk als zowel de windsnelheid als de diffusie-coëfficiënt constant zijn met de hoogte. Als we ook nog de hoek, waaronder de wind ten opzichte van een weg waait, in rekening brengen, gaat dit model over in de benadering van de verspreiding van een lijnbron met de formule 1 van CALDER (1973). Berekeningen wijzen uit, dat de oplossing verkregen met dit model en het model Weg identiek zijn. Ook bij de vergelijking van de depositie tussen het model Weg en op de gaussische theorie gebaseerde depositie modellen (K.N.M.I., 1974) is weer een voorwaarde, dat de windsnelheid en diffusiecoëfficiënt constant zijn met de hoogte. In de gaussische modellen wordt de droge depositie ingebracht door de bronsterkte met toenemende afstand tot de bron te laten afnemen. Vergelijking van de depositie berekend met het model Weg en die berekend met de gaussische theorie laat zien, dat in het laatste geval de depositie lichtelijk overschat wordt bij lage k_z ten opzichte van die berekend met het model Weg. Dit laatste is te verklaren uit het feit, dat bij het gaussisch model de gedeponeerde hoeveelheid na iedere stap aanleiding geeft tot een nieuwe lijnbronsterkte Q_{xo}. Dit is fysisch op te vatten als een onmiddellijke aanvulling van de gedeponeerde hoeveelheid tengevolge van een flux van op een hoger niveau rondzwevende verontreiniging naar de grond toe. In de werkelijke situatie, zoals die ook meer in het model Weg gesimuleerd wordt, zal deze flux met enige traagheid slechts tengevolge van een gradiënt ontstaan. Vandaar dat de grondconcentratie (in het onderste blokje) tengevolge van depositie relatief lager zal worden en er derhalve ook minder depositie zal plaatsvinden bij het model Weg. Het model gebaseerd op de gradiënttheorie zal de werkelijke situatie dan ook iets beter beschrijven.

Aangezien de coagulatie in het model ingebracht is als eerste orde benadering van het model van TOLFO (1977), is de belangrijkste vraag of de tijdstap klein genoeg is om deze benadering te rechtvaardigen. Berekeningen wijzen uit, dat bij de voorwaarde van een tijdstap kleiner dan 2,5 seconden de berekeningen met Weg dezelfde uitkomsten opleveren als de directe oplossingen van TOLFO (1977). Een grotere tijdstap is met name met het oog op de nauwkeurigheid van de verspreidingsberekeningen niet aan te raden, zodat in de praktijk de coagulatie juist gesimuleerd wordt. Uit het feit, dat zowel depositie als coagulatie in één verspreidingsmodel te brengen zijn, blijken wel de grotere mogelijkheden, die het gebruik van een diffusiemodel biedt. Ook het feit, dat er rekening is te houden met de verandering in de windsnelheid met de hoogte en de hoogte afhankelijkheid van de diffusiecoëfficiënt maakt, dat voor het simuleren van de verspreiding en de reacties in een verkeersaerosol deze benadering de voorkeur verdient boven die, gebaseerd op de statistische theorie.

7.3. Opstelling wegproeven

7.3.1. *Wegproeven in Wageningen*

De lozing van het tracergas vond plaats vanuit een – in beide richtingen – over de Lawickse Allee rijdende personenauto. Het traject waarover gereden werd, was ongeveer 1500 meter lang. Het meetpunt ligt ongeveer 150 m ten westen van het Instituut voor Plantenveredeling. Het gas werd geloosd vanuit een cylinder (10 dm^3, 2 MPa), met een reduceerventiel werd de secundaire druk op 200 à 300 kPa ingesteld, daarna passeerde het gas een flowcontroler (Brooks no. 6) en een flowmeter en kwam via $\frac{1}{4}$ inch slang achter de auto op een hoogte van 40 cm boven het wegoppervlak. Er werd 6,1 liter zwavelhexafluoride per minuut geloosd en de auto reed met een gemiddelde snelheid van 70 km/uur, zodat de lijnbronsterkte gedurende 35 minuten bij gemiddeld 18 passages op 273 µg/m.s komt.

Tijdens iedere meting van 35 minuten werden op 20 meter afstand van de wegas op 4 meter en 2 meter boven het maaiveld tracergasmonsters genomen in een glazen gasmonsterfles met stijgbuis. Ditzelfde gebeurde op 40 meter, 80 meter en 145 meter van de wegas, zij het steeds op 2 meter hoogte. Ook bovenop de meetauto op een hoogte van 3,5 meter, bij de luchtinlaat van het aerosol meetsysteem, werden twee gasmonsterflessen aangebracht. De meetflessen werden bij iedere meting steeds door één persoon in een vaste volgorde open en dicht gedraaid. De monsters werden na afloop op het laboratorium met een HP 5710 A gaschromatograaf (Hewlett Packard) geanalyseerd met 3380 S integrator.

De aerosolmetingen werden gedaan door apparatuur opgesteld in de meetauto (Mercedes 406D). De deeltjes van 0,01 µm tot 1 µm werden gemeten met een electrische verdelings analysator (TSI 3030, Thermo Systems Inc.). De meetgegevens werden geregistreerd in 44 kanalen op een dataverwerkingsset, bestaande uit een Digitale Volt Meter (Philips PM 2441), een 50-kanaals scanner (Philips PM 2460, PM 2461), een Printer Control Unit (Philips PM 2465) en geregistreerd op een cassette-recorder (bouw TFDL) en ter contrôle uitgeprint door een printer (Philips PM 2466).

De meetauto stond gedurende één meting van 35 minuten steeds op hetzelfde punt en voltooide vijf keer een monstercyclus van 6,7 minuten. Er werden steeds 15 grootteverdelingen gemeten per meetpunt. De relatieve vochtigheid en de temperatuur werden tijdens iedere proef enige keren bepaald met een Assmann psychrometer (Thiess, Type nr. 400). Na iedere meting werd doorgereden naar een volgend meetpunt en werd aan de volgende begonnen, totdat alle punten aan de beurt waren geweest. Ter contrôle werden op 20 meter afstand en 4 meter hoogte de deeltjesaantallen met een condensatiekernenteller gemeten (Gardner Associates Inc. no. 1145). Gedurende 35 minuten werden hiermee 9 tot 15 metingen uitgevoerd, waarbij er voor gezorgd werd, dat het volume in de aanzuigleiding eerst ververst werd. Het geometrisch gemiddelde van de deeltjesaantallen bij de afzonderlijke metingen werd beschouwd als de gemiddelde concentratie.

Op 20 meter en 80 meter van de wegas op een hoogte van 4 meter stonden de

wind-waarnemingsinstrumenten opgesteld, bestaande uit een cup anemometer (Sensitive anemometer; Casella) met een tellertje op 6 V voeding en een bivaan (Young Company). De vier signalen van de beide bivanen werden geregistreerd op een 6-kanaals recorder (Rikadenki Kogyo Co. Ltd., type KA-62) met een papiersnelheid van 3 cm/minuut. De meetwaarden werden om de 1 cm – dus om de 20 seconden – afgelezen, waarna het gemiddelde en de standaardafwijking tijdens iedere proef werd berekend.

Voor de loodmetingen stonden op 20, 40, 80 en 145 meter HiVol (Precision Scientific Company, General Metal Works) samplers met W41 filters, op het voorbelastingspunt stonden 2 HiVols met één gecombineerde pomp. Gedurende iedere proef werd de flow van de HiVols afgelezen, zodat achteraf het monstervolume precies berekend kon worden. De HiVols werden aan het begin van de dag aangezet en na afloop van de laatste meting uitgedaan. Het geëxponeerde filteroppervlak bedroeg 400 cm^2. Het totale monstervolume bij de voorbelasting was 700–850 m^3. Op de andere meetpunten varieerde dit, afhankelijk van de lengte van de meetdag van 280–590 m^3. De loodconcentraties werden gemeten op een Atomaire Absorptie Spectrometer (Perkin Elmer, type 400; met acetyleen-luchtvlam en achtergrondcorrectie), na destructie van de filters door koken onder terugvloeiing gedurende 1,25 à 1,5 uur met een mengsel van 35 cm^3 3 : 1 = $HNO_3 : HClO_4$ en aanvulling met gedestilleerd water tot 50 cm^3. Gedurende de meting werd een verkeerstelling uitgevoerd, waarbij ieder twee- en meerwielig motorvoertuig en iedere bromfiets geteld werden, en het aantal passages van de emissie-auto werd bijgehouden. Twee keer per dag werden ook voorbelastings aerosol concentraties bepaald. Daar werd twee maal een meetcyclus van 6,7 minuten uitgevoerd met de electrische verdelings analysator; verder werden daar op 1 meter hoogte metingen met de condensatiekernenteller gedaan en werden de relatieve vochtigheid en temperatuur gemeten.

7.3.2. *Wegproeven in Veenendaal*

Bij de wegproeven in Veenendaal zijn op enkele punten wijzigingen aangebracht in de opstelling ten opzichte van de zojuist beschreven proeven. Deze wijzigingen zullen hieronder besproken worden. Het meetpunt ligt aan de weg tussen Veenendaal en Rhenen. Aangezien lagere tracergasconcentraties ook nog gevoelig genoeg gemeten konden worden en zwavelhexafluoride een duur gas is, is tijdens de proeven in Veenendaal de emissie op 1 liter per minuut ingesteld, de gebruikte flowcontroler was een Brooks no. 5. Aangezien de emissie-auto iets meer passages maakte dan in Wageningen en de meettijd langer was, lag de gemiddelde lijnbronsterkte ongeveer een factor vijf onder die in Wageningen. Alle tracergasmetingen zijn teruggerekend naar een lijnbronsterkte van 50 µg/m.s. Tijdens iedere meting van 40 à 42 minuten werden tracergas monsters genomen of wel op 30 m afstand op 3,7; 2,0; 1,2; 0,70; en 0,35 m hoogte en op 60 m; 90 m en 120 m afstand op 2 m hoogte (soms ook op 120 m afstand en 0,35 m hoogte) of wel op 60 m afstand op 3,7; 2,0; 1,2; 0,70 en 0,35 m hoogte en op 30 m; 90 m en 120 m afstand op 2 m hoogte (soms ook op 120 m afstand en 0,35 m hoogte).

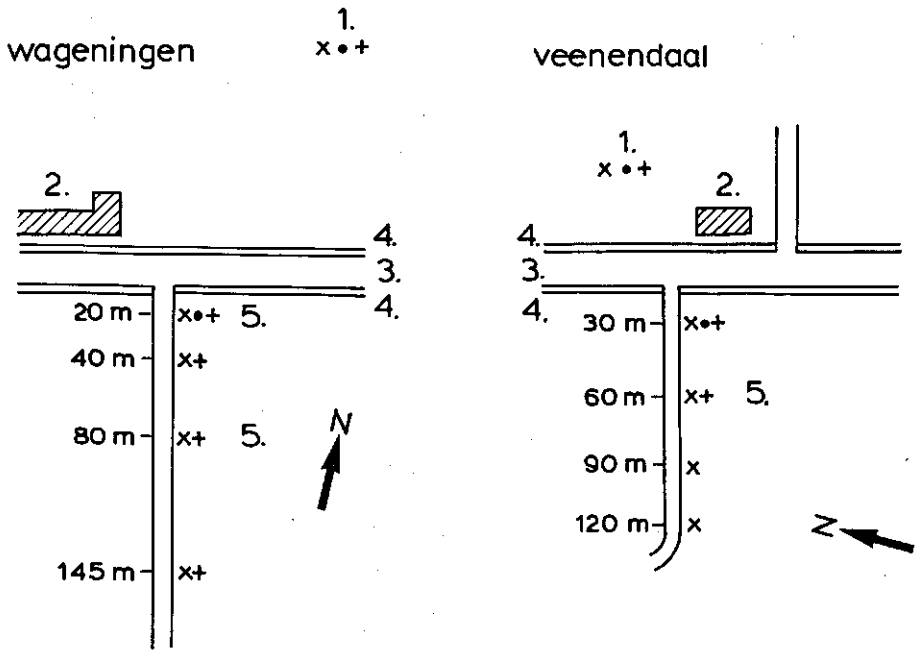


FIG. 12. Schets van de situatie in Wageningen en Veenendaal.

1. voorbelasting
2. huis
3. weg
4. fietspad
5. bivaan

. metingen met condensatie kernen teller
× meting van SF_6
+ meting van lood

De meetplaatsen en meethoogten voor aerosolen zijn in principe gelijk aan die voor het tracergas met die beperking, dat er niet gemonsterd is op 2,0 m en 0,70 m hoogte. De meetapparatuur voor aerosolen stond niet in de meetauto opgesteld maar op een verrijdbaar karretje. Het aerosol werd bij de monstername eerst ontladen door β-straling uit een radioactieve bron van 10 mCi (TSI 3054) en vervolgens door een 10,3 m lange slang met een diameter van 12 mm getransporteerd. Het debiet bedroeg 833 cm^3/s. Gedurende één proef werd op iedere hoogte een gelijk aantal keren een complete monstercyclus van de electrische verdelings analysator uitgevoerd, dat wil zeggen of wel op 3 hoogten 6 complete deeltjesgrootteverdelingen van 0,01 tot 1 μm diameter of wel op 2 hoogten 9 complete deeltjesgrootteverdelingen. De windsnelheid werd gemeten op 60 m afstand op 3,7 m; 2,0 m; 1,2 m; 0,70 m en 0,35 m hoogte. Met een serie van vijf gevoelige cupanemometers van de afdeling Natuur- en Weerkunde met bijbehorende registratie apparatuur.

De monstername van lood vond op het voorbelastingspunt en of wel op 30 m of wel op 60 m afstand van de weg op dezelfde hoogten als de tracergas monstername plaats. Het werd gemonsterd op glasvezelfilter (Whatman CF/C, doorsnede 47 mm) in een naar beneden gerichte monsterkop (Satorius SM 165.99). De

lucht werd daarna door een droge gasmeter gepompt door een F-75 pomp (Charles Austen) met een debiet van ongeveer 2 m^3 per uur. De monsterduur bedroeg 3 à 4 uur. De filters werden na afloop geanalyseerd door vlamloze atomaire adsorptiespectrometrie na zure extractie volgens normvoorschrift NEN 2153 (1977). De blanco filters bevatten gemiddeld 0,087 µg Pb per filter met een standaardafwijking van 0,023 µg (n = 6). Het verkeersaanbod werd geregistreerd met een Elmeg verkeersteller van de afdeling Cultuurtechniek.

7.4. Resultaten en interpretatie

7.4.1. *Verspreiding*

De gemeten tracergasconcentraties staan in de bijlagen 3 en 7. De meteorologische parameters, die voor de verspreiding van belang zijn, zijn opgenomen in de bijlagen 2 en 8. Gedurende de wegproeven in Wageningen zijn op de meetauto duplo metingen van het tracergas uitgevoerd. Tussen de 13 duplo's is het gemiddelde verschil 5,8% met een standaardafwijking van het gemiddelde van 2,5%. De orde van grootte van het verschil in duplo's komt overeen met die gevonden bij andere veldproeven met het tracergas. Bovenkerk en Leffers (1977) vonden een variatie van 3% in duplo's met concentraties boven 10 µg/m^3 en van ongeveer 10% in duplo's met lagere concentraties SF_6. Door het verloop van de ijklijn van SF_6 op een analysedag ontstaan er fouten. Doordat aan het begin en eind van de analyse een ijklijn in triplo bepaald is, kan hiervoor gecorrigeerd worden. De geschatte fout, die hierdoor ontstaat, is kleiner dan 5%. De belangrijkste bron van fouten is contaminatie van de meetflessen tijdens het vervoer ten gevolge van weglekken en 'ademen'. Er is gepoogd deze te minimaliseren door direct na aankomst op het laboratorium de meetflessen onder water te bewaren.

Voordat de verspreiding met behulp van het model Weg gesimuleerd kan worden moet de onbekende diffusiecoëfficiënt nog uit de meetwaarden afgeleid worden. De andere invoergegevens zoals het windsnelheidsprofiel en de lijnbronsterkte van het tracergas zijn wel bekend. Bij de optimalisatie van de diffusiecoëfficiënt uit de gemeten tracergasconcentraties en windsnelheden is uitgegaan van de vooronderstelling dat de diffusie coëfficiënt lineair toeneemt met de hoogte en dat de diffusiecoëfficiënt kleiner of gelijk is aan 4 m^2/s. Deze optimalisatie is gebeurd door de bepaling van de minimale Chi-kwadraat bij verschillende k_z waarden bij één bepaalde bronhoogte. In 22 van de 24 gevallen bleek er bij alle ingevoerde bronhoogten één bepaalde waarde van k_z te zijn, waarbij de χ^2 minimaal werd. De waarde voor k_z is gevoelig voor de bronhoogten die in het model ingebracht wordt. Ook dit is een onbekende parameter. Door de bronhoogte als invoerparameter te variëren en daarbij voor iedere bronhoogte de k_z uit te rekenen waarvoor χ^2 minimaal was, ontstond een beeld voor een optimale bronhoogte.

Als gemiddelde bovengrens van de lijnbronhoogte is uit de optimalisatie 2,3 m naar voren gekomen. Het verse verkeersaerosol wordt geloosd geacht in een ruimte tussen 0 m hoogte (het wegdek) en een bovengrens van 2,3 m. Gezien de

grote turbulentie vlak achter een auto wordt het aerosol homogeen gemengd verondersteld over deze hoogte van 2,3 meter. De bronsterkte zal bij iedere meting gerelateerd moeten worden aan de windsnelheid over deze hoogte van n stappen Δz van 0 meter tot de bovengrens, opdat de flux aan tracergas gelijk is aan de gemiddelde emissie per seconde:

$$Q = \sum_{j=1}^{n} C_{o,j} \cdot u_j \cdot \Delta z \qquad 22$$

Aangezien de concentratie homogeen gemengd is, geldt:

$$C_{o,j} = Q/(\Delta z \cdot \sum_{j=1}^{n} u_j) \qquad 23$$

Met formule 23 kan bij de verschillende bovengrenzen voor de bronhoogte de lijnbronsterkte van het tracergas eenvoudig berekend worden.

De in het veld gemeten tracergasconcentraties en de met het model berekende concentraties, na de optimalisatie van de k_z-waarden, komen heel redelijk overeen. De nulhypothese dat de gemeten en berekende waarden niet verschilden, kon met een t-toets voor gepaarde waarnemingen 21 van de 22 keer niet verworpen worden op het 95% betrouwbaarheidsniveau. Dit wil zeggen dat de optimalisatie van de k_z-waarden goed is verlopen en er juist is gerekend. Verder wil dit zeggen dat de meetwaarden zich laten beschrijven door een lijnbronmodel met een continue emissie. Een nadere bespreking van het model Weg en de verschillende vooronderstellingen die eraan ten grondslag liggen volgt in 7.5.

7.4.2. *Aerosolen*

7.4.2.1. Electrische Verdelings Analysator

Bij alle verdere verwerking en interpretatie van de aerosolmetingen is de volgende procedure toegepast om de meetwaarden van de verschillende metingen zo goed mogelijk vergelijkbaar te maken. Allereerst werd van iedere meting de bijbehorende voorbelasting afgetrokken om de bijdrage van de weg te kunnen schatten. Vervolgens werd gedeeld door de gemeten tracergasconcentratie op dezelfde plaats om de meting te corrigeren voor de verspreiding. De metingen in Veenendaal werden daarenboven nog gedeeld door een factor 5,46 om de lijnbronsterkte, die toen 50 µg/m.s was, in overeenstemming te brengen met de lijnbronsterkte van 273 µg/m.s tijdens de metingen in Wageningen. Tenslotte werden alle meetwaarden gestandaardiseerd naar een voertuigaanbod van 10 auto's/minuut om beïnvloeding door de variatie in het verkeersaanbod zo goed mogelijk uit te sluiten. In de figuren 13 en 14 staan de op deze wijze gecorrigeerde meetgegevens uitgezet tegen de verblijftijd. Er is gekozen voor een grafische methode van weergave van de meetgegevens om een eerste indruk te vergemakkelijken. Daarbij staan twee vragen centraal. Vertoont het deeltjesaantal met toenemende verblijftijd van het aerosol een afname? Wat is de bronschatting op

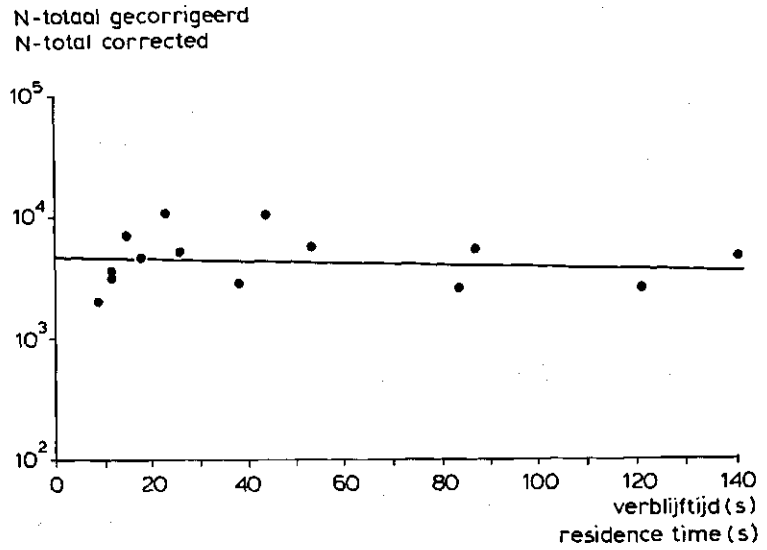


FIG. 13. Het gecorrigeerde totaal aantal deeltjes bij de wegproeven in Wageningen, uitgezet tegen de verblijftijd.

t = 0? In de figuren 13 en 14 is de concentratie van het totaal aantal deeltjes niet uitgezet als reciproke van het totaal aantal deeltjes tegen de verblijftijd, zoals gebruikelijk is wanneer het om een proces gaat, dat door coagulatie beheerst wordt (FUCHS, 1964), maar als een exponentiële afname. Dit laatste is meer in overeenstemming met het belangrijkste verwijderingsmechanisme op korte afstand van de weg namelijk de droge depositie.

Uit regressie berekeningen volgt, dat de totale deeltjesconcentratie in Wageningen afneemt met de verblijftijd, en in Veenendaal daarentegen toeneemt:

Wageningen N – totaal = $4862 \cdot \exp(-0{,}002604 \cdot t)$ (n = 14)

Veenendaal N – totaal = $2609 \cdot \exp(+0{,}013923 \cdot t)$ (n = 10).

De correlatie is tengevolge van de strooiing in de meetresultaten echter zo gering, dat de macht in plaats van positief net zo goed negatief had kunnen zijn en omgekeerd. De metingen in Veenendaal hebben verblijftijden tot 50 seconden, door de hogere windsnelheden ter plekke, zodat ze zich over een beperktere schaal uitstrekken dan die in Wageningen, waar de maximale verblijftijd 140 seconden was. Wanneer er regressie berekeningen worden toegepast op de metingen in Wageningen met verblijftijden kleiner dan 50 seconden wordt de eerst gevonden afname ook een toename. Hieruit volgt, dat de afname in de eerste minuut wegvalt in de ruis van de metingen. Slechts bij verblijftijden boven de minuut is er sprake van een fysisch consistent beeld, namelijk een afname ten gevolge van coagulatie en depositie. Met nadruk zij er nog op gewezen, dat ook de macht nul, dat er géén afname is, op grond van de meetresultaten, niet uitgesloten kan worden.

Uit het snijpunt met de y-as op t = 0 volgt de bronsterkte van het totaal aantal

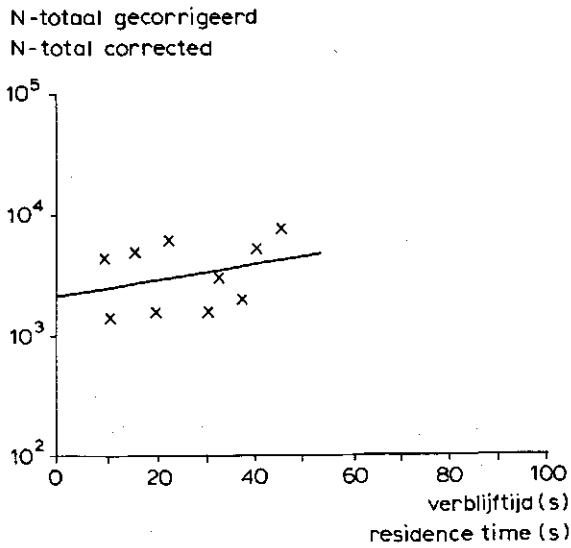


FIG. 14. Het gecorrigeerde totaal aantal deeltjes bij de wegproeven in Venendaal, uitgezet tegen de verblijftijd.

deeltjes. Achtereenvolgens worden de asafsnede en de asafsnede min en plus één maal de standaardafwijking gegeven. De waarden zijn omgerekend in deeltjes geëmitteerd per afgelegde kilometer per voertuig.

	asafsnede (bronsterkte)	asafsnede $-\sigma$	asafsnede $+\sigma$
Wageningen:	7,96 E15	6,42 E15	9,94 E15
Veenendaal:	4,95 E15	2,98 E15	8,22 E15

De lage waarden voor Veenendaal zijn een gevolg van de positieve waarde van de e-macht, dus fysisch minder juist te noemen. Wanneer de bronschatting op grond van de gemiddelde meetwaarden uitgevoerd wordt – hierbij is de veronderstelling, dat er geen coagulatie en depositie plaatsvindt – volgt daaruit:

	gemiddelde	standaardafwijking
Wageningen:	7,99 E15	4,45 E15
Veenendaal:	8,59 E15	5,07 E15

Naast de grafische methode is de tweede mogelijkheid om te komen tot een bronschatting en een evaluatie van het gedrag van het verse verkeersaerosol het gebruik van het onder 7.2. beschreven model Weg. Hierbij wordt de invloed van coagulatie en depositie niet verwaarloosd, in tegenstelling tot bij de laatste methode van bronschatting. De schatting van de emissie met behulp van het *model* is als volgt verlopen. In het model Weg is de gemeten voorbelastingsconcentratie over de hoogte van 0–40 m als input gebruikt. Voor de in eerste instantie onbekende emissie van de weg is over de hoogte 0–2,3 m een waarde

TABEL 12. Gemiddelde emissie in deeltjes per afgelegde kilometer per voertuig bij de wegproeven berekend met het model Weg.

diam. µm	0,75	0,42	0,24	0,13	0,07	0,04	0,02	0,01	N-totaal ⩾0,01
Wag.	17,9 E11	6,54 E12	2,52 E13	7,78 E13	2,15 E14	2,30 E14	2,85 E15	5,17 E15	8,56 E15
Veen.	5,79 E11	2,75 E12	2,22 E13	8,83 E13	1,89 E14	4,41 E14	3,51 E15	5,55 E15	9,80 E15
Variatie coëfficiënt in procenten									
Wag.	80	93	96	115	81	96	55	64	52
Veen.	168	171	135	126	98	95	65	92	55

gekozen. Door nu deze emissie zodanig te variëren, dat de gemeten en berekende aerosolconcentraties minder dan 1% verschillen, is de emissie van de weg (onder de vigerende meteo-omstandigheden) te schatten. In tabel 12 staan de zo berekende emissies in deeltjes per afgelegde km per voertuig. Bij tabel 12 moet nog de opmerking gemaakt worden, dat de betrouwbaarheid van de schatting van de bronsterkte vermindert bij deeltjes groter dan 0,4 µm en kleiner dan 0,02 µm. Bij de grotere diameters omdat de voorbelasting relatief zo'n belangrijke rol gaat spelen en bij de kleinere diameters omdat de meetfout daar groter is dan bij de grotere deeltjesdiameters. De verschillende aspecten met betrekking tot het gedrag van het verkeersaerosol worden in 7.5.2. nog behandeld.

De vergelijking van de schatting van de bronterm met het model Weg en met de grafische methode laat zien, dat beiden tot ongeveer dezelfde resultaten leiden. De schatting met behulp van het model Weg valt iets hoger uit, omdat hierbij tevens rekening is gehouden met de verliezen, die zijn ontstaan ten gevolge van depositie en coagulatie.

7.4.2.2. Condensatie Kernen Teller

Op dezelfde manier als hierboven beschreven, kunnen de aerosolmetingen van de condensatie kernen teller ook omgerekend worden tot een emissie aan deeltjes per afgelegde kilometer. Hierbij is om twee redenen geen rekening gehouden met coagulatie- en depositieverliezen. De metingen zijn steeds op 20 of 30 m afstand van de weg gedaan. Dus de verblijftijden zijn kort, minder dan 20 seconden. Van het 'totale' aerosol, dat de condensatie kernen teller meet, zijn de depositiesnelheden en coagulatieparameters niet zo goed bekend als van de individuele deeltjesklassen bij de electrische verdelingsanalysator.

De correlatiecoëfficiënt van de metingen van de electrische verdelings analysator en condensatie kernen teller op dezelfde punten is 0,81 (n = 16). Dit laat zien, dat de partiële contrôle van de metingen met een ander meetinstrument eenzelfde beeld geeft. De vergelijking van de brontermen, geschat uit de metingen met beide instrumenten gaven een verschil van meer dan een factor 2 (tabel 12 en 13). Wanneer echter de afnemende telefficiëncy van de condensatie kernen teller voor deeltjes kleiner dan 0,04 µm in rekening wordt gebracht (LIU en KIM, 1977) en de efficiency voor deeltjes van 0,01 µm op 50% en van 0,02 µm op 85%

TABEL 13. Berekende emissie in deeltjes per afgelegde kilometer per voertuig bij de wegproeven gemeten met een condensatie kernen teller, en de emissie gemeten met een electrische verdelings analysator die gestandariseerd is naar de telefficiëncy van een condensatie kernen teller.

	condensatie kernen teller		electrische verdelings analysator telefficiëncy volgens:	
	emissie	variatie coëfficiënt	Perrin (1976)	Liu en Kim (1977)
Wageningen	3,91 E15	58%	3,92 E15	5,56 E15
Veenendaal	3,26 E15	52%	4,63 E15	6,47 E15
gemiddeld	3,61 E15	56%	4,21 E15	5,94 E15

geschat wordt, kan uit de metingen van de electrische verdelings analysator een emissie berekend worden die vergelijkbaar is met de uit de condensatiekernenteller metingen bepaalde emissies. Ook kan de telefficiency gebruikt worden zoals die door PERRIN (1976) bepaald is: 30% voor deeltjes van 0,01 μm, 65% voor 0,02 μm en 83% voor deeltjes van 0,04 μm.

Deze relatie tussen de meetinstrumenten kan ook van een andere kant benaderd worden. In 6.3. is een relatie gelegd tussen de metingen aan ijkaerosolen met een condensatiekernenteller en een electrische verdelings analysator. Wanneer de metingen van de condensatiekernenteller tijdens de wegproeven (op grond van de relatie: $EVA = 2{,}754\,(CKT)^{0{,}9795}$) worden omgerekend in vergelijkbare uitkomsten van de electrische verdelings analysator, wordt voor de proeven in Wageningen een gemiddelde deeltjesemissie van 8,63 E15 deeltjes per afgelegde kilometer per voertuig gevonden en voor die in Veenendaal 7,90 E15, hetgeen bijzonder dicht in de buurt ligt van de gevonden waarden van 9,80 E15 en 8,45 E15. Resumerend kan gesteld worden, dat de in 6.3. verwachte overeenstemming tussen de metingen van de electrische verdelings analysator en de condensatiekernenteller inderdaad gevonden is.

7.4.3. *Loodmetingen*

Van de loodmetingen zijn alleen de resultaten van de metingen in Wageningen tijdens de wegproeven beschikbaar, omdat de metingen in Veenendaal door een analysefout onbruikbaar zijn. Uit aanvullende loodmetingen op de eerder genoemde meetplaatsen met overigens dezelfde opstelling maar op andere dagen zijn wel bruikbare gegevens te halen (VERWAART, 1978). De achtergrondsconcentratie tijdens de metingen in Wageningen in 1977 is tot een factor vijf hoger dan de bijdrage van de weg op 145 meter afstand. Op 80 m is dit nog maximaal een factor drie. Aangezien een bronschatting dan grote onzekerheden met zich meebrengt, wordt de lijnbronsterkte alleen berekend op de afstanden 20 en 40 m.

Loodmetingen in Veenendaal op 10 februari en in Wageningen op 3 maart leverden een lijnbronsterkte op van respectievelijk 8,3 mg/km en 7,2 mg/km als gemiddelde over vijf metingen. De hogere standaardafwijking tijdens de serie op 10 februari is te verklaren uit het feit, dat slechts één serie SF_6 metingen is

TABEL 14. Loodconcentraties in µg/m³ zonder voorbelasting en berekende loodemissie in mg per afgelegde kilometer per voertuig.

Wageningen	1977	Emissie				Concentratie		
meethoogte 1 m	datum	17 juni	20 juni	21 juni	gemiddeld	17 juni	20 juni	21 juni
afstand tot weg								
20 meter		11,9	13,6	17,5	14,3	0,21	0,20	0,21
40 meter		13,9	11,0	25,4	16,8	0,13	0,11	0,16
voorbelasting		–	–	–	–	0,08	0,11	0,05

Wegproeven	1978	Emissie						
30 meter		meethoogte z in meters					gemiddeld over de hoogte	variatie coëfficiënt in %
		0,35	0,7	1,2	2,0	3,7		
Veenendaal	10 febr.	1,8	6,6	9,9	10.0	8,7	8,3	41
Wageningen	3 mrt.	10,0	7,1	7,2	8,2	6,1	7,2	21

uitgevoerd en slechts van 19% van de tijd waarop lood gemonsterd is ook de exacte verspreiding bekend is.

De lood achtergrond in het blanco filtermateriaal is bij de metingen uit 1977, die in tabel 14 gepresenteerd worden 25,5 ± 2,1 µg lood per half filter (VAN ALPHEN en BROEKMAN, 1977), zodat zelfs bij een monstername volume van 400 m³ en een achtergrondsconcentratie van 0,1 µg lood/m³ er nog geen verdubbeling van de achtergrond optreedt ten opzichte van het blanco filtermateriaal. Bij de lood emissies uit 1978 is de blanco 0,087 ± 0,023 µg lood per filter, zodat de voorbelastingsconcentratie na een monsterduur van drie uur nog ruim een factor 4 groter was dan het blanco filtermateriaal. Wat betreft loodemissie, geschat uit de metingen in Wageningen in 1977, blijkt, dat bij een benzineverbruik van 11 km/liter, 0,5 gram Pb/liter en een kruissnelheid van 72 km/uur volgens TER HAAR, LENANE, e.a., (1972) de bronsterkte 8,4 mg/km per voertuig zal zijn. Bij een snelheid van 97 km/uur is dit 14,9 mg/km. De uit de metingen in 1977 geschatte bronsterktes voor lood van 14,3 en 16,8 mg/km zijn iets hoger dan verwacht zou worden. De onzekerheid die ontstaat door de relatief hoge loodachtergrond in het blanco filtermateriaal lijkt hier debet aan te zijn.

Voor de metingen in 1978 en later moet uitgegaan worden van een 20% lagere bronsterkte, omdat het maximale loodgehalte in de benzine verlaagd is op 1 januari 1978, zodat de verwachte emissie bij de twee genoemde kruissnelheden respectievelijk 6,7 mg/km en 11,9 mg/km per voertuig zal zijn. De gemeten waarden voor de loodmetingen in 1978 in Veenendaal en Wageningen van respectievelijk 8,3 mg/km en 7,2 mg/km komen dicht bij de verwachte waarde terecht. Vergelijking met andere metingen van lood langs een weg zijn moeilijk, omdat vaak allerlei gegevens ontbreken met betrekking tot de verspreiding, het aantal voertuigen en de voorbelasting.

Bij emissie inventarisaties wordt in het algemeen uitgegaan van een veel hogere emissie dan gepresenteerd door TER HAAR, LENANE, e.a., (1972), omdat men aanneemt, dat al het verbrande lood ook in de atmosfeer terechtkomt. In Keulen wordt uitgegaan van een emissie per voertuig van 51 mg/km (MINISTER FÜR ARBEIT, GESUNDHEIT UND SOCIALES DER LANDES NORDRHEIN-WESTFALEN, 1972). DE RIDDER (1975) heeft een schatting van 59 mg/km per voertuig gebruikt om de loodemissie in Arnhem te schatten. Met deze emissie kwam hij tot een geschatte concentratie door het toepassen van het model van HANNA (1971) van ongeveer 7 $\mu g/m^3$ aan lood in het quadrant voor Musis Sacrum in Arnhem. Loodconcentratiemetingen met behulp van HiVol samplers door DUYSENS en SCHOMAKER (1974) op dit punt leverden loodconcentraties op van 0,2 tot 1,3 $\mu g/m^3$. Uit de metingen van TER HAAR, LENANE, e.a., (1972) is door lineaire interpolatie een emissie van ongeveer 14% van het verbrande lood bij 50 km/uur geschat; dit komt neer op een loodemissie van 6,3 mg/km per voertuig. Hetgeen ruim een factor 9 lager is dan door DE RIDDER (1975) gebruikt. De berekende loodconcentratie zal dan ongeveer 0,7 $\mu g/m^3$ zijn. Dit komt beter overeen met de meetwaarden van DUYSENS en SCHOMAKER (1974) en vormt naar mijn idee een aardige illustratie van de kracht van de gegevens van TER HAAR, LENANE, e.a., (1972). In emissiekadasters zou het onjuist zijn om uit te gaan van het feit, dat de auto's alleen met een kruissnelheid van 50 km/uur rondrijden, zoals hierboven gedaan is, want met name optrekken en hellingen zorgen voor een veelvoud van de loodemissie. Op het beschreven quadrant is echter de situatie zodanig, dat deze vooronderstelling gewettigd is.

Concluderend kan gesteld worden, dat de loodmetingen een beeld opleveren, dat tot reële uitkomsten aanleiding geeft, zodat de gebruikte opzet en de simulatie van een lijnbron met een tracergas experimenteel gevalideerd is. De verspreiding van aerosolen met diameters kleiner dan ongeveer 1 μm blijkt met een tracergas als zwavelhexafluoride zeker binnen een factor anderhalf te simuleren te zijn.

7.5. GEVOELIGHEIDSANALYSE MODEL WEG

In het voorafgaande onderdeel is het model Weg gebruikt om een beschrijving te geven van de verspreiding. Daarvoor was het nodig eerst een optimalisatie van de diffusie coëfficiënt uit te voeren. Daarnaast zijn ook andere vooronderstellingen gemaakt en simplificaties ingevoerd. In eerste instantie wordt hieronder ingegaan op de gevoeligheid van het gebruikte model voor met name de meteorologische invoergegevens. Daarna zal de gevoeligheid voor de gebruikte parameters, die het aerosolgedrag beschrijven, besproken worden.

7.5.1. *Meteorologische parameters*

7.5.1.1. Diffusie coëfficiënt

De in het model ingevoerde diffusie coëfficiënten voldoen aan een machtwet of

verlopen lineair met de hoogte, afhankelijk van de gekozen beschrijving van het windprofiel. In beide gevallen geldt, dat de schuifspanning constant is met de hoogte. Bij de windprofielen, die beschreven worden op basis van de machtwet (de metingen in Veenendaal) kan uit formule 4 het volgende profiel voor de diffusie coëfficiënt afgeleid worden; KAISER (1959) geeft:

$$k_z = k_r (z/z_r)^{1-p} \qquad 24$$

Wanneer het windprofiel op basis van een logaritmisch windprofiel beschreven wordt (metingen in Wageningen) ontstaat er de in 2.2.2. gegeven betrekking voor de diffusie coëfficiënt:

$$k_z = \kappa \cdot u_* \cdot z \qquad 25$$

Als eerste benadering zijn de in het model ingevoerde diffusie coëfficiënten lineair met de hoogte voorondersteld, zoals ook door MALDONADO en BULLIN (1977) gedaan is bij de beschrijving van de koolmonoxide verspreiding van een weg, uitgaande van een windprofiel op basis van de machtwet. Voor de metingen in Wageningen is dit ook theoretisch geheel juist. Voor de metingen in Veenendaal is deze benadering vergeleken met de resultaten, die het model zou opleveren bij een juiste beschrijving van het k_z-profiel met formule 24. Daarbij blijkt, dat voor 4 april, met de hoogste waarden voor p namelijk 0,19 en 0,20, de geschatte bronsterkten een variatie vertonen van +4,8% tot −9,2% en dat de gemiddelde bronsterkte schatting met een k_z-profiel gebaseerd op formule 24 99,1% van de bronsterkte schatting met formule 25 bedraagt, zodat voor het gemak verder gerekend wordt met een lineair met de hoogte toenemende waarde voor de diffusie coëfficiënt. Van alle meetdagen is er alleen op de eerste meetdag in Veenendaal sprake van een ongestoorde aanstroming. Op de andere dagen was deze altijd min of meer gestoord door de aanwezige bebouwing (zie figuur 12). De k_z-waarden op 1 meter hoogte op deze dag waren 0,16 m^2/s met een standaardafwijking van 0,04 m^2/s. Op de andere meetdagen is de k_z een factor 2 à 5 hoger dan voor een ongestoorde aanstroming zou gelden met formule 25. Wanneer de verspreiding in het zog van obstakels beschreven wordt, is, afhankelijk van de lokale situatie, een sterke wisseling van de k_z-waarden mogelijk (JACOBS, 1979). Voor het onderhavige onderzoek is dit ook niet zo erg, aangezien deze waarde slechts als rekenkundig hulpmiddel is gebruikt en omdat blijkt, dat de berekende en gemeten tracergas concentraties heel redelijk overeenstemmen.

7.5.1.2. Constante emissie

Voor de eenvoud is de emissie aan tracergas constant verondersteld gedurende de gehele run in plaats van een meer waarheidsgetrouwe beschrijving in de vorm van een pufmodel met discontinue lozingen. Een puflijnmodel gebaseerd op de gaussische theorie is te vinden door integratie van y van $-\infty$ naar $+\infty$ van de formule voor een pufpuntbron:

$$C = \frac{Q'}{2 \cdot \pi \cdot \sigma_x \cdot \sigma_z} \cdot \exp\left[-\frac{(x-u \cdot t)^2}{2\sigma_x^2}\right] \cdot \left[\exp\left\{-\frac{(z-H)^2}{2\sigma_z^2}\right\} + \exp\left\{-\frac{(z+H)^2}{2\sigma_z^2}\right\}\right] \quad 26$$

Door integratie van formule 26 over de totale meettijd t wordt de totale dosis vanuit een puflijnbron verkregen. Deze is gelijk aan de flux, die berekend kan worden van een gaussisch lijnbronmodel gedurende de tijd t seconden met een windsnelheid van u m/s. Deze laatste integratie is bij de tracergas meting in de praktijk het geval geweest, zodat het geoorloofd is om een aantal puflijnbronnen te beschrijven als een over de tijd gemiddelde lijnbron. Uit metingen van DRIVAS en SHAIR (1974) met een eenmalige puflijnbron aan zwavelhexafluoride bleek, dat tot 400 meter afstand van de emissielijn de vorm van de verkregen concentratie curve als functie van de tijd nog niet noemenswaard afwijkt van die welke met een gaussische verspreiding te berekenen is. Zoals reeds eerder is aangegeven, wordt aan een gradiënt model de voorkeur gegeven. Op grond van deze overwegingen blijkt ook al, dat bij een passage frequentie van 18 à 20 keer per run de veronderstelling van een constante emissie van het tracergas gerechtvaardigd is.

7.5.1.3. Bronhoogte

Uit de geoptimaliseerde k_z en de verschillende bronhoogten van 0–H m, berekend voor de wegproeven uit Veenendaal volgt een gemiddelde bovengrens voor de bronhoogte van 2,3 m. De totale emissie wordt homogeen gemengd vooronderstelt tussen een hoogte van 0 en 2,3 m. In eerste instantie lijkt deze bovengrens vrij hoog, maar ook andere metingen langs wegen wijzen in de richting van een behoorlijke initiële verspreiding. De verspreidingsproeven van General Motors (CHOCK, 1977) hebben bij stabiele, onstabiele en neutrale omstandigheden een initiële σ_z opgeleverd van ongeveer 1,2 m. Dat wil zeggen, dat 68% van de geloosde verontreiniging in een ruimte van $2 \cdot \sigma_z$ dus 2,4 m ligt. Doordat de lozing in de regel op ongeveer 0,4 m hoogte geschiedt, wordt de bovengrens wat omlaag getrokken. HALL, SIMMONDS, e.a., (1973) hebben door middel van rookproeven in een windtunnel de verspreiding achter vrachtwagens en bussen bekeken. Daarbij bleek, dat reeds op 7,5 m achter een auto met een normale uitlaat de verontreiniging gemengd was in een zône, die zelfs iets boven de auto uitstak. De

TABEL 15. Procentuele verhouding van de berekende emissie, uitgaande van verschillende bronhoogten en afstanden van de weg.

bronhoogte in meter	afstand tot de weg 30 m meting 1 78.04.04	afstand tot de weg 120 m meting 2 78.04.04
0–0,3	64,5	104,5
0–2,3	100,0	100,0
0–4,0	106,6	92,6

maximale uitlaat concentraties lagen op 2/3 van de hoogte van de auto. Op 15 m achter de auto was de menging redelijk homogeen met een maximum weer op een hoogte van 2/3. De gevonden waarde van 2,3 m als bovengrens voor een gemiddelde verkeersstroom lijkt alleszins reëel. Om de invloed van de bovengrens van de bronhoogte op de schattingen van de bronsterkte na te gaan, werd voor een tweetal metingen een bronhoogte van 0–0,33 m; 0–2,3 m en 0–4,0 m aangenomen. De invloed van de bronhoogte op de emissieschatting is in tabel 15 gepresenteerd. De initiële menging zal zeker meer bedragen dan 0,3 m en ook onder de 4,0 m liggen, zodat met een bronhoogte van 2,3 een redelijke benadering gevonden is.

7.5.1.4. Windsnelheid

In de windsnelheidsmetingen ontstaan systematische afwijkingen, omdat cupanemometers een toename van de windsnelheid gemakkelijker volgen dan een afname, ten gevolge van traagheids-effecten, zodat er een overschatting van de werkelijke windsnelheid optreedt. BUSINGER, WIJNGAARD, e.a., (1971) schatten de invloed hiervan voor alle stabiliteitsklassen op ongeveer 10%. Een andere bron van fouten kan door fluctuaties in het verticale vlak geïntroduceerd worden, doordat een cupanemometer ook hier niet ongevoelig is. De onnauwkeurigheid bij de ijking van de cupanemometers wordt op ongeveer 6% geschat. De invloed van een verandering van de windsnelheid als invoer parameter in het model Weg met +10% of −10% staat in tabel 16.

Idealiter zou er geen invloed van een verandering in de windsnelheid op de geschatte emissie moeten zijn, omdat in het model uitgegaan wordt van de verhouding tussen de geloosde hoeveelheid tracergas en de gemeten concentraties. Door de optimalisatie van de k_z waarden, die niet onafhankelijk van de windsnelheid zijn, wordt de verspreiding bij een iets andere k_z berekend. Vandaar een verschil van gemiddeld 1,0% en 1,8% ten opzichte van de gemeten windsnelheid. De iets hogere invloed bij een afname van de windsnelheid met 10% kan ook verklaard worden uit een toename van de verblijftijd met dezelfde factor en een toename van de depositie en coagulatie verliezen, zodat een iets hogere bronschatting uit de bus valt.

TABEL 16. Procentuele verhouding van de berekende emissie bij 10% toename of afname van de windsnelheid ten opzichte van de gemeten windsnelheid.

meting nummer	datum	afstand tot de weg in meters	+10%	−10%
3	77.06.20	20	101,5	97,9
2	77.06.20	40	99,9	102,6
1	77.06.20	80	99,9	102,6
4	77.06.20	145	102,6	104,2
gemiddeld		–	101,0	101,8

TABEL 17. Procentuele verhouding van de berekende emissie bij 5% toename of afname van de lijnbronsterkte ten opzichte van de berekende lijnbronsterkte.

meting nummer	datum	afstand tot de weg in meter	toename lijnbron-sterkte + 5%	toename lijnbron-sterkte − 5%
1	77.06.20	80	103,2	96,4

7.5.1.5. Emissiesterkte

De emissie van het tracergas is van tevoren met behulp van gasmetingen geijkt. De afleesnauwkeurigheid van de flowmeter bedraagt ongeveer 2% en de nauwkeurigheid van de gebruikte flowcontrollers is 0,5%, zodat de belangrijkste invloed op de lijnbronsterkte van het tracergas gelegen is in een fout in de snelheid van de emissieauto. Tijdens iedere passage is de snelheid door de bestuurder genoteerd, zodat bij de berekening van de lijnbronsterkte hiermee rekening kan worden gehouden. De invloed van een afwijking van 5% in de lijnbronsterkte van het tracergas op de schatting van de bronsterkte staat in tabel 17.

Een verandering van de lijnbronsterkte met 5% heeft een iets geringere invloed op de bronsterkte schatting. Wanneer de lijnbronsterkte in werkelijkheid 5% hoger was geweest, geeft het huidige resultaat een onderschatting van 3,2%. Als de lijnbronsterkte van het tracergas in werkelijkheid 5% lager was geweest, geeft het aanleiding tot een overschatting van 3,6%.

7.5.1.6. Meetauto

Tijdens de metingen in Wageningen heeft de meetauto nog invloed gehad op het verspreidingspatroon. In Veenendaal was dit niet het geval, omdat er niet vanuit de meetauto gemonsterd is. Op $x = 20$ is op 4 m en 2 m hoogte SF_6 gemeten. Wanneer de meetauto op de andere meetpunten stond, was de concentratie op 2 m hoogte gemiddeld 34% hoger dan op 4 m. Als de meetauto op 20 m staat, is de concentratie op 2 m hoogte slechts 4% hoger. Wanneer de gemeten SF_6-concentratie op 20 m naast de meetauto (in verband met de storingen) *niet* meegenomen worden bij de optimalisering van de k_z waarden, blijkt, dat er geen duidelijk andere schatting van de bronsterkte optreedt (afwijking 3%). Om na te gaan of de meetauto aanleiding gaf tot een 'opstuwing' werden concentraties op 2,2 m in plaats van 3,5 m berekend en geëvalueerd. De beschrijving van de gemeten SF_6-concentraties, door uit te gaan van $z = 3,5$, was beter dan die, wanneer uitgegaan werd van 2,2 m. Zodat de conclusie is, dat er wel een verstoring plaatsvindt, maar geen duidelijke opstuwing.

7.5.1.7. Schatting ruwheidslengte

De schatting van z_0 en u_* is voor de metingen in Wageningen niet gebeurd. Daarbij is een ruwheidslengte van 0,10 m aangenomen. Deze aanname is gebaseerd op het feit, dat het veld ter weerszijden van het meetpad (zie figuur 12) begroeid was met aardappels en bieten. GOUDRIAAN (1977) geeft, TANNER en

TABEL 18. Procentuele verhouding van de berekende emissie bij een ruwheidslengte van 5 cm en 15 cm ten opzichte van de emissie bij een ruwheidslengte van 10 cm.

meting nummer	datum	afstand tot de weg in meter	ruwheidslengte z_o = 5 cm	ruwheidslengte z_o = 15 cm
3	77.06.20	20	97,0	130,6
2	77.06.20	40	96,4	138,5
1	77.06.20	80	93,0	147,1
4	77.06.20	145	83,7	185,3
gemiddeld		–	92,5	150,4

PELTON (1960) citerend, aan, dat z_o ongeveer gelijk is aan 0,13 maal de gewashoogte. REITSMA (1978) komt voor maïs op z_o = 0,11 maal de gewashoogte, zodat een ruwheidslengte van 10 cm een reële schatting lijkt. In tabel 18 staat de invloed van een andere aanname van z_o op de bronsterkte beschreven.

Een halvering van de gekozen ruwheidslengte leidt tot een onderschatting van de bronsterkte van gemiddeld 7,5%. Een verhoging van de ruwheidslengte met 50% leidt tot een overschatting van de bronsterkte met 50%. Een ruwheidslengte van 0,15 m lijkt irreëel hoog. PASQUILL (1974) geeft een waarde van 0,20 m voor coulissenlandschap. De ruwheidslengte van een aardappel – c.q. bietenveld zal hier zeker onder liggen.

7.5.2. *Aerosol gedrag*

7.5.2.1. Depositie

De depositie snelheden zijn ontleend aan de theoretische waarden, gegeven door SEHMEL en HODGSON (1976) voor een u_* van 0,20 m/s en een z_o variërend van 0,1 cm tot 1 cm. De door SEHMEL en HODGSON gepresenteerde waarden gelden voor een hoogte van 1 m. Aanpassing tot een hoogte van 0,165 m kan geschieden met behulp van een door CHAMBERLAIN (1967) gegeven formule 17 voor het berekenen van de depositiesnelheid voor hoogte z uit de depositiesnelheid op de referentiehoogte. De formule 17 geldt voor neutrale omstandigheden met als bijkomende waarde z en $z_r >> z_o$. Voor de deeltjes met diameters tussen 0,01 μm en 1,0 μm heeft deze formule géén verandering in v_d op 0,165 m hoogte opgeleverd ten opzichte van 1 m, zodat in tabel 19 de rechtstreeks van SEHMEL en HODGSON (1976) afgeleide depositiesnelheden genomen zijn.

De verschillen tussen Wageningen en Veenendaal van de in tabel 20 gepresenteerde gemiddelde depositie, berekend met het model Weg, worden veroorzaakt door de hogere depositiesnelheden van het aerosol in Wageningen. Om de invloed van de keuze van deze depositiesnelheden in tabel 19 na te gaan, werden ze met een factor 4 vergroot of verkleind en werden de nieuwe bronsterktes uitgerekend. Verhoging van de depositiesnelheid met een factor 4 leidt tot een vergroting van de totale depositie met ruwweg een factor 3 tussen de weg en 20 m en een factor 2 tussen de weg en het meetpunt op 145 m. Verlaging van de

TABEL 19. Gebruikte depositiesnelheden in cm/s bij $u_* = 0{,}2$ m/s.

datum	plaats	ruwheids-lengte cm	diameter in μm							
			0,75	0,42	0,24	0,13	0,07	0,04	0,02	0,01
77.06	Wageningen	$z_o = 10$	0,95	0,9	1,0	1,1	1,2	1,3	1,3	1,3
78.04.04	Veenendaal	$z_o = 1$	0,11	0,08	0,06	0,09	0,14	0,31	0,55	0,92
78.04.06	Veenendaal	$z_o = 0{,}1$	0,029	0,014	0,010	0,011	0,020	0,050	0,12	0,32

depositie met een factor 4 leidt tot een verkleining van de depositie met een factor 3.4 tussen 0 en 145 m en met een factor 3.7 tussen 0 en 20 m afstand tot de weg. Bij de metingen in Veenendaal heeft een vergroting of verkleining van de depositiesnelheid vrijwel geen invloed op de schatting van de bronsterkte: deze is kleiner dan 2% voor alle grootteklassen. Bij de metingen in Wageningen heeft een verhoging met een factor 4 een onderschatting van de bronsterkte met 10% op x = 20 m voor deeltjes met diameter 0,75 μm en 14% voor deeltjes met 0,01 μm diameter. Voor x = 145 m is dit respectievelijk 8% en 15%. Bij een 4 maal zo kleine depositiesnelheid is er een overschatting van de bronsterkte op x = 20 m van 3% voor deeltjes met een diameter van 0,75 μm en 4% voor deeltjes met een diameter van 0,01 μm. Voor x = 145 m wordt dit respectievelijk 5% en 12%.

Zoals SEHMEL en HODGSON (1976) aangeven, is de depositiesnelheid afhankelijk van u_* en z_o. Uit de gemeten windsnelheden op de verschillende hoogten kan, uitgaande van een logaritmisch windsnelheidsprofiel, door regressie u en z_o geschat worden.

$$\bar{u}_z = (u_*/\kappa) \cdot \ln (z/z_o) \qquad 27$$

Door regressie van de gemeten snelheid op hoogte z en de ln van de hoogte z ($\bar{u} = a + b \ln z$) volgt: $u_* = b \cdot \kappa$ en $z_o = \exp(-a/b)$ omdat deze afleiding alleen geldig is voor een neutrale atmosfeer is deze berekening slechts gebruikt om een indruk te krijgen van de orde van grootte van de u_* en z_o in verband met de theoretisch te verwachten depositiesnelheid. De in Veenendaal gemeten waarden voor u_* respectievelijk 21 ± 3 cm/s en 25 ± 2 cm/s op 4 en 6 april zijn opgevat als $u_* = 0{,}2$ m/s bij het bepalen van v_d volgens SEHMEL en HODGSON (1976). De uit de windmetingen geschatte waarden voor z_o van 0,1 tot 0,7 cm liggen in de orde

TABEL 20. Gemiddelde berekende depositie met model Weg als percentage van de emissie door het verkeer.

plaats	diameter in μm							
	0,75	0,42	0,24	0,13	0,07	0,04	0,02	0,01
Wageningen	6,4	6,3	7,2	7,4	8,9	9.8	9,9	10,5
Veenendaal	0,1	0,0	0,0	0,1	0,1	0,1	0,3	0,6

TABEL 21. Coagulatie verliezen bij metingen in Wageningen als percentage van de emissie door het verkeer.

meting nummer	datum	verblijftijd in seconden	deeltjesdiameter in µm		
			0,04	0,02	0,01
3	77.06.20	15	0,0	0,0	0,9
2	77.06.20	23	0,0	0,2	1,1
1	77.06.20	43	0,2	0,8	1,8
4	77.06.20	123	0,4	1,1	2,1

van 0,1–1 cm, die PASQUILL (1974) geeft voor zeer kort tot kort gras tot 10 cm. lengte.

7.5.2.2. Coagulatie

De invloed van de coagulatie met de parameters volgens WALTER (1973) op de deeltjesgrootteverdeling is gering. Alleen op de kleinste drie deeltjesklassen heeft de coagulatie nog enige invloed. Bij de metingen in Veenendaal is de langste verblijftijd minder dan één minuut en bij de metingen in Wageningen is de grootste verblijftijd iets meer dan 140 seconden. Ook dan is het verlies aan coagulatie minder dan 3% van de bijdrage van de weg. De fout in de schatting van de brontermen is verwaarloosbaar, en het heeft geen zin de berekeningen te herhalen met de parameters van DAVIES (1979).

7.6. DISCUSSIE

Voor de in het model Weg gebruikte parameters die het aerosolgedrag kunnen beïnvloeden zijn de in de literatuur gerapporteerde waarden genomen. Uit de evaluatie van de invloed van deze processen in 7.5.2. is gebleken, dat de depositie een geringe verlaging geeft van het totaal aantal deeltjesaantal, terwijl de coagulatie vrijwel geen invloed heeft op de emissieschatting uit de wegproeven in Wageningen. Bij de wegproeven in Veenendaal was de z_0 lager omdat het terrein begroeid was met gras in plaats van bouwland zoals in Wageningen. Deze lagere z_0 geeft aanleiding tot een lagere depositiesnelheid. Door de ongeveer twee à driemaal hogere windsnelheid in Veenendaal en de kortere verblijftijden is de invloed van de coagulatie bij de laatste serie wegproeven ook te verwaarlozen. De in figuur 13 en 14 gegeven gecorrigeerde concentraties laten voor de wegproeven in Wageningen een lichte afname zien. Door de variatie coëfficiënt in de metingen van de electrische verdelings analysator van ongeveer 15% voor deeltjes van 0,01 µm is de op theoretische gronden verwachte afname van enkele procenten bij de metingen in Veenendaal niet te zien. Bij deze metingen blijkt zelfs een stijging van het deeltjesaantal op te treden, die overigens ook te vinden was bij metingen in Wageningen met eenzelfde verblijftijd kleiner dan 50 seconden als in Veenendaal.

TABEL 22. De voorbelasting als percentage van de gemeten deeltjesconcentraties benedenwinds van de weg gemiddeld over alle afstanden.

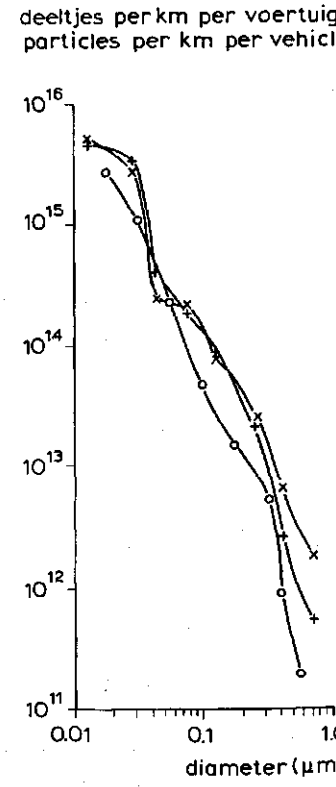
plaats	diameter in μm							
	0,75	0,42	0,24	0,13	0,07	0,04	0,02	0,01
Wageningen	92	80	72	69	60	62	38	18
Veenendaal	92	85	76	75	75	60	35	35

De grote variatie in de meetuitkomsten wordt grotendeels veroorzaakt door de onnauwkeurigheid van de meetinstrumenten (zie 5.1.) in combinatie met een hoge voorbelasting. Doordat de invloed van de weg wordt geschat uit een verschilmeting vóór en achter de weg, wordt de onbetrouwbaarheid groter naarmate de invloed van de voorbelasting groter wordt. Daarnaast kan de variatie in de meetuitkomsten ook nog geweten worden aan het feit, dat de voorbelastingsmetingen en wegmetingen niet synchroon verlopen zijn. Gezien de geringe theoretisch verwachte verliezen in tabel 20 en 21 en uit de opgetreden fluctuaties onder andere ten gevolge van de voorbelasting kan gesteld worden, dat de gevonden afname in het totaal deeltjesaantal wegvalt in de ruis. Verder kan hieruit geconcludeerd worden dat het aerosolgedrag zoals het door het model Weg beschreven wordt experimenteel geverifieerd is. Voor een verdere verificatie van met name de op grond van de literatuur verwachtte snelheden van de verwijderingsmechanismen zijn andere experimenten noodzakelijk, waarbij zowel de concentraties hoger als de verblijftijden langer dienen te zijn. Hierop wordt in hoofdstuk acht nog nader ingegaan.

De experimentele moeilijkheden met het bepalen van de deeltjesemissie van een auto op een testbank zijn al gerapporteerd, zodat voor de vergelijking van de gemeten deeltjesgrootteverdeling uit de wegproeven alleen de uit de metingen van WHITBY, CLARK, e.a., (1975) afgeleide bronschattingen zijn te gebruiken. Deze schatting is minder betrouwbaar dan de resultaten voortkomend uit de wegproeven, omdat er geen voorbelastingsmetingen van aerosol en lood en andere componenten werden uitgevoerd en omdat de verspreiding niet gemeten is. Zoals al in 6.1. is aangegeven, zal er door het gebruik van de loodconcentraties als tracer van het verkeer, een onderschatting van de bijdrage van de weg plaatsvinden, omdat de achtergrond aan lood niet bekend is, tegelijk zal bij de grotere deeltjesdiameters een overschatting van de bijdrage van de weg plaatsvinden, omdat de achtergrond aan aerosolen daarbij 80 à 90% van de gemeten concentratie uitmaakt. Tevens kan er een fout ontstaan, doordat de lijnbronsterkte van lood een theoretische schatting is. In figuur 15 staan de bronsterkte schattingen als functie voor de deeltjesdiameter uitgezet.

Het gemiddelde totaal aantal deeltjes per km per voertuig groter dan 0,01 μm is uit de proeven van WHITBY, CLARK, e.a., (1975) 4,19 E15 voor de electrische verdelings analysator. Ook dit getal ligt iets onder de getallen uit de wegproeven van 9,80 E15 en 8,56 E15 (tabel 12). De orde van grootte is echter gelijk aan die van onze proeven. De resultaten van de aerosolmetingen bij de sulfaat experi-

FIG. 15. Emissie in deeltjes/km per voertuig uit verschillende wegproeven.
Symbool literatuur:
O Whitby, Clark e.a., (1975)
× wegproeven in Wageningen
+ Wegproeven in Veenendaal



menten van General Motors geven een qua grootte orde vergelijkbaar totaal aantal (zie tabel 10). Het feit, dat met loodvrije benzine is gereden, maakt deze resultaten voor deeltjes groter dan 0,04 µm diameter niet goed vergelijkbaar met de wegproeven. Het totaal deeltjesaantal komt op 5,43 E15 per afgelegde kilometer. Zodat het totaal aantal, ondanks de katalytische naverbranding, vergelijkbaar is met de resultaten van de wegproeven.

Concluderend is aan te geven, dat de wegproeven een bronschatting hebben opgeleverd, die qua orde grootte vergelijkbaar is met eerder gerapporteerde metingen, maar die door de experimentele opzet betrouwbaarder zijn dan deze eerdere metingen.

8. TUNNELPROEVEN

8.1. INLEIDING

Zoals reeds in hoofdstuk één is uiteengezet zijn de hoge concentraties in tunnels ten gevolge van de geringe dispersie en de redelijk lange verblijftijden de aanleiding geweest om te trachten de coagulatieconstanten te schatten aan de hand van metingen van de aerosolconcentraties in een tunnel. Deze metingen kunnen tevens gebruikt worden om de emissie van het verkeer te schatten. Metingen in tunnels zijn in het verleden al vaker gebruikt om emissieschattingen uit te voeren LARSEN en KONOPINSKI (1962) hebben in de Sumner-tunnel de concentratie aan koolmonoxide, en aerosolen, bepaald. Verder hebben zij de chemische samenstelling van het aerosol onderzocht. Omdat langsventilatie in de tunnel ontbrak en het debiet van de dwarsventilatie bekend was, kon de emissie van verschillende componenten berekend worden. PIERSON en BRACKACZEK (1974), PIERSON en MCKEE (1978) en PIERSON, BRACKACZEK, e.a., (1978) hebben aan de hand van metingen in verkeerstunnels de emissie geschat van respectievelijk de banden, aerosolen gemeten als lichtstrooiïng en sulfaat door motorvoertuigen. GORDON, (1974, 1975) en ISRAEL en WHANG (1975) hebben in de Baltimore Harbor tunnel allerlei fysische en chemische componenten van het verkeersaerosol gemeten. Daar zit ook het voor dit onderzoek interessante totaal aantal deeltjes bij, dat door hen met een condensatie kernen teller gemeten is. Aangezien zij net als de eerder genoemde auteurs tevens de verdunning in hun onderzoek betrokken hebben, kon door hen een emissie gerapporteerd worden. Soms worden er metingen in tunnels gedaan vanwege het vermoeden dat door de daar aanwezige hoge concentraties gezondheidsschadelijke effecten bij de mens kunnen optreden. DUFFAUD, HEROS, e.a., (1971) hebben in een verkeerstunnel bij Parijs koolmonoxide metingen uitgevoerd. DIEMEL en GABLESKE (1973) en DIEMEL (1974) hebben de concentraties aan koolmonoxide, lood, stikstofoxiden en benzpyrenen gemeten in straten en tunnels in Keulen. GRÄFE, (1974) verrichtte in Hamburg koolmonoxide metingen in een tunnel. LAHMANN (1974) deed in Berlijn onderzoek naar verkeersemissies. De meetpunten waren gelegen in tunnels en ook in straten. HEINRICH en GÜSTEN (1978) onderzochten in Karlsruhe de concentraties aan polycylische aromatische koolwaterstoffen en aan lood. Hierbij werd onder andere in tunnels gemeten. Bij deze laatste serie onderzoeken is in tegenstelling tot de eerste serie door het ontbreken van gegevens over de verdunning in de onderzochte tunnels geen emissie van de gemeten componenten te geven.

Er zijn ook tunnelproeven uitgevoerd om de omstandigheden in de tunnel zelf te bestuderen. RUSCHENBERG (1968) bestudeerde het effect van een volledige verkeersopstopping op de concentraties. Daarbij vond hij onder andere dat er zelfs met stilstaande auto's een goede menging van de uitlaatgassen in de tunnel plaatsvond. GLERUM, COSTERIS, e.a., (1975) geven aan, dat er in het verleden

metingen zijn verricht naar de weerstandscoëfficiënt van stilstaande auto's in een tunnel. UKEGUCHI, OKAMOTO, e.a., (1977) hebben de verspreiding uit de tunnelmond van de door de auto's met de langswind meegezogen verontreiniging bestudeerd. Al deze metingen in tunnels hebben raakvlakken met het onderhavige onderzoek. Ze zijn echter op andere aspecten gericht, vandaar dat eigen tunnelmetingen noodzakelijk waren.

8.2. FYSISCHE OMSTANDIGHEDEN IN TUNNELS

De omstandigheden in een tunnel verschillen zeer sterk van die in het vrije veld. Door het langsrazende verkeer is er in de tunnel een zeer grote turbulentie. Deze heeft op zijn beurt weer invloed op de depositie, de wrijvingswindsnelheid en op de coagulatie met name door het optreden van gradiënt- en turbulente coagulatie. Om tot een schatting van deze effecten te komen moeten er enige veronderstellingen gemaakt worden. In de literatuur zijn namelijk geen formules te vinden die de juiste waarde opleveren van de invoergegevens die nodig zijn om de snelheden van de voor het onderhavige onderzoek relevante processen te kunnen schatten.

De energiedissipatie ε in cm^2/s^3 vormt een belangrijk invoergegeven bij de berekening van de verhouding tussen turbulente en brownse coagulatie met formule 13. Er bestaat een aantal formules om de energiedissipatie te berekenen. Deze formules zijn in dit geval echter niet toepasbaar. De formule voor de berekening van de energiedissipatie in de kern van een turbulente stroom door een pijp is niet te gebruiken omdat de langswindsnelheid in een tunnel een van de gevolgen is van het langsrazende verkeer en slechts een gedeelte van de opgewekte turbulentie daarin tot uiting komt. Ook de schatting van de energiedissipatie uit de snelheidsverandering van de langswind is niet goed mogelijk, hoewel het verloop van de langswind wel permanent geregistreerd is. De gebruikte propellor anemometer had namelijk een grote traagheid. Het registratieapparaat had een tijdconstante van één seconde, zodat de fluctuaties in de langswindsnelheid niet uit de geregistreerde waardes waren af te leiden.

Een schatting van de energiedissipatie is echter wel te geven door ervan uit te gaan dat deze gelijk is aan de energie die door de auto's geleverd wordt om de luchtweerstand te overwinnen. Om de berekening te vereenvoudigen wordt ervan uitgegaan dat deze energie niet in warmte wordt omgezet. Naar analogie van de drukmeting op gebouwen wordt de kracht die iedere auto op de lucht uitoefent:

$$K_A = \tfrac{1}{2} \cdot \rho \cdot v^2 \cdot V \cdot O_A \qquad 28$$

waarbij V de dimensieloze vormfactor is waarmee het geprojecteerde oppervlak O_A van een auto vermenigvuldigd moet worden om het effectieve oppervlak te krijgen. Op grond van gegevens van HOERNER (1965), STEPHENS (1975) en SCIBOR-RYLSKI (1973) valt te concluderen dat de gemiddelde waarde van de

vormfactor van een personenauto ongeveer 0,4 is. Wanneer daarbij tevens rekening wordt gehouden met de fractie vrachtauto's en bussen in de IJ-tunnel en de hogere vormfactor en het grotere oppervlak kan aangenomen worden dat het effectieve oppervlak van het door de IJ-tunnel rijdende verkeer 1,6 m^2 is. Uit het product van de kracht en de snelheid wordt de energie verkregen die per seconde geleverd wordt om de luchtweerstand te overwinnen. De energiestroom per auto is:

$$E_A = \tfrac{1}{2} \cdot \rho \cdot v^3 \cdot V \cdot O_A \qquad 29$$

Als aangenomen wordt dat de auto's elkaar regelmatig opvolgen met een frequentie f^1 $(s)^{-1}$ met een gemiddelde snelheid v m/s, in de tunnel met een lengte ℓ meter, dan bevinden zich $f^1 \cdot \ell / v$ auto's in de tunnel die samen $\tfrac{1}{2} \cdot \rho \cdot v^2 \cdot V \cdot O_A \cdot f^1 \cdot \ell$ energie overdragen. Deze energie wordt gedissipeerd in $\rho \cdot \ell \cdot O_T$ kg lucht, zodat de energiedissipatie per massa eenheid van lucht gegeven wordt door

$$E = \tfrac{1}{2} \cdot f^1 \cdot v^2 \cdot V \cdot O_A / O_T \qquad 30$$

Bij een passage van een auto per seconde met een gemiddelde snelheid van 80 kilometer per uur (22 m/s) levert formule 30 een energiedissipatie op van ongeveer 100000 cm^2/s^3. Voor meting nummer 1 tijdens het spitsuur met zo'n 4000 auto's per uur is ε ongeveer 110000 cm^2/s^3 en voor de vijfde meting met een verkeersaanbod van 150 auto's per uur is ε ongeveer 4000 cm^2/s^3. In de atmosfeer wordt op één meter hoogte een ε van ongeveer 1000 cm^2/s^3 gevonden. Dit getal wordt door FUCHS (1964) gegeven met een citaat uit werk van TUNITSKII en door FRIEDLANDER (1977) die daarbij LUMLEY en PANOFSKY citeert. Gezien de grote turbulentie die door de auto's in de tunnel wordt veroorzaakt lijken de zo berekende getallen voor de energiedissipatie in een tunnel wel reëel. Aangezien bij de berekening van de verhouding tussen turbulente en brownse coagulatie met formule 13 de wortel van de energiedissipatie genomen wordt, zullen eventuele fouten in bovenstaande schatting minder zwaar wegen. Met formule 28 is de kracht die iedere auto op de lucht uitoefent berekend, deze wordt volledig in de vorm van schuifspanning overgedragen op de tunnelwand, als aangenomen wordt dat de drukgradiënt in de tunnel ten gevolge van de verkeersstroom verwaarloosbaar is. De tunnelwand neemt dus een totale schuifspanning op van:

$$K_w = \frac{f^1 \cdot \ell}{v} \cdot K_A \rightarrow \tfrac{1}{2} \cdot f^1 \cdot \ell \cdot \rho \cdot v \cdot O_A = s \cdot \ell \cdot \eta \cdot \Gamma_0 \qquad 31$$

Hierin is s de omtrek van de tunneldoorsnede (26 m), η de viscositeit en Γ_0 de schuifspanningssnelheid $(s)^{-1}$. Dus:

$$\Gamma_0 = f^1 \cdot v \cdot V \cdot O_A / (2 \cdot s \cdot v) \qquad 32$$

Voor de meting tijdens het spitsuur wordt Γ_o ongeveer 49.000 $(s)^{-1}$ en de meting midden in de nacht met 150 auto's/uur levert een Γ_o op van 1.900 $(s)^{-1}$. Met formule 14 kan nu een schatting worden gemaakt van de verhouding tussen gradiënt en brownse coagulatie.

$$u_* = (\tau_o / \rho)^{\frac{1}{2}} = (\tfrac{1}{2} \cdot f^1 \cdot v \cdot V \cdot O_A / s)^{\frac{1}{2}} \qquad 33$$

De wrijvingswindsnelheid berekend met formule 33 varieert voor de tunnelproeven van 86 cm/s tot 17 cm/s bij het minimale verkeersaanbod van 150 auto's/uur. De berekende waardes van de fysische parameters tijdens de proeven staan in tabel 24.

Naast het geven van een schatting van de waarde van de bovengenoemde parameters als energiedissipatie, wrijvingswindsnelheid en de snelheidsgradiënt is het ook belangrijk een model te ontwikkelen dat het aerosolgedrag in de IJtunnel beschrijft. In dit model is de toestand zoals die tijdens een meetperiode van één uur is voorgekomen als een stationaire situatie beschouwd. De afname in concentratie ten gevolge van verversing, depositie en coagulatie wordt gelijk gesteld aan de toename door de emissie van het verkeer. De gemeten concentratie is een 'steady state' concentratie waarbij de toename en afname van deeltjes elkaar in evenwicht houden. In figuur 16 is een schema gegeven van het evenwichtsmodel, dat Tunnel genoemd is. Dit model is geschikt om er nasst de beschrijving van de evenwichtsconcentratie in de tunnel ook de in eerste instantie onbekende verkeersemissie aan te ontlenen. Het model werkt als volgt. Voor de acht verschillende deeltjesgrootteklassen tussen 0,01 en 1 μm wordt de afname van de concentratie ten gevolge van de onderlinge coagulatie binnen iedere klasse en de coagulatie in de respectievelijke grootteklassen met een grotere diameter achtereenvolgens uitgerekend gedurende één seconde. Tevens wordt per deeltjesklasse de depositie tegen de wand per seconde berekend. Aangezien het een stationaire situatie betreft, is de afname ten gevolge van de verversing even groot als de toename van de verkeersemissie. Daarnaast moet er voor iedere grootteklasse nog een andere factor berekend worden om de coagulatie en depositie te compenseren. Na iedere cyclus van even zovele berekeningen als de verblijftijd lang is, kan de betreffende berekende evenwichtsconcentratie gebruikt worden als invoerparameter voor een hernieuwde schatting van de factoren waarmee de verkeersemissie verhoogd moet worden om de coagulatie en depositieverliezen te compenseren. Wanneer na een n aantal cyclussen de berekende evenwichtsconcentratie en de gemeten evenwichtsconcentratie met elkaar overeenstemmen ($C_{j,t} = C_{ev}$), is een model verkregen dat op ieder tijdstip tussen de verblijftijd van nul en t seconden de evenwichtsconcentratie beschrijft. Bij de berekeningen met Tunnel bleken 17 cyclussen voldoende te zijn. De concentratie van deeltjes in een bepaalde grootteklasse die in de tunnel zou heersen wanneer er geen coagulatie en depositie zou zijn is uit het model eenvoudig af te leiden:

$$C = C_{ev} + t \cdot \sum_{j=1}^{n} (C_{ev} - C_{j,t}) / t \qquad 34$$

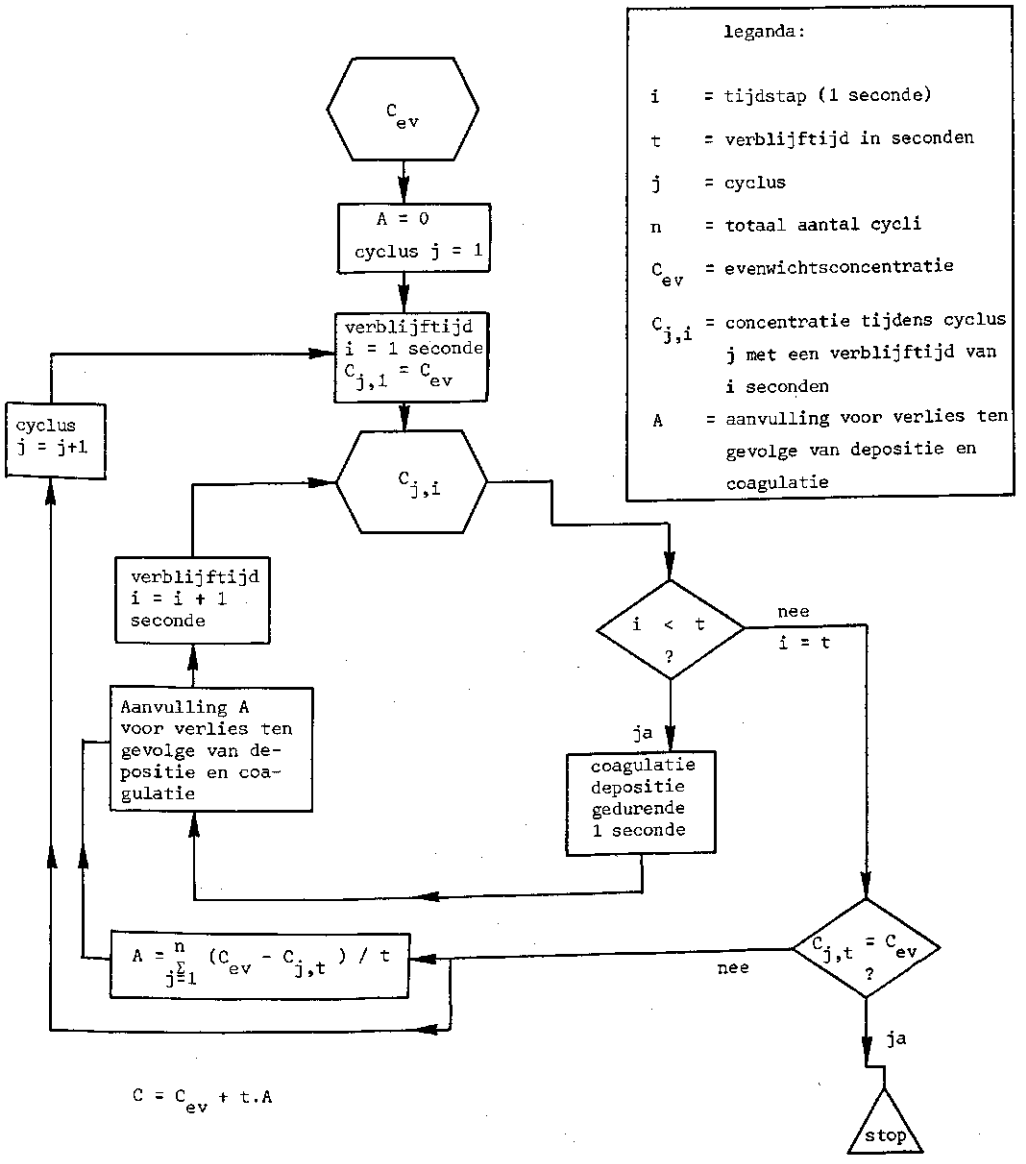


FIG. 16. Stroomschema van het model Tunnel, voor het berekenen van de voor depositie en coagulatie gecorrigeerde concentratie uit de gemeten evenwichtsconcentratie.

Door de binnenste cirkel in het model Tunnel in figuur 16 in omgekeerde richting gedurende één seconde te volgen kunnen met behulp van de emissieschattingen in hoofdstuk acht de coagulatiesnelheden of depositiesnelheden geschat worden. Dit wordt in 8.4.2.1. nog verder uitgewerkt.

8.3. Opstelling

Allereerst volgt enige informatie over de IJ-tunnel. Het is een in 1968 geopende tunnel voor snelverkeer, die het centrum van Amsterdam onder het IJ door met Amsterdam-Noord verbindt. Het noord- en zuidverkeer heeft elk de beschikking over een aparte koker zoals in figuur 17 te zien is. In iedere koker liggen twee rijstroken met een breedte van 3,5 m. De totale lengte van de tunnel is 1039 meter en het oppervlak van de dwarsdoorsnede van één koker is 38 m^2. De tunnel is uitgevoerd met een dwarsventilatiesysteem. Door de openingen naast de rijbaan – nummer 3 in figuur 17 – wordt van boven het IJ aangezogen lucht de tunnel ingeblazen, dit is de zogenaamde 'pers'. Via openingen onder het inspectiepad nummer 4 in figuur 17, wordt de lucht uit de tunnel weer afgevoerd, dit wordt ook wel 'zuig' genoemd. Wanneer de ventilatie steeds op het normale niveau draait en dit was gedurende de metingen het geval, bedraagt deze volgens de opgave van de fabrikant in sectie twee 135 m^3/s. De tunnel is namelijk ingedeeld in drie secties van 346 meter lengte. De zuidelijke sectie is één genoemd en de noordelijke drie, zodat de centrale sectie onder het IJ twee is. Er is gemeten in de oostbuis twintig meter voorbij het diepste punt in sectie twee. Voor aanvullende informatie betreffende de IJ-tunnel wordt verwezen naar Jansen en Bardet (z.j.). De gemiddelde snelheid waarmee in de tunnel gereden wordt is 80 kilometer per uur en de verkeersintensiteit varieert van 100 tot ruim 4000 voertuigen per uur. Het meetpunt is in de oostbuis gesitueerd omdat daarin tijdens het spitsuur minder verkeersopstoppingen plaatsvinden dan in de westbuis waar het verkeer soms in het centrum vastloopt. De monstername vond plaats op het bordes van het inspectiepad, dat een hoogte van 1,2 meter ten opzichte van de rijbaan heeft. De eigenlijke meetapparatuur stond in de werkkoker opgesteld (nummer 5 in

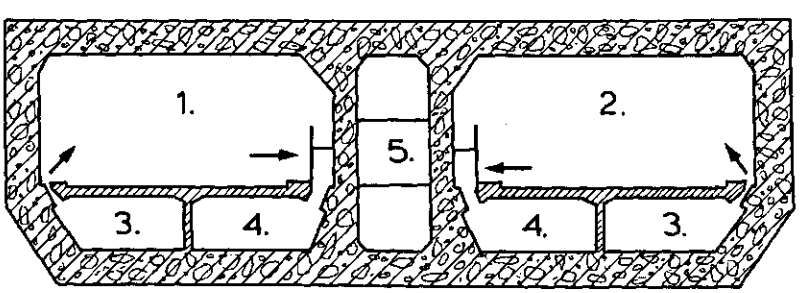


Fig. 17. Dwarsdoorsnede van de IJ-tunnel.

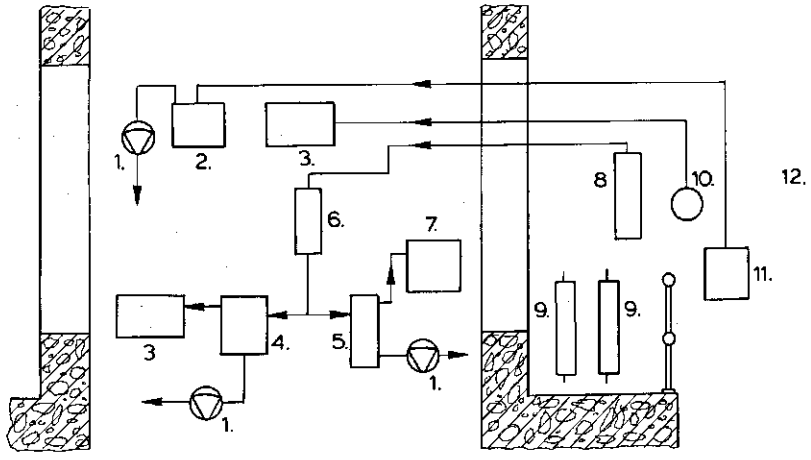


FIG. 18. Schema meetopstelling in de IJ-tunnel.

1. pomp
2. droge gasmeter
3. recorder
4. automatische condensatie kernen teller
5. elektrische verdelings analysator
6. verdunnings filter
7. data verwerkings apparatuur
8. radioactieve bron
9. gas monster flessen
10. vleugelrad anemometer
11. filterhouder
12. oostbuis ij-tunnel

figuur 17). In figuur 18 staat een schematisch overzicht van de meetopstelling in de IJ-tunnel. De gebruikte apparatuur is grotendeels dezelfde als in hoofdstuk zeven is beschreven bij de wegproeven in Veenendaal. Voorzover er sprake is van verschillen zullen deze hier genoemd worden.

De aerosolmetingen zijn simultaan verricht met een electrische verdelings analysator en een geautomatiseerde condensatie kernen teller (Gardner, serienummer 1225). Voor de meting is het aerosol vanwege de hoge concentratie in de tunnel in een bekende verhouding verdund (41,1 : 1) met een Gelman membraanfilter en een kritisch capillair op de manier zoals door WHITBY, LIU, e.a., (1972) beschreven is. Gedurende één meetcyclus van een uur zijn 27 deeltjesgroottever-delingen met de electrische verdelings analysator en 40 à 47 met de geautomatiseerde condensatie kernen teller uitgevoerd. In pers twee oost zijn met een andere condensatie kernen teller (Gardner, serienummer 1146) voorbelastingsmetingen van het totaal deeltjesaantal uitgevoerd. Verder is daarin ook de voorbelasting aan lood en zwavelhexafluoride bepaald. In de monstername flessen voor het tracergas is het dubbele capillair vervangen door één enkel om de uitstroomtijd ruim boven het uur te brengen. De windsnelheid in de tunnel is alleen in de *langsrichting* (dus met de verkeerstroom mee) gemeten met een vleugelrad anemometer (Lambrecht, 1468T/401929) met een recorderaansluiting, zodat het verloop van de windsnelheid gedurende de totale meting geregistreerd kon worden.

8.4. Resultaten

8.4.1. *Verspreiding*

De resultaten van de metingen van de relevante parameters in verband met de verspreiding in de tunnel staan vermeld in tabel 23. Uit het verband tussen de langswindsnelheid en de tracergasconcentratie is via lineaire regressie de tracergasconcentratie te schatten als de langswindsnelheid nul zou zijn. Dit blijkt een concentratie van 95 µg/m³ te zijn. Als de verversing ten gevolge van het tunnelventilatiesysteem op het meetpunt gelijk zou zijn aan de opgegeven 135 m³/s mag daarbij een tracergasconcentratie van 37 µg/m³ verwacht worden. Op grond van de schatting van een concentratie van 95 µg/m³ met alleen de tunnelventilatie is het debiet van de dwarsventilatie op het meetpunt ongeveer 53 m³/s. Door de tracergasconcentratie bij een langswind van 0,0 m/s te delen door de gemeten tracergasconcentratie wordt de ventilatiefactor verkregen. Bij grote autodichtheden tijdens de spits blijken de langsrijdende auto's te zorgen voor een bijna driemaal zo grote ventilatie op het meetpunt als de pompen van de luchtverversingsinstallatie in de IJ-tunnel. Terwijl bij 150 auto's per uur de langsventilatie slechts enkele tientallen procenten van de dwarsventilatie bedraagt. De verblijftijd die in tabel 23 wordt gepresenteerd is bepaald door de verblijftijd zonder langsventilatie van 250 seconden, namelijk het quotiënt van de inhoud van sectie twee oost van 13202 m³ en de verversing van 53 m³/s, te delen door de ventilatiefactor.

In een aantal van de in de literatuur genoemde tunnelmetingen wordt geen melding gemaakt van een door het verkeer geïndiceerde langsventilatie. Over deze langsventilatie is ook op grond van theoretische overwegingen weinig te zeggen omdat de resulterende waarde sterk afhangt van het oppervlak van de tunnel, de sterkte van de dwarsventilatie, de vorm van de in- en uitgang, de ligging van de tunnel in het landschap en nog allerlei andere factoren. Pursall en King (1976) geven aan dat de langswindsnelheid een lineaire functie is van de snelheid van het voorbijrijdende verkeer. Ukeguchi, Okamoto, e.a., (1977) geven een gemiddelde langswindsnelheid in drie tunnels van 5,8 m/s. Aangezien de dwarsventilatie een belemmering vormt voor het volledig tot ontwikkeling komen van de langswind hoeven de lagere gemeten langswindsnelheden in de IJ-

Tabel 23. Parameters die verband houden met de verspreiding in de IJ-tunnel.

meting nummer	aanvangs-tijdstip meting	verkeers-aanbod auto's/uur	concentr. tracergas µg/m³	langswind snelheid m/s	ventilatie factor	gemiddelde verblijftijd s
1	17.00	3948	24,76	3,12	3,84	65
2	19.00	1600	28,14	2,65	3,38	74
3	0.00	890	49,87	2,05	1,91	131
4	2.00	473	55,67	1,46	1,71	146
5	4.00	149	75,40	0,82	1,26	198
6	6.00	191	70,78	1,23	1,34	186

tunnel geen verbazing te wekken. Door ISRAEL en WHANG (1975) wordt geschat dat de langswind een extra ventilatie geeft van ongeveer 20%. Dit lijkt gezien de waardes van de ventilatiefactor in tabel 23 aan de lage kant. Hierop wordt in 8.5. nog ingegaan.

Een andere bevestiging van de grootteorde van de gevonden ventilatiefactoren is te vinden uit eerdere loodmetingen in de IJ-tunnel (DE HARTOG, 1978). Bij een toename van het totaal aantal auto's met ongeveer een factor 20 nam de loodconcentratie slechts met een factor 3 à 4 toe. Tijdens de spitsuren zijn de loodconcentraties door de grote langsventilatie duidelijk onderschat. Wanneer rekening gehouden wordt met een ventilatiefactor van 3,8 tijdens de spits, dan geeft een verhoging van het totaal aantal auto's met een factor 20 een verhoging van de loodconcentratie met een factor 12 à 16. Doordat geen simultane voorbelastingsmetingen zijn gedaan door DE HARTOG (1978) valt deze factor lager uit dan 20. Tijdens beide metingen in het onderhavige onderzoek, waarin het verkeersaanbod lager was dan 200 auto's/uur was de voorbelasting 18% en 51% van de gemeten loodconcentratie in de tunnel. Als ook met een dergelijke fractie voorbelasting rekening wordt gehouden, geeft een verhoging van het aantal auto's met een factor 20 een vergroting van de loodconcentratie met een factor 16 à 30. Door rekening te houden met de ventilatiefactor ontstaat een reëlere beschrijving van de situatie in de IJ-tunnel. Als conclusie kan gesteld worden dat de langswind, veroorzaakt door het langsrazende verkeer een niet te verwaarlozen invloed heeft op de concentraties in de tunnel.

8.4.2. *Aerosolen*

De deeltjesgrootteverdelingen die in de IJ-tunnel gemeten zijn (bijlage 10) vormen zoals reeds eerder is uiteengezet een evenwichtsconcentratie. Bij de beschouwing van dit evenwicht zijn verschillende fysische processen van belang die in 8.2. reeds aan de orde zijn geweest. De met formules 32, 34 en 35 berekende parameters voor de omstandigheden waaronder de tunnelproeven gedaan zijn, staan in tabel 24.

8.4.2.1. Schatting snelheid van coagulatie

Wanneer de emissies in aantallen deeltjes per afgelegde kilometer, tabel 12 uit

TABEL 24. Berekende parameters van de fysische omstandigheden tijdens de tunnelproeven.

meting nummer	verkeersaanbod auto's/uur	energiedissipatie ε cm^2/s^3	wrijvingswindsnelheid u_* cm/s	snelheidsgradiënt aan de wand Γ_o $(s)^{-1}$
1	3948	111700	86	49500
2	1600	45300	55	20100
3	890	25200	41	11200
4	473	13400	30	5900
5	149	4200	17	1900
6	191	5400	19	2400

hoofdstuk zeven, gebruikt worden als invoergegeven kan uit de gemeten evenwichtsconcentratie in de tunnel de snelheid van de verwijderingsprocessen geschat worden. Voor de berekening van de coagulatieconstante is het noodzakelijk uit de emissie de concentratie te berekenen die er in de IJ-tunnel onder de gegeven omstandigheden zou heersen wanneer geen van de verwijderingsmechanismen behalve de dispersie actief zijn. Uit het verschil tussen deze concentratie en de evenwichtsconcentratie kan gehaald worden hoeveel deeltjes en in welke grootteklassen per seconde verloren gaan ten gevolge van depositie en coagulatie. Als het verlies door depositie bekend is kan uit het verlies ten gevolge van coagulatie de grootte van de coagulatieconstante per deeltjesklasse berekend worden. De verhouding van de coagulatieconstanten van deeltjes uit één bepaalde grootteklasse met de andere grotere deeltjesklassen moet voor deze berekening bekend zijn. Afhankelijk van de schatting van de coagulatieconstante volgens de theorie van Davies of van Fuchs zijn deze verhoudingen gelijk genomen aan de berekende verhouding met formule 12 of 10. Uit de berekening komt dus de coagulatieconstante tussen deeltjes binnen één grootteklasse als resultaat te voorschijn. Voor de deeltjes in alle acht grootteklassen tussen 0,01 en 1 μm wordt deze onderlinge coagulatieconstante uitgerekend onafhankelijk van de waarde van de coagulatieconstante van andere deeltjes. Hierdoor kan het verband tussen oplopende Knudsengetallen (afnemende diameters) en toenemende coagulatieconstanten door de fluctuaties in de meetresultaten minder duidelijk worden.

Bij de bovenbeschreven berekening zijn zowel de depositie als de coagulatie van belang. Aangezien deze beiden in wezen onbekende parameters zijn, kan slechts één van beide berekend worden als er voor de andere een theoretisch verwachtte waarde wordt aangenomen. Uit de in tabel 29 gepresenteerde berekeningen met het model tunnel blijkt dat de coagulatie een grotere invloed heeft op de afname in deeltjesaantallen kleiner dan 0,1 μm dan de depositie zodat de coagulatie het beste uit de metingen geschat kan worden. Een tweede reden om met name te trachten de coagulatieconstante te berekenen is de discussie die vrij recent op gang gekomen is over de juiste waarde van deze grootheid, terwijl de depositie van deeltjes van 0,01 tot 0,1 μm uit een turbulente stroming onder invloed van diffusie theoretisch minder omstreden is. Met behulp van de formules van DAVIES (1966) en op de manier zoals in 2.6.3. beschreven is, zijn de

TABEL 25. Theoretisch verwachte depositiesnelheden in cm/s in de IJ-tunnel.

diameter in μm meting nr.	0,750	0,422	0,237	0,133	0,075	0,042	0,024	0,013
1	0,01	0,02	0,03	0,04	0,07	0,14	0,30	0,65
2	0,01	0,01	0,02	0,02	0,04	0,09	0,19	0,41
3	0,00	0,01	0,01	0,02	0,03	0,06	0,12	0,27
4	0,00	0,00	0,01	0,01	0,02	0,04	0,08	0,16
5	0,00	0,00	0,00	0,01	0,01	0,02	0,05	0,11
6	0,00	0,00	0,00	0,01	0,01	0,03	0,05	0,12

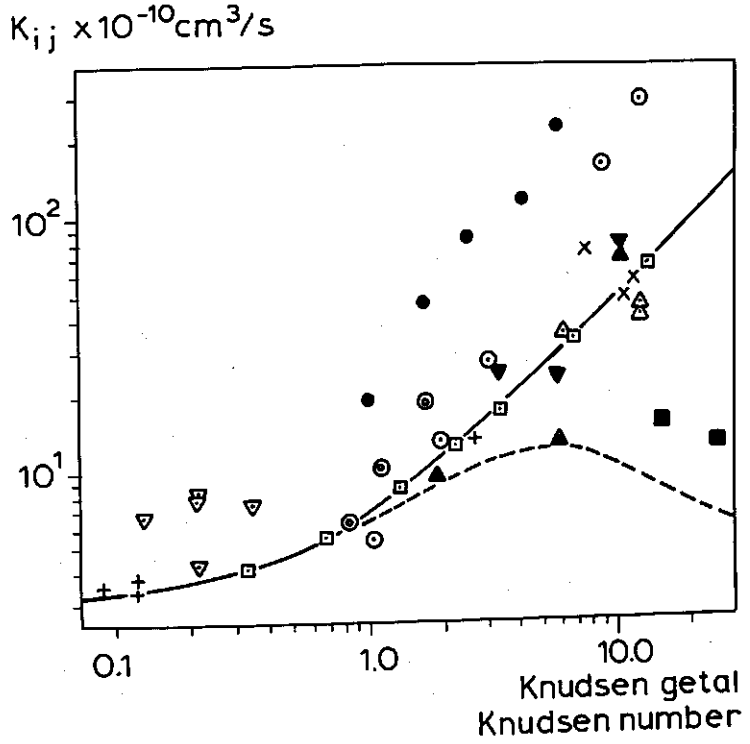


FIG. 19. De coagulatieconstante in cm^3/s uitgezet tegen het Knudsengetal. (quotiënt van vrijeweglengte en straal). Figuur ontleend Davies (1979).
——— coagulatiesnelheid met formule 11 (Davies)
- - - - - coagulatiesnelheid met formule 9 (Fuchs)
△ Rooker en Davies (1979)
× Mercer en Tillery (1971)
+ Devir (1963)
□ Nolan en Kennan (1949)
◎ Wagner en Kerker (1977)
⊙ Chatterjee, Kerker en Cooke (1975)
● Quon (1964)
▽ Gillespie en Langstroth (1951, 1952)
■ Fuchs en Sutugin (1965)
▲ Coagulatiesnelheid in IJ-tunnel berekend met emissie Wageningen
▼ Coagulatiesnelheid in IJ-tunnel berekend met emissie veenendaal

theoretisch verwachte depositiesnelheden berekend die bij de schatting van de coagulatieconstante gebruikt zijn. De theoretisch minder nauwkeurig te beschrijven depositie onder invloed van impactie, traagheid en sedimentatie voor de deeltjes van 0,1 tot 1 μm heeft op de berekening van de coagulatieconstante van de deeltjes kleiner dan 0,1 μm geen invloed.

Aan de hand van de gegevens uit tabel 25 kan de coagulatieconstante berekend worden voor de verschillende metingen in de IJ-tunnel. Gezien de onzekerheid in

de emissiegegevens en fluctuaties in de gemeten concentraties is het mogelijk dat bij sommige metingen voor enkele grootteklassen een negatieve snelheid van coagulatie gevonden worden, dus een toename van de deeltjesaantallen door coagulatie. Dit is fysisch gezien niet bestaanbaar. Deze uitkomsten worden bij de verdere bewerking niet meegenomen doordat per grootteklasse de geometrisch gemiddelde coagulatiesnelheid voor de zes verschillende metingen in de tunnel uitgerekend worden. Verder wordt alleen de coagulatiesnelheid van de deeltjes kleiner dan 0,1 μm gegeven, aangezien de grotere deeltjes zelfs onder de vrij extreme omstandigheden in de tunnel volgens de theorie nog vrijwel geen onderlinge coagulatie vertonen.

In figuur 19 staan de berekende coagulatieconstanten uitgezet in een figuur die ontleend is aan DAVIES (1979). Hierin zijn bovendien de coagulatieconstanten uitgezet zoals die door een groot aantal onderzoekers gemeten zijn. Uit figuur 19 blijkt dat de gevonden snelheden van coagulatie in een vat van bijna 40000 m^3 met een verkeersaanbod tot 4000 auto's per uur redelijk binnen de marge liggen van de snelheden die door andere onderzoekers onder meer gecontroleerde laboratoriumomstandigheden gemeten zijn. Zij liggen met één uitzondering ook in de buurt van het door DAVIES (1979) afgeleide verband tussen de coagulatieconstante en het Knudsengetal.

TABEL 26. Het geometrische gemiddelde van de coagulatieconstante in cm^3/s berekend met behulp van de in hoofdstuk 7 geschatte emissie bij verschillende depositiesnelheden. Het getal tussen haakjes is het percentage van de theoretisch verwachte coagulatieconstante volgens Davies (1979), formule 11.

diameter in μm	coagulatieconstante volgens Davies	Bij de berekening gebruikte depositiesnelheid in cm/s			
		0,0	0,25 × waarde tabel 25	1 × waarde tabel 25	4 × waarde tabel 25
		Emissie van metingen in Wageningen			
0,0133	50,0 E-10	76,6 E-10 (153%)	74,7 E-10 (149%)	69,3 E-10 (139%)	45,0 E-10 (90%)
0,0237	28,9 E-10	17,7 E-10 (61%)	16,4 E-10 (57%)	12,1 E-10 (42%)	3,2 E-10 (11%)
0,0422	17,1 E-10	– (–)	– (–)	– (–)	– (–)
0,0750	10,5 E-10	22,7 E-10 (215%)	19,8 E-10 (188%)	9,6 E-10 (91%)	0,5 E-10 (5%)
		Emissie van metingen in Veenendaal			
0,0133	50,0 E-10	84,6 E-10 (169%)	82,8 E-10 (166%)	54,3 E-0 (155%)	77,4 E-10 (109%)
0,0237	28,9 E-10	27,4 E-10 (95%)	26,1 E-10 (90%)	12,0 E-10 (70%)	22,3 E-10 (42%)
0,0422	17,1 E-10	43,8 E-10 (256%)	40,1 E-10 (235%)	25,7 E-10 (140%)	23,9 E-10 (150%)
0,0750	10,5 E-10	– (–)	– (–)	– (–)	– (–)

TABEL 27. Invloed van een verandering met 10% van de gebruikte emissieschattingen op het geometrisch gemiddelde van de coagulatieconstante. De coagulatieconstante is weergegeven als percentage van de geometrisch gemiddelde coagulatieconstante, berekend met de emissies uit hoofdstuk zeven, in Wageningen en Veenendaal.

diameter in μm	0,133	0,075	0,042	0,024	0,013
emissie + 10%	132,4	–	142,3	136,2	116,1
emissie – 10%	57,9	–	56,5	62,5	83,9

Uit tabel 26 blijkt dat de schatting van de coagulatieconstante van deeltjes van 0,01 μm en ook nog wel van 0,02 μm redelijk onafhankelijk is van de keuze van de depositiesnelheden. De coagulatieconstanten van deeltjes van 0,04 μm en 0,075 μm zijn sterker afhankelijk van de keuze van de depositiesnelheden. Dit is ook wel verklaarbaar, want naarmate de deeltjes groter worden en de afname van de concentratie voor een groter gedeelte door depositie bepaald wordt in plaats van door coagulatie, wordt de schatting van de coagulatieconstante onbetrouwbaarder. Voor deeltjes van 0,13 μm is de gemiddelde afname ten gevolge van alleen de coagulatie 0,4%. De depositie zorgt voor een afname met 1,4%. De afname in de concentraties ten gevolge van de coagulatie is hier dusdanig gering, dat voor deze en voor grotere deeltjes geen coagulatieschattingen meer uitgevoerd kunnen worden, aangezien de fout in de emissieschatting vele malen groter is dan de afname ten gevolge van de coagulatie.

Ook uit tabel 27 blijkt dat aan de schatting van de coagulatiesnelheid van deeltjes van 0,01 μm het meeste gewicht kan worden toegekend, omdat ze het minst door een verandering in de waarde van de emissie beïnvloed worden.

8.4.2.2. Schatting van de emissie in de IJ-tunnel

Wanneer het verlies aan deeltjes ten gevolge van depositie en coagulatie beschreven wordt op grond van hun theoretisch verwachte verwijderingssnelheden, kan met het in 8.2. beschreven model Tunnel de emissie aan deeltjes per afgelegde kilometer per auto berekend worden. Bij deze berekening is de waarde van de depositiesnelheden uit tabel 25 en de coagulatiesnelheid met formule 12 ingevoerd. De verkregen emissie wordt in tabel 28 gegeven.

In de tweede kolom van tabel 28 staat de berekende emissie wanneer geen rekening wordt gehouden met de in de tunnel optredende verliezen ten gevolge van depositie en coagulatie. In de vierde kolom wordt de emissie gegeven wanneer gecorrigeerd wordt voor de redelijkerwijs te verwachten depositie- en coagulatieverliezen met behulp van het model Tunnel. De hier gepresenteerde emissieschattingen wijken iets af van de eerder gepresenteerde (BURINGH, 1978, 1979) omdat in het model Tunnel de coagulatieconstanten van WALTER (1973) in plaats van die van DAVIES (1979) zijn ingevoerd.

In tabel 29 wordt een overzicht gegeven van de invloed van de verschillende verwijderingsmechanismen op de geschatte emissie. Daaruit blijkt dat zowel coagulatie als depositie pas een rol gaan spelen van enige betekenis bij deeltjes

TABEL 28. De gemiddelde emissie in deeltjes per afgelegde kilometer per auto en de variatiecoëfficiënt.

diameter in µm	zonder rekening te houden met depositie en coagulatie		met correctie voor depositie- en coagulatieverliezen met model Tunnel	
	gemiddelde	variatie-coëfficiënt	gemiddelde coëfficiënt	variatie-
0,750	3,90 E11	39%	3,90 E11	39%
0,422	1,83 E12	35%	1,83 E12	35%
0,237	1,06 E13	29%	1,07 E13	28%
0,133	5,64 E13	22%	5,73 E13	21%
0,075	2,43 E14	23%	2,53 E14	22%
0,042	3,93 E14	22%	4,44 E14	21%
0,024	2,20 E15	21%	3,75 E15	19%
0,013	1,60 E15	52%	4,47 E15	49%
N-totaal	4,52 E15	31%	8,99 E15	32%

van 0,13 µm en kleiner. Bij de kleinste deeltjesfractie zijn de coagulatieverliezen dusdanig groot dat de invloed van de depositie als verwijderingsmechanisme gering geworden is. Deze tabel vormt een indirecte bevestiging van de in 8.4.2.1. gemaakte opmerking dat de juistheid van de bepaling van de coagulatieconstante groter is naarmate de diameter van de deeltjes afneemt. Een andere conclusie die uit tabel 29 te trekken valt is dat de vergroting van de coagulatieconstante ten gevolge van de turbulente en gradiënt coagulatie onder de gemeten omstandigheden in de IJ-tunnel vrijwel geen betekenis hebben. Deze processen hebben slechts

TABEL 29. Het gemiddelde van de berekende emissie onder bepaalde omstandigheden weergegeven als percentage van de emissie van de betreffende grootteklasse zonder correctie voor depositieverliezen en coagulatieverliezen met het model Tunnel.

diameter in µm	zonder correcties	alleen correctie depositie-verliezen*	alleen correctie coagulatie volgens Fuchs	correctie depositie én coagulatie volgens Fuchs*	alleen correctie coagulatie volgens Davies	correctie depositie én coagulatie volgens Davies*
0,750	100,0	100,0	100,0	100,0	100,0	100,0
0,422	100,0	100,0	100,0	100,0	100,0	100,0
0,237	100,0	100,0	100,0	100,0	100,0	100,0
0,133	100,0	101,4	100,4	101,8	100,4	101,8
0,075	100,0	102,1	101,6	103,7	102,1	104,1
0,042	100,0	104,6	104,8	109,4	108,4	112,9
0,024	100,0	106,8	122,2	131,7	160,2	169,7
0,013	100,0	118,8	141,9	160,6	259,4	279,4
N-totaal	100,0	111,8	126,2	138,1	187,4	199,6

*depositiesnelheid uit tabel 25.

TABEL 30. De invloed van de verblijftijd op de berekende emissie. Het gemiddelde van de berekende emissie bij de betreffende verblijftijd is weergegeven als percentage van de emissie van de betreffende grootteklasse bij de gemiddelde verblijftijd. Coagulatieconstante van Davies, depositiesnelheid uit tabel 25.

diameter in µm	gemiddelde verblijftijd minus standaardafwijking	gemiddelde verblijftijd	gemiddelde verblijftijd plus standaardafwijking
0,750	100,0	100,0	100,0
0,422	100,0	100,0	100,0
0,237	100,0	100,0	100,0
0,133	100,0	100,0	100,2
0,075	100,0	100,0	100,4
0,042	99,3	100,0	100,4
0,024	98,1	100,0	102,1
0,013	97,3	100,0	103,1
N-totaal	97,8	100,0	102,3

invloed op de coagulatie van deeltjes groter dan 0,1 µm zoals ook in figuur 5 en 6 te zien is. Voor deze deeltjes is de coagulatie als verwijderingsmechanisme op de emissieschatting echter dusdanig gering, dat verwaarlozing van de turbulente en gradiënt coagulatie daarop geen invloed zal hebben.

De invloed van de verblijftijd op de emissieschattingen kan met het model Tunnel ook nog geëvalueerd worden. De schatting van tracergasconcentratie zonder langswind is een belangrijk invoergegeven voor de verblijftijd. Door de standaardafwijking van de schatting van deze tracergasconcentratie in de berekening van de verblijftijd te betrekken is ook de spreiding in de verblijftijd aan te geven. De invloed van de spreiding op de emissie is te zien in tabel 30.

De invloed van de spreiding in de verblijftijd op de berekende emissie is gering te noemen. Voor de kleinste deeltjesklasse bedraagt deze ongeveer 3%. Hieruit kan geconcludeerd worden dat eventuele fouten in de bepaling van de verblijftijd weinig invloed gehad zullen hebben op de uiteindelijke emissieberekeningen.

8.4.3. *Lood*

In tabel 31 is de loodemissie in mg/km per auto weergegeven zoals die uit gemeten loodconcentraties en het geschatte percentage op benzine rijdende auto's is af te leiden.

Zoals in hoofdstuk zeven al is uiteengezet, ligt de loodemissie voor auto's met een kruissnelheid van 72 kilometer per uur op 6,7 mg/km per auto en met een

TABEL 31. Berekende loodemissie in IJ-tunnel in mg/km per auto.

meting nummer	1	2	3	4	5	6	gemiddeld	variatie coëfficiënt
zonder correctie voor dispersie	1,25	–	5,47	5,54	5,65	5,31	4,64	41%
met correctie voor dispersie	4,79	–	10,45	9,47	7,12	8,90	8,15	27%

kruissnelheid van 97 kilometer per uur op 11,7 mg/km per auto. Uit tabel 31 blijkt, dat de geschatte loodemissie heel redelijk overeenkomt met de verwachte. Hieruit kunnen twee conclusies getrokken worden. De simulatie van de verspreiding van aerosolen met het tracergas zwavelhexafluoride is goed gelukt. Als tweede conclusie kan gesteld worden, dat de omstandigheden onder in de IJ-tunnel nog redelijk goed overeenkomen met die op een vlakke weg.

8.5. Discussie

De vergelijking van de resultaten van de emissieberekeningen in de IJ-tunnel en die van de wegproeven zal in 9.1. aan de orde komen. Nu worden de in 8.4.2.2. berekende emissies vergeleken met uit de literatuur bekende. Whang en Israel (1974) geven in Gordon (1974) de verversing van de tunnel waar zij de metingen hebben uitgevoerd en de verhoging van de concentraties door het verkeer. Hieruit kan de emissie berekend worden als 8,1 E13 deeltjes per afgelegde kilometer. Whang en Israel (1975) geven in Gordon, (1975) een verhouding van de gemeten massa concentratie in g/m^3 en de deeltjes concentratie in aantallen/m^3, die het dubbele is van de verhouding, die de auteurs voor dezelfde metingen in 1974 geven. Uit de door de auteurs gegeven emissie van de totale massa in g/km kan de emissie aan condensatiekernen in 1975 op 4,2 E14 per afgelegde kilometer per auto berekend worden. Dit is duidelijk lager dan de in het onderhavige onderzoek gemeten 4,5 E15 en de berekende 9,0 E15 per afgelegde kilometer per auto (zie tabel 28). Aangezien de metingen van Whang en Israel met een condensatiekernenteller zijn verricht, en die in het onderhavige onderzoek met een electrische verdelings analysator mag het totaal aantal deeltjes een factor 2 à 3 verschillen. Zelfs met deze factoren blijft de meting van Whang en Israel lager uitkomen. Een verklaring voor deze discrepantie kan liggen in het feit, dat bij hun experimenten de langswind waarschijnlijk ook een rol heeft gespeeld. Beide genoemde auteurs schatten de invloed van de langsventilatie op 20% van de dwarsventilatie. Aangezien de dwarsventilatie in de Baltimore Harbor tunnel kleiner is dan in de IJ-tunnel, namelijk 3,4E5 m^3/km·uur tegen 1,5E6 m^3/km·uur, is de weerstand tegen het ontstaan van de langsventilatie geringer dan in de IJ-tunnel. Gezien de invloed van de langsventilatie in de IJ-tunnel lijkt de schatting van 20% te laag.

Uit de metingen van Larsen en Konopinski (1962) in de Sumner tunnel blijkt, dat 21% van het lood uit de benzine geëmitteerd wordt bij een kruissnelheid van 50 km/uur. Ter Haar, Lenane, e.a., (1972) komt op een emissie van 12% bij 40 km/uur en 18% bij 72 km/uur. De emissie aan lood in de Sumner tunnel is duidelijk hoger. Dit is ook te verklaren uit het feit, dat in deze tunnel het verkeer op elk van beide rijbanen een andere richting uitrijdt. De gevonden emissie wordt dus voor de helft veroorzaakt door verkeer, dat afdaalt en voor de andere helft door verkeer, dat een zwaardere belasting van de motor vergt vanwege de helling van 4%. Zoals Ter Haar, Lenane, e.a., (1972) aangeven kan de emissie dan factoren groter zijn.

Hoewel uit de loodmetingen reeds geconcludeerd kan worden, dat de omstandigheden op het meetpunt in de IJ-tunnel redelijk overeenkomen met de situatie op een vlakke weg kan uit de metingen van ISRAEL en WHANG (1975) geconcludeerd worden, dat de emissies aan condensatiekernen relatief ongevoelig zijn voor de belasting van de motor. Deze ongevoeligheid van de emissie van condensatiekernen blijkt bijvoorbeeld uit een toename van 20% ten opzichte van het gemiddelde niveau op het laatste stijgende stuk van de tunnel. De emissie aan stikstofoxiden, die sterk afhankelijk is van de belasting van de motor, vertoont op het stijgende stuk van de tunnel een toename met 100%. Op grond van bovenstaande overwegingen kan besloten worden, dat de gevonden emissieschatting van submicrone deeltjes voor metingen in een tunnel representatief is voor die op een vlakke weg door het open veld.

Doordat het technisch niet mogelijk was om in de IJ-tunnel simultaan voorbelastingsmetingen met een electrische verdelings analysator uit te voeren, zullen de berekende emissies van deeltjes in de buurt van 1 μm, enigszins overschat worden. Aangezien dit effect moeilijk te kwantificeren is, moet het bij deze opmerking blijven. Voor de deeltjes van 0,01 μm tot 0,04 μm is de voorbelastingsconcentratie tussen de 3% en 7% van de in de tunnel gemeten concentratie, zoals uit de metingen met de condensatiekernentellers viel op te maken. De overschatting van de emissie tengevolge van het ontbreken van voorbelastingsmetingen voor deeltjes met dergelijke diameters ligt in dezelfde grootte orde.

Tijdens de berekeningen met het model Tunnel wordt een fout gemaakt van 3,9% in de schatting van het aerosol-volume. Dit komt omdat het rekentechnisch ingewikkeld was om ook rekening te houden met het volume van de door coagulatie verloren deeltjes. In werkelijkheid verandert de aerosolmassa tijdens een proces van coagulatie niet.

9. DISCUSSIE

9.1. Emissie van submicrone aerosolen door verkeer

In tabel 32 is een overzicht gegeven van de emissie, zoals die uit de weg- en tunnelproeven berekend zijn. Er wordt verwezen naar de hoofdstukken zeven en acht voor een nadere uitwerking van deze berekening. Uit tabel 32 valt te concluderen, dat de onder verschillende omstandigheden bepaalde emissies heel redelijk met elkaar overeenstemmen. Behalve voor een aantal grotere deeltjesklassen in de buurt van 1 μm liggen de verschillende schattingen binnen een factor twee. In tabel 32 is ook te zien, dat de variatiecoëfficiënt bij de wegproeven veel groter is – tot een factor zes – dan bij de tunnelproeven. Een van de verklaringen daarvoor is, dat de voorbelasting bij de wegproeven een veel grotere rol heeft gespeeld. Uit tabel 22 blijkt, dat deze voor de wegproeven bij de deeltjes van 0,1 μm en groter varieerde van 70% tot 93% van de gemeten concentratie, zodat de emissie berekend is uit slechts 30% tot 7% van de gemeten deeltjesaantallen. Ondanks het feit, dat iedere meting het gemiddelde is van zes metingen van de deeltjesgrootteverdeling kan de variatiecoëfficiënt oplopen tot 10% van de gemeten concentratie met voorbelasting. Hierdoor ontstaat een grote fluctuatie in de geschatte emissies en hoeft een variatiecoëfficiënt boven 100% geen verbazing te wekken. Gezien het feit, dat de concentraties, die tijdens de wegproeven gemeten zijn, eigenlijk alleen te gebruiken zijn als basis voor de emissieschattingen, omdat de snelheden van de verwijderingsprocessen te gering zijn om een meetbare invloed te hebben, zouden de wegproeven meer op een emissiebepaling gericht moeten zijn geweest. In deze opzet zou het voor de hand hebben

Tabel 32. Verkeersemissies in deeltjes per afgelegde kilometer per voertuig, en de variatie coëfficiënt in procenten.

diameter in μm	0,75	0,42	0,24	0,13	0,07	0,04	0,02	0,01	N-totaal
emissies									
wegproeven Wageningen	17,9 E11	6,54 E12	2,53 E13	7,78 E13	2,15 E14	2,30 E14	2,85 E15	5,17 E15	8,56 E15
wegproeven Veenendaal	5,79 E11	2,75 E12	2,22 E13	8,83 E13	1,89 E14	4,41 E14	3,51 E15	5,55 E15	9,80 E15
tunnelproeven	3,90 E11	1,83 E12	1,07 E13	5,73 E13	2,53 E14	4,44 E14	3,75 E15	4,47 E15	8,99 E15
variatie coëfficiënt									
wegproeven Wageningen	80	93	96	115	81	96	55	64	52
wegproeven Veenendaal	168	171	135	126	98	95	65	92	55
tunnelproeven	39	35	28	21	22	21	19	49	32

gelegen om alleen vlak bij de weg metingen uit te voeren. De invloed van de voorbelasting zou dan zo klein mogelijk geweest zijn en daarmee zou de variatiecoëfficiënt van de emissieschattingen uit de wegproeven waarschijnlijk kleiner geweest zijn. De voorbelasting in de IJ-tunnel is door de hogere concentraties in de tunnel relatief veel lager dan langs de weg. Zoals in 8.5. is aangegeven, wordt in de IJ-tunnel de emissie van met name de grotere deeltjes weliswaar enigszins overschat door het ontbreken van voorbelastingsmetingen. Een andere factor, die invloed op de variatiecoëfficiënt gehad kan hebben, is het feit, dat de IJ-tunnel metingen op zich het geometrisch gemiddelde zijn van 27 metingen van de deeltjesgrootteverdeling, terwijl de metingen van de wegproeven gebaseerd zijn op zes of negen metingen. Hierdoor zal een deel van de fluctuaties in de tunnel meer uitgemiddeld worden dan langs de weg.

Op grond van bovenstaande opmerkingen kan gesteld worden, dat als emissieschatting voor de deeltjes groter dan 0,1 μm het beste de uit de tunnelproeven berekende emissies gebruikt kunnen worden. De fluctuatie in de schatting van de emissie van kleinere deeltjes met behulp van de wegproeven is kleiner, zodat voor de schatting van de emissie van deeltjes kleiner dan 0,1 μm zowel de metingen van de wegproeven als de tunnelproeven gebruikt worden. De resulterende emissie staat in tabel 33. De variatie coëfficiënt loopt op van 20% voor de grotere deeltjes tot 70% voor de deeltjes van 0,01 μm.

Zoals reeds is aangegeven in tabel 10 en figuur 15 zijn de uit dit onderzoek resulterende emissies, en ook die uit tabel 33, redelijk vergelijkbaar met de emissies die uit de metingen van WHITBY, CLARK, e.a., (1975) berekend kunnen worden. Uit tabel 10 is te zien dat er geen overeenstemming is met emissiemetingen aan auto's op een testbank. Reeds eerder is uiteengezet welke fysische processen een rol spelen bij de meting van de deeltjesgrootteverdeling van de aerosol emissie aan een auto en dat deze processen moeilijk kwantificeerbaar zijn. De moeilijke meting van aerosolen direct aan de bron staat in tegenstelling tot de meting van gasvormige componenten zoals bijvoorbeeld koolmonoxide, waarvan de emissie aan de bron relatief gemakkelijk en ook correct bepaald kan worden. Wanneer men uit emissiemetingen aan de bron de emissie van een verkeersstroom af wil leiden, is een grote steekproef met een juiste stratificatie van belang. De voertuigen waaraan de emissie gemeten wordt, moeten representatief zijn voor het totale wagenpark, qua type en grootte van de auto's, qua afstelling en onderhoud van de motor en qua hoeveelheid reeds verreden kilometers. Een emissieschatting van een wagenpark op grond van metingen aan een testbank is dan ook niet eenvoudiger dan een aantal metingen langs een weg, waaruit de emissie berekend kan worden. Een bijkomend voordeel van de

TABEL 33. Geschatte verkeersemissie in deeltjes per afgelegde kilometer per voertuig.

diameter in μm	0,75	0,42	0,24	0,13	0,07	0,04	0,02	0,01	N-totaal
	3,9 E11	1,8 E12	1,1 E13	5,7 E13	2,2 E14	3,7 E14	3,4 E15	5,1 E15	9,1 E15

emissiebepaling met de gekozen meetopzet ten opzichte van metingen op een testbank is, dat bij de gekozen opzet de eventueel nog vlak na de uitlaat optredende condensatie en coagulatie, die de deeltjesgrootteverdeling kunnen beïnvloeden, bij de berekening van de emissie ingecalculeerd worden. Voor de receptor is het tamelijk onbelangrijk waar het geïnhaleerde aerosol precies gevormd is. Vanuit beleidsoogpunt is het belangrijk om de emissiesterkte te kennen, die de concentraties en deeltjesgrootten oplevert zoals die door de mens ingeademd worden, vandaar dat in dit onderzoek voor een op de receptor gerichte oriëntatie gekozen is.

9.2. Snelheden van coagulatie

In dit onderzoek is getracht om in situ met name de coagulatieconstante te bepalen. De in dit onderzoek bepaalde snelheden leiden niet tot verwerping van de theoretisch afgeleide waarde voor de coagulatieconstanten. Zoals uit figuur 19 blijkt, komen de gemeten waarden het best overeen met de door Davies (1979) voorspelde curve voor de snelheid van coagulatie voor monodisperse deeltjes. Zoals in 8.4.2.1. is uiteengezet, kan de meeste waarde worden toegekend aan de berekende coagulatieconstante van deeltjes van 0,013 μm. Op grond van de tunnel- en wegproeven kan een voorkeur voor de theorie van Davies (1979) boven die van Fuchs (1964) uitgesproken worden. Uit de vergelijking tussen de onder geconditioneerde laboratorium omstandigheden gemeten coagulatieconstanten, dat wil zeggen alle overige punten in figuur 19, en de in situ bepaalde coagulatieconstanten, blijkt dat deze beiden – overeenkomstig de verwachting – redelijk met elkaar overeenkomen.

Als rekenexcercitie is het nuttig de invloed van coagulatie op het verkeersaerosol bij de gevonden emissie van ongeveer 1 E16 deeltjes/km na te gaan. Aangezien de uitlaatgasemissie volgens Schwanecke (1975) 0,5 m^3 per afgelegde km bedraagt, wordt per meter 0,5 dm^3 geëmiteerd, dit komt neer op 1 E13 deeltjes per afgelegde meter. De concentratie in het uitlaatgas is dan 2 E10/cm^3. De auto wordt verondersteld 80 km/uur te rijden, zodat 1 meter in 0,05 seconde wordt afgelegd. Gesteld wordt dat de zone van turbulente opmenging 5 m^3 omvat per afgelegde meter weg. Dit lijkt een reëele ondergrens gezien de emissiehoogte van 2,3 m, die in 7.5.1.3. besproken is. Na de opmenging door de mechanische turbulentie ontstaat dan een concentratie van 2 E6/cm^3. Hierna zal door verdunning ten gevolge van de atmosferische turbulentie de concentratie snel afnemen. Wanneer deze concentratie van 2 E6/cm^3 gedurende 1 seconde coaguleert kan met formule 8 en uitgaande van een coagulatie constante van 35.E-10 cm^3/5* uitgerekend worden (35.E-10 × 4.E12.1) dat 1,4 E4 deeltjes gecoaguleerd zijn per cm^3, hetgeen neerkomt op 0,7% van de emissie. In dit rekenvoorbeeld is van een windsnelheid van 2 m/s en een verkeersaanbod van 1 auto/seconde uitgegaan. Aangezien het verkeersaanbod onder de experimentele omstandigheden

veel geringer was, de windsnelheid dikwijls groter en een lagere concentratie in formule 8 kwadratisch doorwerkt, zal de invloed van coagulatie veel kleiner zijn. Deze bevinding is in overeenstemming met de in tabel 21 gepresenteerde getallen. In het onderhavige onderzoek is op 20 m afstand van een weg met een condensatiekernenteller nooit een concentratie gemeten boven 1 E5/cm^3. In 1 seconde gaan bij deze concentratie, uitgaande van een K_o van 35E-10 cm^3/s, 35 deeltjes door coagulatie per cm^3 verloren, hetgeen zou neerkomen op 0,035% van de emissie. Op grotere afstanden zijn de verdunningen nog groter en worden de coagulatie verliezen navenant kleiner.

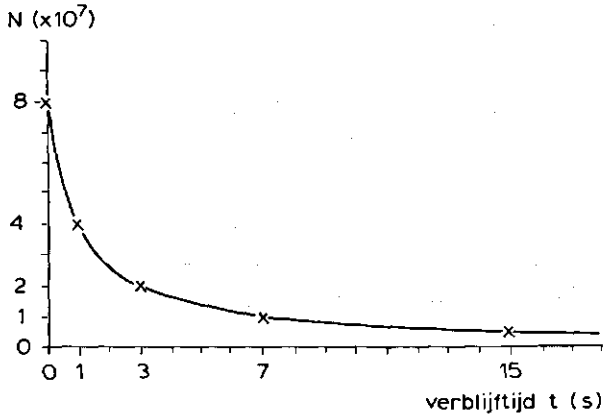
In de literatuur is één keer eerder sprake van de bepaling van de coagulatie constantes uit in situ metingen. WHITBY, CLARK, e.a., (1975) hebben uit metingen langs de 'Harbor Freeway' in Los Angeles, met vergelijkbare verblijftijden als tijdens de wegproeven, een waarde van de coagulatieconstante berekend. De auteurs berekenen de coagulatie constante als de reciproke van het produkt van deeltjesconcentratie en verblijftijd $(N \cdot t)^{-1}$. Zij rapporteren dat de coagulatieconstante 46 E-10 cm^3/s is voor één van hun zes metingen. Wanneer de geometrisch gemiddelde coagulatieconstante van alle zes metingen bepaald wordt op de manier van Whitby c.s., dan wordt deze 120 E-10 cm^3/s. Dit is aanmerkelijk hoger dan de eerder door Whitby c.s. gerapporteerde waarde omdat de auteurs bij hun berekening een factor twee over het hoofd gezien hebben. (Dit laatste komt bij coagulatie verrekeningen vaker voor, zie DAVIES, 1979). Deze waarde van 120 E-10 cm^3/s is groter dan de polydisperse coagulatie coëfficiënt op grond van de theorie van Davies en formule 12, die op 30 à 40 E-10 cm^3/s berekend kan worden*. Voor het rekenkundig gemak wordt verder een waarde van 35 E-10 cm^3/s aangenomen.

Op deze berekening door Whitby c.s. van de coagulatieconstante als $(N \cdot t)^{-1}$ is om twee redenen kritiek te leveren. In de eerste plaats corrigeren de auteurs niet voor de verspreiding. Daardoor wordt een lagere concentratie bij een langere verblijftijd ten gevolge van een grotere dispersie ten onrechte aangezien voor het gevolg van de coagulatie. Dit leidt tot een overschatting van de coagulatieconstante. Verder houdt de berekening van Whitby c.s. verwaarlozing in van de depositieverliezen. Ook dit leidt tot een overschatting van de coagulatieconstante wanneer deze uit de gemeten concentratie wordt afgeleid.

Het tweede kritiekpunt is van meer theoretische aard. Het is gebruikelijk om het produkt $(N \cdot t)^{-1}$ constant te beschouwen (zie bijvoorbeeld FUCHS, 1964).

* noot: Immers voor coagulatie geldt: $\Delta N = K_o \cdot N^2 \cdot t$. Als uitgegaan wordt, als rekenvoorbeeld om de K_o te berekenen, van een verkeersaerosol van 1 E5/cm^3, waarbij de deeltjesgrootteverdeling de verhouding volgt uit tabel 33 (5 : 3,4 : 0,37 : 0,22) voor de verhouding van de deeltjesconcentratie van deeltjes met diameters van 0,01 μm : 0,02 μm : 0,04 μm : 0,07 μm, kan het verlies aan deeltjes ten gevolge van coagulatie gedurende 1 seconde berekend worden. Uit dit verlies ΔN en de concentratie N kan dan K_o berekend worden ($K_o = \Delta N/N^2$). Het verlies aan deeltjes van 0,01 μm per seconde door coagulatie met de eigen en drie grotere klassen is respectievelijk 15,47 + 9,70 + 1,32 + 1,17 deeltjes per cm^3. Voor 0,02 μm is dit respectievelijk 4,13 + 0,42 + 0,31 deeltjes/cm^3·s. Voor 0,04 μm en 0,07 μm wordt dit verlies respectievelijk 0,03 + 0,016/cm^3·s en 0.006/cm^3·s. Zodat van het totale aerosol van 1 E5/cm^3 32,6 deeltjes/cm^3·s verloren zijn. De polydisperse coagulatie constante K_o wordt dan 32,6 E-10 cm^3/s.

FIG. 20. Deeltjes concentratie (N) van monodispers coagulerend aerosol uitgezet tegen verblijftijd t in seconden, $K_0 = 62{,}5$ E – 10 cm^3/s.



Zoals in figuur 20 te zien is, is dit niet geheel juist. Bij figuur 20 is voor het gemak aangenomen dat coagulatie de deeltjesgrootteverdeling niet beïnvloedt. Het produkt $(N \cdot t)^{-1}$ is voor de aangegeven punten eerst ∞, dan 2,5 E-8, 1,7 E-8, 1,4 E-8 en 1,33 E-8 en nadert met lange verblijftijden 1,25 E-8. In figuur 20 is uitgegaan van een K_0 van 62,5 E-10 cm^3/s. Wanneer $^1/N$ tegen t wordt uitgezet, zoals in figuur 21 is gedaan, levert dit een rechte lijn op die niet door de oorsprong gaat (de asafsnede is altijd $^1/N_0$). Als nu de coalgulatieconstante bepaald wordt uit de helling van de verkregen rechte $^1/N$ tegen t, is de coagulatieconstante theoretisch juist bepaald. Indien de coagulatieconstante echter bepaald wordt op de manier van Whitby c.s. met $(N \cdot t)^{-1}$ interfereert het feit dat $(N \cdot t)^{-1}$ niet constant is.

Dit probleem kan omzeild worden op de volgende wijze. Wanneer $^1/N$ wordt uitgezet tegen ϑ, de tijd die de concentratie N nodig heeft om tot de helft af te

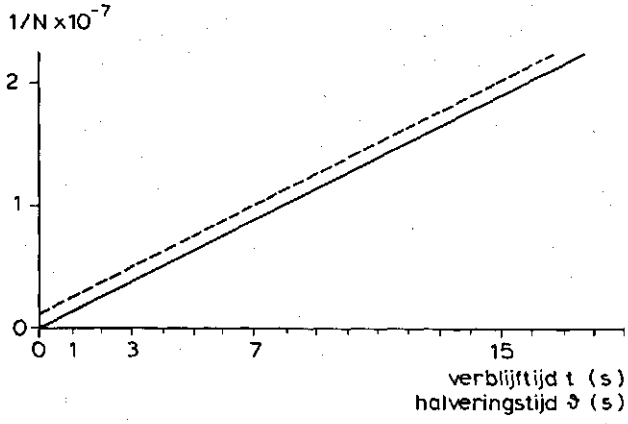


FIG. 21. Reciproke van de deeltjesconcentratie (1/N), uit figuur 20 uitgezet tegen:
de verblijftijd t in seconden - - - - -
de halveringstijd ϑ in seconden ———

nemen (halveringstijd), is $(N \cdot \vartheta)^{-1}$ constant voor alle waarden van N. Grafisch is dit in figuur 21 uitgezet. Het is een andere lijn, dan de eerder berekende, die door de oorsprong heen loopt en een afstand ϑ_o is opgeschoven in de x-richting. Hierbij is ϑ_o de halveringstijd voor de oorspronkelijke concentratie N_o. De relatie tussen halveringstijd en verblijftijd is:

$$\vartheta = t + \vartheta_o \qquad 35$$

De punten uit figuur 20 leveren nu allen een produkt $(N \cdot \vartheta)^{-1}$ op van 1,25 E-8 cm^3/s hetgeen tweemaal de K_o van 62,5 E-10 cm^3/s is. Het is duidelijk dat bij lange verblijftijden en in systemen met hoge concentraties en daardoor kleine ϑ_o het subtiele verschil dat met formule 35 beschreven wordt, geen rol van betekenis meer speelt. Net als bij de berekening van de coagulatieconstante met $(N \cdot t)^{-1}$ geldt ook nu de voorwaarde dat het om een afgesloten systeem moet gaan. Wanneer aangenomen wordt zoals Whitby c.s. doen dat de verspreiding van het aerosol van de snelweg, te beschrijven is met een doosmodel, dan is er in principe sprake van een afgesloten systeem. Aangezien op de Harbor freeway ongeveer 3,5 auto's per seconde passeerden tijdens de metingen van Whitby c.s. kan ervan uitgegaan worden dat concentraties na de emissie ongeveer 7 E6/cm^3 zijn (bij de rekenexercitie op pagina 104 is 2 E6/cm^3 berekend bij een frekwentie van 1 auto per seconde). Met een K_o van 35 E-10 cm^3/s kan berekend worden dat ϑ_o ongeveer 20 seconden is. Hiermee is een betere schatting van de coagulatieconstante mogelijk met $\{N \cdot (t + \vartheta_o)\}^{-1}$. De berekende coagulatieconstante wordt dan ongeveer 90 E-10 cm^3/s. De resterende discrepantie tussen de theoretisch verwachte coagulatieconstante van 35 E-10 cm^3/s en de zojuist berekende waarde moet geweten worden aan de atmosferische verspreiding en de depositie. Het feit dat de berekende coagulatieconstante hoger uitvalt dan verwacht kan worden geeft aan dat het doosmodel dat Whitby c.s. gebruikt hebben om de verspreiding mee te beschrijven niet opgaat.

Een verder experimentele verificatie door middel van veldmetingen van de coagulatiesnelheid en met name ook de depositiesnelheid van submicrone deeltjes zijn zeker op zijn plaats, gezien de grote onzekerheidsmarge in de berekende parameters.

9.3. Ervaring met de meetapparatuur

De contrôle, die op de werking van de electrische verdelings analysator is uitgevoerd en de vergelijking van de metingen met een condensatiekernenteller leveren zoals uit figuur 10 blijkt een redelijke overeenstemming op. Zoals in 5.2.1. en 5.3. al is uiteengezet, wordt het verschil in de aanwijzing van de electrische verdelings analysator en de condensatiekernenteller met name door de ondergrens van de condensatiekernenteller veroorzaakt. Eén van de punten, die van groot belang is bij het werken met een electrische verdelings analysator is de regelmatige reiniging van de isolator van het electrometer filter.

In 5.1.2.1. is al ingegaan op de reproduceerbaarheid van de electrische verdelings analysator. Deze is te verbeteren door van de metingen de geometrische gemiddelde stroomsterkte te berekenen van een aantal complete series deeltjesgrootteverdelingen. Uit bijvoorbeeld de metingen gerapporteerd in tabel 6, blijkt dat het verloop in de calibratie van het instrument gering is. De electrische verdelings analysator is bij uitstek geschikt voor aerosolonderzoek in het veld. Het is tijdens deze proeven niet buiten werking geweest vanwege technische mankementen. De verwerking van de gegevens moet na afloop van de metingen gebeuren. Hiervoor is wel dataverwerkingsapparatuur en een kleine computer vereist.

In het voor het aerosolgedrag zo interessante gebied van deeltjes met een diameter van 0,02 μm en kleiner is de werking van de electrische verdelings analysator minder goed dan in het gebied tussen 0,5 en 0,05 μm. De ondergrens van dit instrument moet bij veldonderzoek op 0,01 μm gesteld worden. Uit tabel 5 blijkt, dat de standaard afwijking van de deeltjes van 0,013 μm bij een geometrisch gemiddelde van zes metingen nog altijd 15% is. Hieruit volgt, dat voor een betrouwbare meting van het verschil tussen twee concentraties er toch minstens een verschil nodig is, dat een veelvoud van deze standaard deviatie bedraagt. Dit geldt zeker wanneer er bij atmosferische metingen sprake is van een bepaald niet te verwaarlozen voorbelasting. Gezien de gemeten concentraties en de verblijftijden bij de wegproeven is het logisch, dat op grond van deze gegevens de afname tengevolge van atmosferische verwijderingsprocessen bij de wegproeven niet duidelijk van de 'ruis' is te onderscheiden. Door het bepalen van de gemeten stroomsterktes als geometrisch gemiddelde over zes metingen was het mogelijk de fluctuaties beter uit te middelen.

Zoals in 4.3.1. is uiteengezet, wordt de concentratie van deeltjes van 0,04 μm onderschat. Aangezien de gemeten concentraties bij de weg- en tunnelproeven onderling vergeleken worden en een calibratie met een ander apparaat dat de deeltjesgrootte classificeert onmogelijk is, is deze onderschatting voor het onderhavige onderzoek niet zo belangrijk. Met behulp van het door LIU, PUI en KAPADIA (1976) en LIU en KAPADIA (1977) gegeven computer programma kan voor de niet ideale respons gecorrigeerd worden. Om in 5.1. genoemde redenen is van het gebruik van dit programma afgezien bij de uitwerking van de meetgegevens. Voor belangstellenden is de berekende emissie uit tabel 32 teruggerekend

TABEL 34. Emissie in deeltjes per afgelegde kilometer per voertuig, met correcties voor de niet ideale responsmatrix.

diameter in μm	0,75	0,42	0,24	0,13	0,07	0,04	0,02	0,01	N-totaal
wegproeven Wageningen	14,5 E11	7,95 E12	3,30 E13	6,94 E13	2,00 E14	4,69 E14	2,77 E15	4,78 E15	8,32 E15
wegproeven Veenendaal	2,66 E11	2,72 E12	2,77 E13	7,77 E13	1,87 E14	8,94 E14	3,33 E15	5,04 E15	9,56 E15
tunnelproeven	2,24 E11	1,92 E12	1,29 E13	4,03 E13	2,40 E14	9,40 E14	3,47 E15	3,75 E15	8,46 E15

naar de bijbehorende stroomsterktes. Met behulp van het genoemde computerprogramma zijn de stroomsterktes omgerekend tot een bimodale verdeling. Deze is weer teruggerekend naar een emissie, zie tabel 34.

Uit een vergelijking van tabel 34 en 32 blijkt, dat eigenlijk alleen de emissie van deeltjes van 0,75 en 0,04 μm noemenswaard beïnvloed wordt. Mede gezien de relatief geringe invloed op de berekende emissies kan het computerprogramma bij dit onderzoek gemist worden.

9.4. Maatschappelijke relevantie en aanbevelingen

Een van de resultaten van dit onderzoek is een tot nu toe nog nergens gerapporteerde schatting van de deeltjesgrootteverdeling van de emissie door verkeer. Samen met de reeds bekende emissies aan gasvormige componenten, lood en het verkeerslawaai kunnen deze cijfers nu gebruikt worden om bij planologische beslissingen betrokken te worden betreffende uitbreiding van wegen of de situering van wegen of om een stedelijke situatie te beschrijven met een emissiekadaster.

Daarnaast kan uit de experimentele verificatie van de snelheden van de verwijderingsprocessen en de verspreiding eventueel een evaluatie plaatsvinden van het optreden van gezondheidsschadelijke concentraties van verkeersemissies. Voor het eerst is ook een model gebruikt, dat de drie aspecten dispersie, depositie en coagulatie samen beschrijft en dat experimenteel geverifieerd is. Deze modelmatige benadering van processen, die het aerosolgedrag langs wegen beïnvloeden, maakt het mogelijk het relatieve belang van de verschillende parameters te bestuderen en na te gaan waarop het onderzoek geconcentreerd moet worden.

Van de chemische samenstelling van submicrone aerosolen onder 0,1 μm is nog weinig bekend. Mede met het oog op de gezondheidskundige aspecten van dergelijke aerosolen zou meer onderzoek op dit gebied gewenst zijn. Ook over de chronische gezondheidskundige effecten van deze zeer kleine deeltjes in concentraties zoals ze in stadscentra optreden, is weinig bekend.

Een verdere experimentele verificatie van depositieverliezen, bij voorkeur ook in steden en de coagulatie verliezen in straten met een hoge aaneengesloten bebouwing onder stagnerende meteorologische condities, is ook nodig om een betere beschrijving van het submicrone aerosolgedrag mogelijk te maken. Daarnaast is kennis van de verspreiding in een complexe stedelijke situatie natuurlijk een noodzaak om de resultaten van dit onderzoek te vertalen naar een urbaan aerosol. Ook zou het van belang zijn meer te weten van de invloed van de relatieve luchtvochtigheid op de deeltjesgrootteverdeling van aerosolen om de vergelijkbaarheid van verschillende metingen te vergroten. Voor een modelmatige beschrijving van het aerosolgedrag in een stedelijke situatie zijn naast bovengenoemde processen de snelheden van natte depositie en de verblijftijden ook belangrijke parameters. Oók hiernaar dient meer onderzoek onder atmosferische omstandigheden verricht te worden.

Als bijproduct van dit onderzoek is er – ook voor het eerst – een modelmatige

beschrijving gemaakt van het aerosolgedrag in tunnels. Daarbij is onder andere een schatting gemaakt van de energie discipatie, wrijvingswindsnelheid, snelheidsgradiënt en andere fysische parameters in tunnels. Uit de proeven in een tunnel blijkt onder andere, dat de luchtverversing in tunnels gecompliceerd is en zich niet laat beschrijven met alleen maar de ventilatiegegevens.

Een van de conclusies, die uit de literatuur met betrekking tot de verkeersemissie en de mogelijke gezondheidskundige effecten daarvan naar voren komt, is, dat overbodige toevoegingen aan benzine wettelijk beperkt dienen te worden vanwega de verhoging van de aerosol emissie door deze toevoegingen (TER HAAR, LENANE, e.a., 1972). Ook het aromaat gehalte van benzines dient vanuit dit oogpunt zo laag mogelijk te zijn (TER HAAR, LENANE, e.a., 1972). Lood, dat aan benzine wordt toegevoegd om het octaangehalte van benzine te verhogen, is gezien de huidige stand van de techniek, een van deze overbodige toevoegingen. Het lood is een wijdverbreide milieucontaminant geworden, terwijl het zoals PERSSON (1976) aangeeft, zonder problemen voor de motor weggelaten kan worden als 15% tot 20% methanol aan de benzine wordt toegevoegd om het octaangehalte op peil te brengen. Ook de emissies aan andere componenten zoals koolmonoxide en polycyclische aromatische koolwaterstoffen zijn met een methanol-benzine mengsel lager dan wanneer alleen op benzine gereden wordt. De perspectieven van pure methanol als autobrnadstof zijn vanuit milieuhygiënisch oogpunt nog groter (PERSSON, 1976; BERNHARDT, 1976).

10. CONCLUSIES

Voor de meting van submicrone aerosolen van 1 μm tot 0,01 μm is de electrische verdelings analysator een bruikbaar instrument. Vergelijking van de metingen met dit instrument met die van de op een totaal ander principe werkende condensatie kernen teller laat een goede overeenstemming tussen de resultaten van beide instrumenten zien. Door de vrij grote variatiecoëfficiënt van de electrische verdelings analysator bij de boven- en ondergrens van het meetbereik zijn redelijke concentratieverschillen vereist om nog betrouwbare verschilmetingen (bijvoorbeeld ten opzichte van een voorbelasting) uit te voeren. Bij een onderlinge vergelijking van meerdere electrische verdelingsanalysatoren blijkt zowel uit de in de literatuur gerapporteçrde resultaten als uit een eigen vergelijking, dat de interinstrumentele spreiding groter is dan de intra-instrumentele. Ondanks de relatief zwakke meetresultaten van deeltjes met een diameter van 0,04 μm is de electrische verdelings analysator een voor veldmetingen geschikt apparaat en voorlopig het enige, dat in het betreffende groottegebied de deeltjesgrootteverdeling kan meten. In het land der blinden...

Uit het verrichte literatuuronderzoek volgt, dat de relatieve luchtvochtigheid een belangrijke invloed heeft op de deeltjesgrootteverdeling van sommige aerosolen. De invloed van de relatieve luchtvochtigheid op deeltjes kleiner dan 0,06 μm is in tegenstelling tot die op grotere deeltjes niet meetbaar, zodat de relatieve vochtigheid geen belangrijke invloed gehad kan hebben op de emissieschatting van de submicrone aerosol in het betreffende groottegebied kleiner dan 0,06 μm. Ook de opwerveling van submicrone deeltjes door turbulentie is onbelangrijk.

De bepaling van de verdunning van het verkeersaerosol doot atmosferische turbulentie met behulp van het tracergas zwavelhexafluoride is succesvol verlopen. Dit blijkt een bruikbare techniek om te dienen als hulpmiddel bij de beschrijving van het aerosolgedrag.

De beschrijving van de drie fysische parameters: dispersie, depositie en coagulatie is goed mogelijk in één model. De theoretische depositiesnelheden onder verschillende omstandigheden zoals die door SEHMEL en HODGSON (1976) gegeven worden, komen qua orde van grootte overeen met in de literatuur gerapporteerde metingen. Meer experimenteel onderzoek op dit gebied is gewenst. Door experimentele metingen langs een weg is een toetsing mogelijk van het model weg, dat het aerosolgedrag beschrijft. Met behulp van dit model kan de onderlinge beïnvloeding en het relatieve belang van de verschillende processen berekend worden. Daarbij blijkt, dat tot 150 meter van een tweebaans weg depositie een belangrijker verwijderingsmechanisme is dan coagulatie. Met behulp van het model kan de emissie aan aerosolen geschat worden. Door de hoge voorbelasting van voornamelijk deeltjes groter dan 0,1 μm heeft de berekende emissie een hoge variatiecoëfficiënt. De met dit model berekende emissie is relatief ongevoelig voor de ingevoerde windsnelheid, bronhoogte en coagulatie parameters. De berekende emissie is iets gevoeliger voor de depositie snelheid en de keuze van de

ruwheidslengte als metingen hiervan ontbreken. Verder is de berekende emissie recht evenredig met de fluctuaties in de emissie van het tracergas. Het blijkt met de wegproeven niet mogelijk te zijn tot nauwkeurige meting van depositie- en coagulatieverliezen te komen.

De coagulatieconstanten kunnen wel berekend worden uit de metingen in de IJ-tunnel. De gemeten concentratie wordt daarbij opgevat als een evenwichts concentratie. Daarbij worden de verliezen tengevolge van verversing, depositie en coagulatie gecompenseerd door de emissie van het verkeer. Omdat de emissie bekend is uit de wegmetingen en de depositie uit literatuurgegevens gehaald kan worden, kan de coagulatieconstante berekend worden. Op grond hiervan kan een voorkeur voor de theorie van Davies boven die van Fuchs uitgesproken worden. De uit het onderzoek verkregen coagulatieconstante van deeltjes met een diameter van 0,01 μm is betrouwbaarder dan die voor grotere deeltjes. De gevonden waarde voor de coagulatieconstante van deze deeltjes is niet sterk afhankelijk van de keuze van de depositie snelheden en wordt ook niet zo sterk beïnvloed door een verandering in de voor de berekening gebruikte emissieschatting op grond van de wegproeven. Een verdere verificatie van de snelheden van coagulatie is gewenst. Uit het model, dat het aerosolgedrag tijdens de tunnelproeven beschrijft, blijkt, dat de invloed van de spreiding in de verblijftijd op de geschatte emissies gering is. De emissieschatting is ook weinig afhankelijk van de keuze van de depositiesnelheden. Deze wordt voornamelijk bepaald door de coagulatie. Uit de tunnelmetingen blijkt verder, dat de door de auto's op het meetpunt teweeggebrachte langs-ventilatie bijna een factor drie groter is dan de ventilatie door het luchtverversingssysteem van de IJ-tunnel tijdens het spitsuur.

De emissieschattingen van de tunnel- en de wegmetingen stemmen in het algemeen redelijk overeen. Aangezien de variatiecoëfficiënt voor de tunnelmetingen voor deeltjes groter dan 0,1 μm veel geringer is dan bij de wegmetingen, wordt als de emissie van verkeer de uit deze proeven berekende waarde genomen. Voor de emissie van deeltjes kleiner dan 0,1 μm wordt het gemiddelde van tunnelmetingen en beide series wegproeven aangehouden.

SAMENVATTING

Op de deeltjesgrootteverdeling van een vers verkeersaerosol met verblijftijd onder drie en een halve minuut werken verschillende processen in. De dispersie, depositie en de polydispersie coagulatie volgens Fuchs (1964) worden eerst besproken. De monodisperse coagulatie theorie van Davies (1979) en ook de formule, die de gradiënt coagulatie beschrijft, is uitgebreid voor polydisperse aerosolen. In het theoretisch deel wordt een kritische samenvatting gegeven van het gedrag van submicrone aerosolen onder invloed van de relatieve luchtvochtigheid en het opwervelen van deeltjes door turbulentie.

Er wordt een overzicht gegeven van de werking van de electrische verdelingsanalysator en de condensatiekernenteller. De contrôle en vergelijking van de meetinstrumenten wordt vervolgens behandeld. Daarna volgt een literatuuroverzicht van de op verschillende manieren gemeten deeltjesgrootteverdeling van verkeersaerosolen en de daaruit te berekenen emissies.

Uit de meting van de deeltjesgrootteverdeling van aerosolen naast een weg en de meting van tracergas concentraties kan de dispersie bepaald worden en de emissie aan aerosolen berekend worden. Door de metingen van de deeltjesgrootteverdeling op verschillende afstanden van de weg, met verschillende verblijftijden, uit te voeren, is getracht inzicht te krijgen in de snelheid van de verwijderingsmechanismen. Verder is een model gebruikt waarmee de drie processen: dispersie, depositie en coagulatie beschreven kunnen worden. Aan de hand van metingen heeft een experimentele toetsing van het model plaatsgevonden.

De metingen van de deeltjesgrootteverdeling van aerosolen en de tracergas concentraties in een tunnel leverden een evenwichtsconcentratie in de tunnel op. Het verlies aan aerosolen door dispersie, depositie en coagulatie werd gecompenseerd door de emissie van het verkeer. Uit deze evenwichtsconcentratie is met behulp van de langs de weg gevonden emissie van auto's de coagulatie snelheid van submicrone deeltjes berekend. Op grond van deze resultaten kan een voorkeur voor de theorie van DAVIES (1979) boven die van FUCHS (1964) uitgesproken worden. Verder is een model gebruikt, dat de evenwichts concentratie beschrijft als functie van de emissie en de verliestermen. Uit dit model kon ook een verkeersemissie berekend worden.

De emissies uit de wegproeven en de tunnelproeven zijn vervolgens geëvalueerd en komen redelijk overeen. De emissie in deeltjes per afgelegde kilometer per voertuig wordt hieronder gegeven. De variatie coëfficiënt loopt van 20% voor de grotere deeltjes tot 70% voor deeltjes van 0,01 μm.

diameter in μm	0,750	0,422	0,237	0,133	0,075	0,042	0,024	0,013	N-totaal
emissie deeltjes	3,9 E11	1,8 E12	1,1 E13	5,7 E13	2,2 E14	3,7 E14	3,4 E15	5,1 E15	9,1 E15

SUMMARY

Different processes can influence the perticle size distribution of fresh automobile aerosols. Dispersion, deposition and polydispers coagulation according to Fuchs (1964) are discussed. The monodispers coagulation theory of Davies (1979) and the formula describing the gradient coagulation are extended to polydispers aerosols. Also a critical review is given of the behavious of submicron particles under the influence of the relative humidity and the reentrainment of these particles by tubulence.

A survey is given of the electrical aerosolanalyzer and condensation nucleus counter. The control and comparison of these instruments is treated next. After that a literature review of the particle size distributions of traffic aerosols and the emissions which can be calculated from these distributions is presented.

The emission in particles/km per vehicle can be derived from the size distribution measurements of aerosols and tracergas concentrations along a road, because the dispersion is known for the tracergas. As the aerosol samples were taken at different distances from the road, with different residence times, the velocity of coagulation and deposition can be deduced. Also one model is used to describe the three processes dispersion, deposition and coagulation. With the measurements along a road an experimental verification of this model was possible.

The measured particle size distributions in a tunnel were a steady state concentration. The loss of aerosol bij dispersion, deposition and coagulation is compensated by the traffic emission. With this steady state concentration and the emission by traffic found during the roadexperiments the coagulation constant of submicron particles can be calculated. As a conclusion from these calculations a preference can be given to the theory of DAVIES (1979) above the theory of FUCHS (1964) describing the value of the coagulation constant. With a model that describes the steady state concentration in the tunnel as a function of the emission and removal mechanisms the traffic emission in the tunnel could be calculated.

The emissions from the road and tunnel experiments have been evaluated and are in a reasonable agreement. The following emission in particles per vehicle is presented with a variation coefficient between 20% for the bigger particles and 70% for particles of 0.01 μm:

diameter in μm	0.750	0.422	0.237	0.133	0.075	0.042	0.024	0.013	N-totaal
emission	3.9 E11	1.8 E12	1.1 E13	5.7 E13	2.2 E14	3.7 E14	3.4 E15	5.1 E15	9.1 E15

LIJST MET SYMBOLEN

	BETEKENIS	EENHEDEN
A	naam voor een matrix	–
B	naam voor een matrix	–
C	Cunningham correctiefactor	–
C_i	concentratie aerosol in grootte klasse i	aantal/cm^3
C_j	concentratie aerosol in grootte klasse j	aantal/cm^3
$C_{i,j}$	concentratie in het blokje op afstand $i \times \Delta x$ en hoogte $j \times \Delta z$ van de oorsprong	aantal/cm^3; μg/m^3
$C_{x,z}$	concentratie op afstand x en hoogte z	aantal/cm^3; μg/m^3
$C\phi,x,z$	concentratie op afstand x en hoogte z met een hoek ϕ tussen windrichting en wegas	aantal/cm^3; μg/m^3
D	diffusiviteit van een deeltje c.q. gas	cm^2/s
D_i	diffusiviteit van een deeltjes in grootte klasse i	cm^2/s
D_j	diffusiviteit van een deeltjes in grootte klasse j	cm^2/s
E	naam voor een matrix	–
E_A	energie stroom per auto	kg·m^2/s^3
F(f)	opgeloste gedeelte van de totale oplosbare fractie als functie van de relatieve luchtvochtigheid	–
G	thermische snelheid van een deeltje	cm/s
G_i	thermische snelheid van een deeltje in grootte klasse i	cm/s
G_j	thermische snelheid van een deeltje in grootte klasse j	cm/s
H	emissie hoogte	m
K_A	kracht per auto op lucht uitgeoefend	kg·m/s^2
K(f)	correctieterm die afhankelijk van de relatieve vochtigheid het verband geeft tussen de opgeloste massa en de massa water	–
K_{ij}	coagulatieconstante van deeltjes in grootte klasse i met deeltjes in grootte klasse j	cm^3/s
Kn	Knudsen getal	–
K_w	kracht op wand	kg·m/s^2
K_o	coagulatieconstante	cm^3/s
L	lengte aanzuigleiding	m
M	onder driehoeksmatrix	–
M^T	getransponeerde onder driehoeksmatrix	–
N	aantal deeltjes	aantal/cm^3
N_o	beginconcentratie	aantal/cm^3
O_A	geprojecteerde oppervlak van een auto	m^2
O_T	oppervlak dwarsdoorsnede tunnel	m^2

P	fractie van deeltjes die door een leiding heen komt	–
Pe	Peclet getal	–
Q	emissie van een lijnbron	μg/m·s
Q′	emissie van een puflijnbron	μg/m
Q″	debiet	cm^3/s
Q_{xo}	gecorrigeerde bronsterkte na droge depositie over een afstand xo	μg/m·s
R′	straal aanzuigleiding	cm
S	oplosbare fractie	–
T	temperatuur	graden Celsius
V	vormfactor	–
Y	naam voor een matrix	–
a	coëfficiënt	–
b	coëfficiënt	–
c	coëfficiënt	–
d	coëfficiënt	–
f	relatieve luchtvochtigheid als fractie van de maximale waterdampspanning bij een bepaalde T	–
f^1	frekwetie waarmee auto's passeren	$(s)^{-1}$
k_1	diffusie coëfficiënt op 1 m hoogte	m^2/s
k_r	diffusie coëfficiënt op referentie hoogte	m^2/s
k_z	diffusie coëfficiënt op hoogte z	m^2/s
ℓ	lengte tunnel	m
n	aantal metingen	aantal
p	macht op basis van de machtwet	–
r	straal deeltje	cm
r_f	straal deeltje als functie van de relatieve vochtigheid	cm
r_i	straal deeltje in grootte klasse i	cm
r_j	straal deeltje in grootte klasse j	cm
r_o	straal deeltje bij 0%, 20% of 30% relatieve vochtigheid	cm
s	omtrek tunnel	m
t	tijd sinds emissie, verblijftijd	s
t_j	tijdstap op hoogte $j \times \Delta z$ $t_j = \Delta x/u_j$	s
u	windsnelheid	m/s
u_j	windsnelheid op hoogte $j \times \Delta z$	m/s
u_z	windsnelheid op hoogte z	m/s
u_1	windsnelheid op 1 m hoogte	m/s
u_*	wrijvingswindsnelheid	m/s
v	snelheid verkeer	m/s
v_d	depositiesnelheid	cm/s
v_{dr}	depositiesnelheid op referentiehoogte	cm/s

v_s	sedimentatie snelheid	cm/s
x	afstand tot de weg in de windrichting, richting loodrecht op de wegas	m
x_o	geprojecteerde afstand tot de weg $x_o = x \cdot \sin \phi$	m
y	richting van de wegas	–
z	afstand in richting loodrecht op het maaiveld	–
z_o	ruwheidslengte	cm
z_r	referentiehoogte	m
Γ	snelheidsgradiënt	s^{-1}
Γo	snelheidsgradiënt aan een wand	s^{-1}
$\Gamma(b)$	gammafunctie van b	–
Δr	verschil in diameter	cm
Δx	stapgrootte in de x-richting	m
Δz	stapgrootte in de z-richting	m
Φ_B	brownse coagulatie snelheid	cm^3/s
Φ_T	Turbulente coagulatie snelheid	cm^3/s
Φ_G	Gradiënt coagulatie snelheid	cm^3/s
β_D	correctiefactor van Davies	–
β_F	correctiefactor van Fuchs	–
δ_i	deeltjesafstand van deeltjes in grootte klasse i	cm
δ_j	deeltjesafstand van deeltjes in grootte klasse j	cm
ε	energie dissipatie	cm^2/s^3
η	dynamische viscositeit	$g/cm \cdot s$
ϕ	hoek tussen windrichting en wegas	graden
κ	constante van Von Karman (0,4)	–
λ	vrije weglengte van de moleculen	cm
ϑ	halveringstijd	s
ϑ_o	halveringstijd van beginconcentraties N_o	s
ν	kinetische viscositeit	cm^2/s
χ^2	chikwadraat	–
π	3, 14 ...	–
ρ	soortelijke massa lucht	g/cm^3
ρ_p	soortelijke massa deeltjes	g/cm^3
ρ_w	soortelijke massa water	g/cm^3
σ_x	standaardafwijking van de gemiddelde concentratieverdeling in de x-richting	m
σ_z	standaardafwijking van de gemiddelde concentratieverdeling in de z-richting	m
τ	relaxatietijd	s
τ_o	schuifspanning	$g/cm \cdot s^2$

LITERATUUR

ALPHEN, M. VAN, J. BROEKMAN, (1977). Nader onderzoek naar de meting van deeltjesverontreiniging in Arnhem m.b.v. de High-volume sampler. V-56 Vakgroep luchtverontreiniging, L.H. Wageningen.

APPEL, B. R., E. L. KOTHNY, E. M. HOFFER, (1978). Sulfate and nitrate data from the California aerosol characterization experiment (ACHEX). Environ. Sci. Technol. **12**/4; 418–425.

BARSIC, N. J., (1977). Size distributions and concentrations of fine particles produced by propane-air combustion in a controlled humidity envirement. PhD-thesis. University of Minnesota, Minneapolis.

BERNHARDT, W., (1976). Methanol as an automotive fuel, problems and expectations in: Royal Swedish Academy of Engineering Science (1976).

BIERSTEKER, K., R. L. ZIELHUIS, (1975). Inleiding in de milieuhygiëne. Stafleu, Leiden.

BOYER, K. W., H. A. LAITINEN, (1975). Automobile exhaust perticulates. Properties of environmental significance. Environ. Sci. Technol. **9**/5; 457–469.

BOVENKERK, C., P. LEFFERS, (1977). Onderzoek naar verspreiding vanaf het dak van een stal in open terrein, met behulp van de tracer SF6. V-58 Vakgroep Luchtverontreiniging, L.H. Wageningen.

BUCK, H., H. B. PEDERSEN, I. SZTOKHAMER, (1976). The variations in the concentration of airborne partuculate matter with winddirection and windspeed in Denmark. Atmos. Environ. **10**/2; 159–162.

BURGMEIER, J. W., I. H. BLIFFORD (JR.), D. A. GILLETTE, (1973). A reinforced coagulation-sedimentation aerosol model. Water Air Soil Pollut. **2**/1; 97–104.

BURGMEIER, J. W., I. H. BLIFFORD (JR.), (1975). A reinforced coagulation-sedimentation aerosol model for stratospheric aerosols. Water Air Soil Pollut. **5**/2; 133–147.

BURINGH, E., (1978). Dynamics and measurement of a submicron traffic aerosol in a tunnel. Proceedings 6th-GAF conference Wenen September 1978 p. 336–341.

BURINGH, E., (1979). Dynamics and measurement of submicron traffic aerosols. J. Aerosol Sci. **10**/2; 238.

BUSINGER, J. A., J. C. WYNGAARD, Y. IZUMI, E. F. BRADLEY, (1971). Flux-profile relationships in the atmospheric surface layer. J. Atmos. Sci. **28**; 181–189.

CADLE, S. H., D. P. CHOCK, P. R. MUNSON, J. M. HEUSS, (1977). General Motors sulfate dispersion experiment: experimental procedures and results. J. Air Pollut. Control Assoc., **27**/1; 33–38.

CADLE, S. H., D. P. CHOCK, J. M. HEUSS, P. R. MANSON, (1976). Results of the G.M. sulfate dispersion experiments; General Motors report – 2107.

CADLE, S. H., R. L. WILLIAMS, (1978). Gas and particle emissions from automobile tires in laboratory and field studies. J. Air Pollut. Control Assoc. **28**/5; 502–507.

CALDER, K. L., (1949). Eddy diffusion and evaporation in flow over aerodynamically smooth and rough surfaces: a treatment based on laboratory laws of turbulent flow with a special reference to conditions in the lower atmosphere. Quart. J. Appl. Math. Vol. II-2; 153–176.

CALDER, K. L., (1973). On estimating air pollution concentrations from a highway in an oblique wind. Atmos. Environ. **7**/9; 863–868.

CARLSON, R. W., F. A. BAZZAZ, J. J. STUKEL, J. B. WEDDING, (1976). Physiological effects, wind re-entrainment and rainwash of Pb aerosol particulate deposited on plant leaves. Environ. Sci. Technol. **10**/12; 1139–1142.

CHA, C. Y., B. J. MCCOY, (1974). Thermal force on aerosol particles. Phys. Fluids **17**/7; 1376–1380.

CHAMBERLAIN, A. C., (1967). Transport of Lycopodium spores and other small particles to surfaces. Proc. Roy. Soc. London A **296**; 45–70.

CHOCK, D. P., (1977). General Motors sulfate dispersion experiment: assessment of the EPA-Hiway model. J. Air Pollut. Control Assoc., **27**/1; 39–45.

CHOCK, D. P., (1978). A simple line-source model for dispersion near roadways. Atmos. Environ. **12**/4; 823–830.

CINKOTAI, F. F., (1971). The behaviour of sodium chloride particles in moist air. Aerosol Sci. 2/3; 325–329.

CLARK, W. E., E. L. AVOL, (1976). A comparison of the simultaneous response of four electrical aerosol analyzers. Florida Workshop.

CLOUGH, W. S., (1973). Transport of particles to surfaces. Aerosol Sci. 4; 227–234.

COOPER, C., G. LANGER, (1978). Limitations of commercial condensation nucleus counters as absolute aerosol counters. J. Aerosol Sci. 9/2; 65–75.

COVERT, D. S., R. J. CHARLSON, N. C. ALQUIST, (1972). A study of the relationship of chemical composition and humidity to light scattering by aerosols. J. Appl. Meteorol. 11/6; 968–976.

COWHERD, C., (JR.), C. O. MANN, C. M. MAXWELL, D. W. NELSON, (1977). Quantification of dust entrainment from paved roads, Midwest Research Institute, Kansas City, Montana.

DANNIS, M. L., (1974). Rubber dust from the normal wear of tires. Rubber Chem. Technol. 47/4; 1011–1037.

DAVIDSON, C. I., S. V. HERING, S. K. FRIEDLANDER, (1975). The deposition of Pb-containing particles from the Los Angeles atmosphere. Environ. Sensing assess. Conf., Las Vegas.

DAVIES, C. N., (1966). Deposition from moving aerosols in: DAVIES, C. N., (1966) ed.

DAVIES, C. N., (1966) ed. Aerosol Science. Academic Press, London.

DAVIES, C. N., (1968). Zur Frage der Probenahme von Aerosolen. Der Eintritt von Teilchen in Probenahmerohre und -köpfe. Staub Reinhalt. Luft 28/6; 219–225.

DAVIES, C. N., (1974). Particles in the atmosphere-natural and man-made. Atmos. Environ. 8/11; 1069–1079.

DAVIES, C. N., (1976). Aerosol science in Japan. J. Aerosol Sci. 7/2; 181–191.

DAVIES, C. N., (1979). Coagulation of aerosols by Brownian motion. J. Aerosol Sci. 10/2; 151–161.

DIEMEL, M., R. GABLESKE, (1973). Messung verschiedener Abgaskomponenten des Kraftfahrzeugverkehrs in Köln. Städtehygiëne 24/12; 268–272.

DIEMEL, M., (1974). Kohlenmonoxid-, Blei-, Stickoxid- und Benzo(a)pyren-Belastung in Kölner Strassen. Schriftenreihe Ver. Wasser-Boden-Luft Hygiene, Berlin, 42; 149–163.

DOLAN, D. F., D. B. KITTELSON, K. T. WHITBY, (1975). Measurement of diesel exhaust particle size distributions. Am. Soc. Mech. Eng. 75 - WA/APC - 5.

DRIVAS, P. J., F. H. SHAIR, (1974). Dispersion of an instantaneous cross-wind line source of tracer released from an urban highway. Atmos. Environ. 8; 475–485.

DUFFAUD, J., R. HEROS, R. GAUDILLIERE, P. CHOVIN, (1971). Le problème de la surveillance du niveau de pollution d'une ville par les gaz d'échappement de vehicules automobiles – cas d'un tunnel autoroutier. pag. 16–22. in: Englund, H. M., W. T. Beery (ed's), (1971).

DUYSENS, L. J. E., A. H. H. M. SCHOMAKER, (1974). Aerosol onderzoek in Arnhem. V-33 Vakgroep Luchtverontreiniging, L.H. Wageningen.

DWIGGINS, G. A., (1975). The effect of trace gaseous constituents in the air on data from the electrical aerosol analyzer. Msc. Thesis, Chappel Hill, N.C.

EDGINTON, D. N., J. A. ROBBINS, (1976). Records of lead deposition in lake Michigan sediments since 1800. Environ. Sci. Technol. 10/3; 266–274.

EDWARDS, J. B., (1973). The chemistry of spark-ignition engine combustion and formation. in: Springer, G. S., D. J. Patterson, (1973) ed's.

ELLESTADT, T. G., (1977). persoonlijke mededeling.

ENGLUND, H. M., W. T. BEERY, (ed's), (1971). Proceedings of the second international Clean Air Congress. Academic Press, New York.

ESMEN, N. A., M. CORN, (1971). Residence time of particles in urban air. Atmos. Environ. 5/8; 571–578.

FERRON, G. A., (1976). On the deposition of aerosols in the human airways. Delft University Press, Delft.

FISSAN, H., H. FRANZEN, (1978). Emissionmessungen an einem Ottomotor mit einem 'Andersen Stock Sampler'. Staub Reinhaltung der Luft 38/2; 56.

FISSAN, H. J., H. FRANZEN, C. HELSPER, (1978). Particle size distribution of combustion aerosols. 13me Colloque international sur les atmospheres pollués, Paris.

FISSAN, H. J., C. HELSPER, H. FRANZEN, (1976). Bestimmung der Grössenverteilung von Aerosolen aus

Verbrennungsvorgängen mit einem electrostatischen Aerosolanalysator. Proceedings 4th GAF-conference.

FITZGERALD, J. W., (1975). Approximation formulas for the equillibrium size of an aerosol particle as a function of its size and composition and the ambient relative humidity. J. Appl. Meteorol. **14**/6; 1044–1049.

FLAGAN, R. F., (1977). persoonlijke mededeling.

FRIEDLANDER, S. K., (1973). Chemical element balances and identification of air pollution sources. Environ. Sci. Technol. **7**/3; 235–240.

FRIEDLANDER, S. K., (1977). Smoke, dust and haze. Fundamentals of aerosol behaviour. John Wiley and Sons, New York.

FUCHS, N. A., (1964). The mechanics of aerosols. Pergamon Press, Oxford.

FUCHS, N. A., (1975). Sampling of aerosols. Atmos. Environ. **9**/8; 697–707.

GANLEY, J. T., G. S. SPRINGER, (1974). Physical and chemical characteristics of particulates in spark ignition engine exhaust. Environ. Sci. Technol. **8**/4; 340–347.

GIAUQUE, R. D., GODA, L. Y., N. E. BROWN, (1974). Characterization of aerosols in California by X-ray induced X-ray fluorescence Analysis. Environ. Sci. Technol. **8**/5; 436–441.

GILLETTE, D. A., (1972). A study of aging of lead aerosols II. A numerical model simulating coagulation and sedimentation of a leaded aerosol in the presence of an unleaded background aerosol. Atmos. Environ, **6**/7; 451–462.

GILLETTE, D. A., J. W. WINCHESTER, (1972). A study of aging of lead aerosols - I Observations. Atmos. Environ. **6**/7; 443–450.

GLERUM, A., N. P. COSTERIS, H. JONGEDIJK, R. C. RIJKEBOER, L. SWART, (1975). Ventilatie van autotunnels. KIVI, Den Haag.

GORDON, G. E., (1974) DIR. Study of the emissions from mayor air pollution sources and their atmospheric interactions. Two year progress report 1972–1974. University of Maryland.

GORDON, G. E., (1975) DIR. Atmospheric impact of mayor sources and consumers of energy. Progress report-75. University of Maryland.

GOUDRIAAN, J., (1977). Crop micrometeorology, a simulation study. Pudoc, Wageningen.

GRÄFE, K., (1974). Kraftverkehrsbezogene CO-Messungen in Tunneln und an einer Hochstrasse in Hamburg. Schriftenreihe Ver. Wasser-Boden-Luft Hygiene, Berlin, **42**; 109–117.

GUICHERIT, R., (1974). Lood in het milieu; waar komt het vandaan en wat gebeurt er mee? (interview) Chemisch Weekblad 74-02-22 pagina M11-M12.

GUICHERIT, R., (1978) ed. Photochemical smogformation in the Netherlands. TNO - 's-Gravenhage.

HAAF, W., R. JAENICKE, (1977). Determination of the smallest particle size detectable in condensation nucleus counters by observation of the coagulation of SO_2 photo-oxidation products. J. Aerosol Sci. **8**/6; 447–456.

HAAR, G. L. TER, D. L. LENANE, J. N. HU, M. BRANDT, (1972). Composition, size and control of automotive exhaust particulates. J. Air Pollut. Control Assoc. **22**/1; 39–46.

HABIBI, K., (1970). Characterization of particulate lead in vehicle exhaust-experimental techniques. Environ. Sci. Technol. **4**; 239–248.

HALL, D. J., A. C. SIMMONDS, J. D. CAROLL, (1973). Experiments on the dispersal of exhaust material from diesel vehicles. Warren Spring Laboratory, CR 789 (AP).

HÄNEL, G., (1972a). The ratio of the extinction coefficient to the mass of atmospheric aerosol particles as a function of the relative humidity. Aerosol Sci. **3**; 455–460.

HÄNEL, G., (1972b). Computation of the extinction of visible radiation by atmospheric aerosol particles as a function of the relative humidity, based upon measured proporties. Aerosol Sci. **3**; 377–386.

HANNA, S. R., (1971). A simple method of calculating dispersion from urban area sources. J. Air Pollut. Control Ass. **21**/12; 774–777.

HANSON, H. A., (1974). The deliquescent properties of aerosols. PhD-thesis. Univ. Minnesota, Minneapolis.

HARTOG, H. DE, (1978). Röntgen-fluorescentie metingen aan verkeersaerosol in de IJ-tunnel. V-62 Vakgroep Luchtverontreiniging, L.H. Wageningen.

HAYDEN, J. A., (1976). Characterization of environmental plutonium by nuclear track techniques. pag. 648–660 in: ERDA symposium series 38, Washington.

HEINRICH, G., H. G. GÜSTEN, (1978). Belastung der Atmosphäre durch polycyclische aromatische Kohlenwasserstoffe und Blei im Raume Karlsruhe. Staub Reinhalt. Luft **38**/3; 94–100.

HIDY, G. M., (1972) ed. Aerosols and atmospheric Chemistry. Academic Press, New York.

HIDY, G. M., (1972). Removal processes of gaseous and particulate pollutants. In: S. I. RASOOL (1973).

HIRSCHLER, A., L. F. GILBERT, F. W. LAMB, L. M. NIEBYLSKI, (1957). Particulate lead compounds in automobile exhaust gas. Ind. Eng. Chem. **49**/7; 1131–1142.

HO, W., G. M. HIDY, R. M. GOVAN, (1974). Microwave measurements of the liquid water content of atmospheric aerosols. J. Appl. Meteorol. **13**/8; 871–879.

HOERNER, S. F., (1965). Fluid Dynamic Drag., ed.: Hoerner.

HOGAN, A. W., (1977). A simplified aerosol coagulation model. J. Air Pollut. Control Assoc., **27**/8; 759–762.

HOLLÄNDER, W. O., (1978). Das problem der Nachweisgrenze von Kondensationskernzählern für polydisperses Aerosol. Dissertatie, Heidelberg.

HOPKE, P. K., E. S. GLADNEY, G. E. GORDON, W. H. ZOLLER, A. G. JONES, (1976). The use of multivariatie analysis to identify sources of selected elements in the Boston urban aerosol. Atmos. Environ. **10**; 1015–1025.

HOVEN, I. VAN DER, (1968). Deposition of particles and gases. in Slade (1968) ed.

HUNTZICKER, J. J., S. K. FRIEDLANDER, C. I. DAVIDSON, (1975). Material balance of automobile-emitted lead in Los Angeles Basin. Environ. Sci. Technol. **9**/5; 448–457.

HUSAR, R. B., (1971). Coagulation of Knudsen aerosols. PhD-thesis. Univ. Minnesota, Minneapolis.

HUSAR, R. B., K. T. WHITBY, B. Y. LIU, (1972). Physical mechanisms governing the dynamics of Los Angeles smog aerosol. J. Colloid. Interf. Sci., **39**/1; 211–224.

ISRAEL, G. W., J. S. WHANG, (1975). Real time characterization of particulate emissions from mayor sources. Preprint Air Pollut. Control Assoc., 75–28.7.

JANSEN, B., J. BARDET (z.j.). The tunnel for motortraffic under the river IJ at Amsterdam. Dienst Publieke werken, Amsterdam.

JACKO, N. G., R. T. DUCHARME, (1973). Brake emissions: emission measurement from brake and clutch linings from selected mobile sources. Bendix Res. Lab., Southfield, Mich.

JACOBS, A. J., (1979). persoonlijke mededeling.

JENNINGS, S. G., R. K. ELLESON, (1977). Aerosol particle size distributions in the 0.25–5.0 μm radius range in Northern England. Atmos. Environ., **11**; 361–366.

KADOWAKI, S., (1976). Size distribution of atmospheric total aerosols, sulfate, ammonium and nitrate particulates in the Nagoya aerea. Atmos. Environ., **10**/1; 39–43.

KAISER, H., (1959). Die Strömung an Windschutzstreifen. Berichte des Deutschen Wetterdienst **53**, bd. 7.

KASUGA, S., N. SUZUKI, T. YAMADA, G. KINURA, K. INAGAKI, K. ONOE, (1977). Proceedings of the fourth international Clean Air Congress. Japanese Union of Air Pollution prevention Associations, Tokyo.

KLEPPER, B., D. K. CRAIG, (z.j.). Deposition of airborne particulates onto plant leaves. Batelle North-West Laboratories report BNWL-SA-4945.

KNMI, (1974). Luchtverontreiniging en weer. Staatsuitgeverij, 's-Gravenhage.

KNUTSON, E. O., J. D. STOCKHAM, (1978). Chicago winter aerosol size spectra. Environ. Sci. Technol. **12**/4; 452–456.

KOPS, J. A. M. M., (1976). The aerodynamic diameter and specific surface area of branched chain-like aggregates. Proefschrift: T.H. Eindhoven.

KOSLOW, E. E., W. H. SMITH, B. J. STASKAWICZ, (1977). Lead containing particles on urban leaf surfaces. Environ. Sci. Technol., **11**/10; 1019–1021.

LAHMANN, E., (1974). Messungen von Kraftfahrzeug-Abgasbestandteilen in Berlin. Schriftenreihe Ver.-Wasser-Boden-Luft Hygiene, Berlin, **42**; 91–100.

LAI, F. S., S. K. FRIEDLANDER, J. PICH, G. M. HIDY, (1972). The self preserving particle size distribution for brownian coagulation in the free molecule regime. J. Colloid Interf. Sci. **39**/2; 395–405.

LAMOTHE, P. J., T. G. DZUBAY, R. K. STEVENS, (1976). Chemical characterization of aerosols present during the general motors sulfate dispersion experiment. in: Stevens, R. K., P. J. Lamothe, e.a., (1976).

LARESGOITI, A., A. C. LOOS, G. S. SPRINGER, (1977). Particulate and smoke emission from a light duty diesel engine. Environ. Sci. Technol. **11**/10; 973–978.

LARESGOITI, A., G. S. SPRINGER, (1977). Sulfate and particulate emissions from an oxidation catalyst equipped engine. Environ. Sci. Technol. **11**/3; 285–292.

LARSEN, R. I., V. J. KONOPINSKI, (1962). Sumner tunnel airquality. Arch. Environ. Hlth. **5**; 597–608.

LEADERER, B. P., D. M. BERNSTEIN, J. M. DAISY, M. T. KLEIMAN, T. J. KNEIP, E. O. KNUTSON, M. LIPPMANN, P. J. LIOY, K. A. RAHN, D. SINCLAIR, R. L. TANNER, G. T. WOLFF, (1978). Summary of the New York summer aerosol study (NYSAS). J. Air Pollut. Control Assoc. **28**/4; 321–327.

LEE, R. E., R. K. PATTERSON, W. L. CRIDER, J. WAGMAN, (1971). Concentration and particle size distribution of particulate emissions in automobile exhaust. Atmos. Environ. **5**/4; 225–237.

LITH, W. J. G. VAN, J. A. A. SEVERIJNS, M. A. M. BOERSMA, (1976). Loodverontreiniging door het gemotoriseerde verkeer. PT-Procestechniek **31**/11; 659–665.

LITTLE, P., R. D. WIFFEN, (1977). Emission and deposition of petrol engine exhaust Pb - I deposition of exhaust Pb to plant and soil surfaces. Atmos. Environ. **11**/5; 437–447.

LITTLE, P., R. D. WIFFEN, (1978). Emission and deposition of lead from motor exhausts - II. Airborne concentration, particle size and deposition of lead near motorways. Atmos. Environ. **12**/6–7; 1331–1342.

LIU, B. Y. H., (ed.), (1976). Fine Particles. Aerosol generation, measurement, sampling and analysis. Academic Press Inc., New York.

LIU, B. Y. H., (1977). persoonlijke mededeling.

LIU, B. Y. H., J. K. AGARWAL, (1974). Experimental observation of aerosol deposition in turbulent flow. Aerosol Sci. **5**/2; 145–155.

LIU, B. Y. H., A. KAPADIA, (1977). A computer data reduction program for the electrical aerosol analyzer. Part. Technol. Lab. pub. 325.

LIU, B. Y. H., C. S. KIM, (1977). On the counting efficiency of condensation nuclei counters. Atmos. Environ. **11**/11; 1097–1100.

LIU, B. Y. H., K. W. LEE, (1975). An aerosol generator of high stability. Am. Ind. Hyg. Assoc. J. **36**/12; 861–865.

LIU, B. Y. H., D. Y. H. PUI, (1974a). A submicron aerosol standard and the primary, absolute calibration of the condensation nuclei counter. J. Colloid Interf. Sci. **47**/1; 155–171.

LIU, B. Y. H., D. Y. H. PUI, (1974). Electrical neutralization of aerosols. Aerosol Sci. **5**; 465–472.

LIU, B. Y. H., D. Y. H. PUI, (1975). On the performance of the electrical aerosol analyzer. J. Aerosol Sci. **6**/3; 249–264.

LIU, B. Y. H., D. Y. H. PUI, A. KAPADIA, (1976). Electrical aerosol analyzer: history, principle and data reduction. Part. Technol. Lab. pub. 303.

LIU, B. Y. H., K. T. WHITBY, D. Y. H. PUI, (1974). A portable electrical analyzer for size distribution measurement of submicron aerosols. J. Air Pollut. Control Assoc. **24**/11; 1067–1072.

MALDONADO, C., J. A. BULLIN, (1977). Modelling carbon monoxide dispersion from road ways. Environ. Sci. Technol. **11**/12; 1071–1076.

MARENCO, A., J. FONTAN, (1976). Influence of dry deposition on the residence time of particulate pollutants in the troposphere. in ERDA symposium series 38, Washington. p. 54–61.

MARLOW, W. H., P. C. REIST, G. A. DWIGGINS, (1976). Aspects of the performance of the electrical aerosol analyzer under nonideal conditions. J. Aerosol Sci. **7**/6; 457–462.

MATULA, R. A., (1973). Mechanisms of hydrocarbon formation in combustion processes. in Springer, G. S., D. J. Patterson, (1973) ed's.

MAY, H., E. PLASMANN, F. J. DREYHAUPT, W. MÜLLER, (1973). Abgasemissionen von Fahrzeugen mit Otto- und Dieselmotor in Grossstädten. F9-F13. in: VDI (1973).

MAY, K. R., (1973). The collison nebulizer: description, performance and application. J. Aerosol Sci. **4**/3, 235.

MESZAROS, A., (1977). An attempt to explain the relation between visual range and relative humidity on the basis of aerosol measurements. J. Aerosol Sci. **8**/1; 31–38.

MEULEN, A. VAN DER, A. PLOMP, F. OESEBURG, E. BURINGH, R. M. VAN AALST, W. HOEVERS, (1979). Calibration and comparison of single particle optical counters. Aangeboden aan Atmos. Environ.

MIDDLETON, P., J. BROCK, (1976). Simulation of aerosol kinetics. J. Colloid Interf. Sci. **54**/2; 249–264.

MIDDLETON, P., C. S. KIANG (z.j.). A kinetic aerosol model for the formation and growth of secondary sulfuric acid particles.

MILLER, M. S., FRIEDLANDER, S. K., G. M. HIDY, (1972). A chemical element balance for the Pasedena aerosol. J. Colloid Interf. Sci. **39**/1, 165–176.

MILLER, D. F., A. LEVY, D. Y. H. PUI, K. T. WHITBY, W. E. WILSON (JR), (1976). Combustion and photochemical aerosols attributable to automobiles. J. Air Pollut. Control Assoc. **26**/6; 576–581.

MINISTER FÜR ARBEIT, GESUNDHEIT UND SOZIALES DER LANDES NORDRHEIN-WESTFALEN, (1972). Emissionskataster Köln, Verlag T.U.V., Köln.

MORROW, P. E., T. T. MERCER, (1964). A point-to-plane electrostatic precipitator for particle size sampling. Am. Ind. Hyg. Ass. J. **28**; 8–14.

MÜLLER, H., (1928). Zur Theorie der elektrischen Ladung und der Koagulation der Kolloide. Kolloidchemische Beihefte **28**/6–7; 257–274.

MUROZUMI, M., T. J. CHOW, C. PATTERSON, (1969). Chemical concentrations of pollutant lead aerosols, terrestial dusts and sea salt in Greenland and Antartic snow strata. Geochim. Cosmochim. Acta **33**; 1247–1294.

NAIR, P. V. N., K. G. NOHRA, (1975). Growth of aqueous sulfuric acid droplets as a function of relative humidity. J. Aerosol Sci. **6**/3–4; 265–271.

NEWHALL, H. K., (1973). The kinetics of pollutant formation in spark-ignition engines. in: Springer, G. S., D. J. Patterson, (1973) ed's.

OKUYAMA, K., Y. KOUSAKA, T. YOSHIDA, (1976). Behaviour of aerosols undergoing brownian coagulation, brownian diffusion and gravitational settling in a closed chamber. J. Chem. Eng. Japan **9**/2; 140–146.

OKUYAMA, K., (1978). Coagulation of aerosol particles. PhD-thesis, Osaka, Japan.

PASQUILL, F., (1974). Atmospheric diffusion. John Wiley and sons. New York.

PETERSEN, W. B., (1976). Comparisons of dispersionmodel estimates with measured sulfate concentrations. in: Stevens, R. K., Lamothe, P. J., (1976) ed's.

PERRIN, M. L., (1976). Etude experimentale et theorique de la coagulation d'aerosols produits par radiolyse. Univ. Pierre et Marie Curie, Paris.

PERSSON, G., (1976). Environmental consequences. in: Royal Swedish Academy of Engineering Science (1976).

PIERSON, W. R., W. W. BRACHACZEK, (1974). Airborne particulate debris from rubber tires. Rubber Chem. Technol. **47**/5; 1275–1299.

PIERSON, W. R., W. W. BRACHACZEK, R. H. HAMMERLE, D. E. MCKEE, J. W. BUTLER, (1978). Sulfate emissions from vehicules on the road. J. Air Pollut. Control Assoc. **28**/2; 123–132.

PIERSON, W. R., D. E. MCKEE, (1978). Light scattering by particulate emissions from vehicules on the road. J. Air Pollut. Control Assoc. **28**/6; 604–607.

PLOMP, A., J. F. VAN DE VATE, R. M. VAN AALST, E. D. VAN HASSELT, J. C. H. VAN DER HAGE, P. HOFSCHREUDER, J. PAUWELS, J. MARIEN, (1979). Calibration and intercomparison of condensation nucleus counters. Atmos. Environ. **13**/1; 189–190.

PUI, D. Y. H., (1976). Experimental study of diffusion charging of aerosols. PhD-thesis. Univ. Minnesota, Minneapolis. Part. Technol. Lab. Pub. 289.

PUI, D. Y. H., (1977). persoonlijke mededeling.

PUI, D. Y. H., B. Y. H. LIU, (1976). Electrical aerosol analyzer: calibration and performance. Particle Technology Laboratory Publication: 304. University of Minnesota, Minneapolis.

PURSALL, B. R., A. L. KING, (1976). The aerodynamics and ventilation of vehicle tunnels. State-of-the-art review & bibliography. B.H.R.A. Fluid Engineering, Cranfield.

RAGLAND, K. W., R. L. DENNIS, (1975). Point source atmospheric diffusion model with variable wind and diffusivity profiles. Atmos. Environ. **9**; 175–189.

RAGLAND, K. W., J. J. PIERCE, (1975). Boundary layer model for air pollutant concentrations due to highway traffic. J. Air Pollut. Control Assoc. **25**/1; 48–51.

RANADE, M. B., D. T. WASAN, R. DAVIES, (1974). Coagulation of lead chloride aerosol in the presence of water vapor. Am. Inst. Chem. Engrs. J. **20**/2; 273–279.

RASOOL, S. I., (1973) ed. Chemistry of the lower atmosphere. Plenum Press, New York-London.

RAYNOR, G. S., (1970). Variation in entrance efficiency of a filter sampler with air speed, flow rate, angle and particle size. Am. Ind. Hyg. Assoc. J. **31**; 294–305.

REITSMA, T., (1978). Windprofile measurements above a maize crop. Pudoc, Wageningen.
RICH, T. A., (1955). A photo-electric nucleus comter with size discrimination. Geofisica pura e applicata. Vol **31** (1955) II; 60–65.
RIDDER, J. A. DE, (1975). Emissies door motorvoertuigen in Arnhem. V-32 Vakgroep Luchtverontreiniging. L.H. Wageningen.
RÖBIG, G., J. PORSTENDÖRFER, (1978). Experimentelle Untersuchungen über Washout für Aerosole < 1 μm Durchmesser. Staub Reinhalt. Luft **32**/8; 48.
ROYAL SWEDISH ACADEMY OF ENGINEERING SCIENCE, (1976). Methanol as a fuel. Symposium March 23, 1976. Stockholm.
RUSCHENBURG, S., (1968). Abgasmessungen bei simulierten Verkehrsstau in einem Strassenverkehrstunnel. Stadtehygiene **19**/6; 109–113.
SAFFMAN, P. G., J. S. TURNER, (1956). On the collison of drops in turbulent clouds. J. Fluid Mech. **1**/1; 16–30.
SAMPSON, R. E., G. S. SPRINGER, (1973). Effects of exhaust gas temperature and fuel composition of particulate emission from spark ignition engines. Environ. Sci. Technol. **7**/1; 55–60.
SCHRECK, R. M., J. J. MCGRATH, S. J. SWARIN, W. E. HERING, P. J. GROBLICKI, J. S. MCDONALD, (1978). Characterization of diesel exhaust perticulate under different engine load conditions. Air Pollut. Control Ass. preprint 78–33.5.
SCHWANECKE, R., (1975). Emissionskernzahlen, für industrielle und gewerbliche Anlagen, Hausbrand und Verkehr. Wasser, Luft und Betrieb. **19**/5; 242–246.
SCIBOR RYLSKI, A. J., (1975). Road vehicle aerodynamics. Penteck Press, London.
SEHMEL, G. A., (1971). Particle diffusivities and deposition velocities over a horizontal smooth surface. J. Colloid Interf. Sci. **37**/4; 891–906.
SEHMEL, G. A., (1973). Particle resuspension from an asphalt road. Atmos. Environ. **7**; 291–309.
SEHMEL, G. A., W. H. HODGSON, (1976). Predicted dry deposition velocities. pag. 399–422. in ERDA symposium series 38, Washington.
SEHMEL, G. A., F. D. LLOYD, (1976). Resuspension of plutonium at Rocky Flats. pag. 757–779 in ERDA symposium series 38, Washington.
SEM, G. J., (1975). Design and application of an electrical size analyzer for submicron aerosol particles. Instrument Society of America. reprint AID 75048.
SEM, G. J., (1976). Electrical aerosol analyzer: operation, maintenance and application. Aerosol measurement workshop, march 24–26, Univ. Florida, Gainesville, Ela.
SEM, G. J., K. T. WHITBY, G. M. SVERDRUP, (1976). Design, instrumentation, and operation of a large mobile air pollution laboratory for Achex. Particle Technology Laboratory Publication 296. University of Minnesota, Minneapolis.
SINCLAIR, D., R. J. COUNTESS, G. S. HOOPES, (1974). Effect of relative humidity on the size of atmospheric aerosol particles. Atmos. Environ. **8**/11; 1111–1117.
SLADE, D. H., (ed.), (1968). Meteorology and atomic energy. U.S. Atomic energy commission. Oak Ridge Tenn.
SLINN, W. G. N., (1976). Atmospheric aerosols: sources, concentrations and budgets. in: ERDA symposium series 38, Washington.
SMOLUCHOWSKI, M. VON, (1906). Ann. der Physik. (4th. ser.) **21**; 756.
SPRINGER, G. S., (1973). Particulate emission from spark-ignition engines. in: G. S. SPRINGER, D. J. PATTERSON, (1973) ed's.
SPRINGER, G. S., D. J. PATTERSON, (1973) ed's. Engine emissions, pollution formation and measurement. Plenum Press, New York.
STEPHENS, H. S., (1973). Advances in road vehicle aerodynamics. B.H.R.A. Fluid Engineering, Cranfield.
STEVENS, R. K., P. J. LAMOTHE, W. E. WILSON, J. L. DURHAM, T. G. DZUBAY, (1976). The general motors/environmental protection agency sulfate dispersion experiment, selected EPA research papers. EPA-600/3-76-035.
SVERDRUP, G. M., K. T. WHITBY, (1972). The effect of changing relative humidity on aerosol size distribution measurements. Particle Technology Laboratory Publication 278. University of Minnesota, Minneapolis.
TIERNY, G. P., W. D. CONNER, (1967). The hygroscopic effects on weight determinations of particulates

collected on glass fiber filters. Am. Ind. Hyg. Ass. J. **28**/4; 363–365.
TOLFO, F., (1977). A simplified model of aerosol coagulation. J. Aerosol Sci. **8**/1; 9–19.
UKEGUCHI, N., H. OKAMOTO, Y. IDE, (1977). Prediction of vehicular emission pollution around a tunnel mouth. p. 205–208. in: KASUGA, S., N. SUZUKI, et al. (1977).
VATE, J. F. VAN DE, A. PLOMP, C. DE JONG, E. L. M. VRINS, (1978). A battery-operated portable unit for electrostatic and impaction sampling of ambient aerosol for electron microscopy. Staub Reinhalt. Luft **38**/2; 53.
V.D.I., (1973). Proceedings of the third international Clean Air Congress. V.D.I.-Verlag GmbH, Düsseldorf.
D. VERWAART, (1978). Depositie van lood langs wegen. V-65. Vakgroep Luchtverontreiniging. L.H. Wageningen.
VOETBERG, J., B. BOECKHOUT, (1976). Onderzoek naar de toepasbaarheid van de tracer SF6 bij absorptie-onderzoek. V. 54 Vakgroep Luchtverontreiniging. L.H. Wageningen.
VOMELA, R. A., K. T. WHITBY, (1967). The charging and mobility of chain aggregate smoke particles. J. Colloid Interf. Sci. **25**; 568–576.
VOLOSHSCHUCK, V. M., T. A. MUYDINOVA, (1974). Wash out of fine aerosol particles from the atmosphere. Izv. Atmospheric and Oceanic-Physics **10**/1; 44–55.
WADDEN, R. A., J. E. QUON, H. M. HULBURT, (1974). A model of a growing, coagulating aerosol. Atmos. Environ. **8**; 1009–1028.
WALTER, H., (1973). Coagulation and size distribution of condensation aerosols. Aerosol Sci. **4**/1; 1–15.
WHANG, J., G. W. ISRAEL, J. M. ONDOV, (1974). Motor vehicule studies. in: G. E. GORDON, (1974) dir.
WHANG, J., G. W. ISRAEL, T. BURDA, M. GERMANI, E. LEPEL, D. NIES, W. H. ZOLLER, (1975). Motor vehicle studies. in: G. E. GORDON (1975) dir.
WHITBY, K. T., (1973). On the multimodal nature of atmospheric aerosol distributions. Particle Technology Laboratory Publication 218. University of Minnesota, Minneapolis.
WHITBY, K. T., (1975). Electrical measurement of aerosols. in: LIU, B. Y. H., (1976).
WHITBY, K. T., W. E. CLARK, V. A. MARPLE, G. M. SVERDRUP, G. J. SEM, K. WILLEKE, B. Y. H. LIU, D. Y. H. PUI, (1975). Characterization of California aerosols I. Size distribution of freeway aerosol. Atmos. Environ. **9**/5; 463–482.
WHITBY, K. T., D. B. KITTELSON, B. K. CANTRELL, N. J. BARSIC, D. F. DOLAN, L. T. TARVESTAD, D. J. NIEKEN, J. L. WOLF, J. R. WOOD, (1976). Aerosol size distributions and concentrations measured during the General Motors proving grounds sulfate study. in: STEVENS, R. K., P. J. LAMOTHE, e.a., (1976).
WHITBY, K. T., B. Y. H. LIU, R. B. HUSAR, N. J. BARSIC, (1972). The minnesota aerosol analyzing system used in the Los Angeles smog-project. Pag. 189–217 in: G. W. HIDY (1972) ed.
WILLEKE, K., K. T. WHITBY, (1975). Atmospheric aerosols: size distribution interpretation. J. Air Pollut. Control Assoc. **75**/5; 529–534.
WILLEKE, K., K. T. WHITBY, W. E. CLARK, V. A. MARPLE, (1974). Size distributions of Denver aerosols – a comparison of two sites. Atmos. Environ. **8**/6; 609–633.
WILSON, W. E., L. L. SPILLER, T. G. ELLESTAD, P. J. LAMOTHE, T. G. DZUBAY, R. K. STEVENS, E. S. MARCIAS, J. D. HUSAR, R. B. HUSAR, K. T. WHITBY, D. B. KITTELSON, B. K. CANTRELL, (1977). General motors sulfate dispersion experiment: summary of EPA-measurements. J. Air Pollut. Control Assoc. **27**/1; 46–51.
WINKLER, P., C. JUNGE, (1972). The growth of atmospheric aerosol particles as a function of relative humidity part 1: method and measurements at different locations. J. Rech. Atmospheriques **6**/1–3; 617–638.
WINKLER, P., (1973). The growth of atmospheric aerosol particles as a function of the relative humidity II – an improved concept of mixed nuclei. J. Aerosol Sci. **4**/5; 373–387.
YOSHIDA, T., K. OKUYAMA, Y. KOUSAKA, Y. KIDA, (1975). Change in particle size distributions of polydisperse aerosols undergoing brownian coagulation. J. Chem. Eng. Japan **8**/4; 317–322.
ZEBEL, G., (1958). Zur Theorie der Koagulation elektrisch ungeladener Aerosole. Kolloid Z. **156**/2; 102–107.
ZIMMERMAN, J. R., R. S. THOMSON, (1975). User's guide for HIWAY, a highway air pollution model. EPA-650/4-74-008.

BIJLAGE 1. Aerosol concentraties in deeltjes/cm³ gemeten met electrische verdelingsanalysator, meethoogte 3,5 m.

Wegproeven Wageningen	17 juni 1977					
Metingnummer		1	2	3		4
Afstand		80 m	40 m	20 m		145 m
	voorbe-lasting				voorbe-lasting	
diameter in µm						
0,01	2,88 E3	1,42 E4	4,80 E4	2,76 E4	3,11 E3	6,63 E3
0,02	4,60 E3	1,61 E4	2,05 E4	2,06 E4	4,97 E3	1,51 E4
0,04	8,41 E2	2,97 E3	0	0	8,21 E2	1,91 E3
0,07	9,12 E2	1,70 E3	2,25 E3	1,99 E3	8,94 E2	1,38 E2
0,13	4,39 E2	4,59 E2	9,55 E2	6,78 E2	4,15 E2	5,56 E2
0,29	2,48 E2	2,68 E2	4,70 E2	3,88 E2	2,30 E2	8,21 E2
0,42	9,4 E1	9,1 E1	1,61 E2	1,16 E2	9,6 E1	1,16 E2
0,75	3,8 E1	3,8 E1	4,5 E1	3,2 E1	3,5 E1	4,5 E1

Wegproeven Wageningen	20 juni 1977						
Metingnummer	1		2	3	4	5	6	
Afstand	80 m		40 m	20 m	145 m	20 m	145 m	
		voorbe-lasting						voorbe-lasting
diameter in µm								
0,01	3,21 E4	3,64 E3	8,40 E4	8,77 E4	8,12 E3	5,87 E4	2,52 E4	5,25 E3
0,02	2,33 E4	4,19 E3	2,93 E4	5,47 E4	1,01 E4	4,34 E4	1,85 E4	9,73 E3
0,04	2,55 E3	6,90 E2	2,52 E3	2,07 E3	1,74 E3	2,64 E3	2,73 E3	2,29 E3
0,07	2,17 E3	6,34 E2	2,06 E3	3,58 E3	1,57 E3	3,95 E3	3,40 E3	2,59 E3
0,13	1,03 E3	2,72 E2	9,98 E2	1,16 E3	6,41 E2	1,61 E3	1,45 E3	1,13 E3
0,24	3,62 E2	1,28 E2	2,65 E2	3,93 E2	2,38 E2	4,57 E2	4,56 E2	3,90 E2
0,42	9,6 E1	4,1 E1	7,7 E1	8,4 E1	8,4 E1	1,24 E2	1,43 E2	1,24 E2
0,75	2,6 E1	1,7 E1	3,3 E1	3,3 E1	3,3 E1	4,0 E1	5,3 E1	4,6 E1

Wegproeven Wageningen	21 juni 1977					
Metingnummer		1	2	3		4
Afstand		80 m	40 m	20 m		145 m
	voorbe-lasting				voorbe-lasting	
diameter in µm						
0,01	6,85 E3	1,19 E4	3,26 E4	2,90 E4	0	9,47 E3
0,02	5,99 E3	1,91 E4	2,61 E4	2,51 E4	1,31 E4	1,09 E4
0,04	1,90 E3	2,32 E2	1,88 E3	6,75 E3	2,39 E3	2,64 E3
0,07	1,94 E3	1,95 E3	2,54 E3	4,17 E3	2,30 E3	2,94 E3
0,13	7,91 E2	8,08 E2	8,78 E2	9,94 E2	8,23 E2	1,15 E3
0,24	2,70 E2	3,16 E2	3,36 E2	4,77 E2	3,45 E2	4,35 E2
0,42	8,2 E1	1,00 E2	9,8 E1	1,16 E2	1,05 E2	1,27 E2
0,75	2,7 E1	3,1 E1	3,1 E1	3,9 E1	3,7 E1	4,2 E1

BIJLAGE 2. Meteorologische waarnemingsuitkomsten Wageningen.

Datum	17 juni 1977				20 juni 1977						21 juni 1977			
Metingnummer	1	2	3	4	1	2	3	4	5	6	1	2	3	4
Windsnelheid m/s	–	2,3	2,3	2,0	2,1	1,9	1,4	2,3	2,0	2,1	1,7	1,8	1,9	1,8
Windrichting ten opzichte van														
wegas op 20 m in graden	74	72	83	68	72	77	72	32	58	48	131	126	122	126
wegas op 80 m in graden	74	71	75	60	61	64	72	31	54	53	128	123	136	145
relatieve vochtigheid %	66	85	73	73	82	84	80	81	78	82	61	63	63	59
temperatuur graden celcius	16	17	17	17	12	12	13	13	13	13	17	17	18	19

BIJLAGE 3. Zwavelhexafluoride concentraties in $\mu g/m^3$ in Wageningen; gestandariseerd naar lijnbron 273 $\mu g/m \cdot s$.

Datum		17 juni 1977				20 juni 1977						21 juni 1977			
Metingnummer		1	2	3	4	1	2	3	4	5	6	1	2	3	4
afstand	hoogte														
20 m	4 m	26.08	20.60	17,27	18,75	17,66	18,71	34,37	17,75	20,93	15,27	17,84	–	15,00	17,27
20 m	2 m	41,89	28,31	17,54	27,15	28,86	24,33	34,77	18,40	23,72	14,23	23,06	19,48	15,18	20,91
40 m	2 m	19,06	13,12	14,57	14,76	29,97	16,98	13,75	10,13	14,69	12,50	9,69	12,13	9,52	9,81
80 m	2 m	10,20	8,18	15,07	8,62	8,23	8,39	7,21	5,50	9,03	8,61	3,43	5,30	4,83	4,51
145 m	2 m	5,90	3,49	4,70	4,07	4,41	5,70	4,89	3,00	4,39	4,80	1,71	2,51	2,54	1,86
meetauto		11,22	11,78	16,45	4,23	8,75	8,96	20,89	3,12	25,82	4,48	3,41	10,09	12,73	2,01
meetauto		11,78	12,16	17,53	3,95	8,84	13,78	–	3,21	25,11	4,52	3,39	10,07	13,10	1,83

BIJLAGE 4. Aerosolconcentraties in deeltjes/cm³ gemeten met een condensatiekernenteller in Wageningen en Veenendaal.

Metingnummer		1	2	3	4	5	6	
Datum	voorbelasting							voorbelasting
17 juni 1977	2,97 E3	–	5,41 E4	2,51 E4	6,04 E4	–	–	4,58 E3
20 juni 1977	2,50 E3	5,69 E4	3,49 E4	6,51 E4	2,65 E4	4,97 E4	7,46 E4	–
21 juni 1977	5,81 E3	2,32 E4	3,63 E4	–	9,42 E4	–	–	–
4 april 1978	3,90 E3	3,48 E4	3,34 E4	2,27 E4	2,00 E4	2,48 E4	–	4,48 E3
6 april 1978	8,87 E3	3,83 E4	4,39 E4	–	7,07 E4	7,16 E4	5,67 E4	1,38 E4

BIJLAGE 5. Verkeersdichtheid voertuigen per minuut.

Datum	Plaats	metingnummer					
		1	2	3	4	5	6
17 juni 1977	Wageningen	8,4	11,3	12,0	16,5	–	–
20 juni 1977	Wageningen	5,9	9,0	9,3	9,6	11,0	13,2
21 juni 1977	Wageningen	10,0	9,3	10,3	10,7	–	–
4 april 1978	Veenendaal	9,1	9,9	11,3	12,4	15,3	–
6 april 1978	Veenendaal	9,0	10,8	–	11,7	13,7	14,4

BIJLAGE 6. Aerosolconcentraties in deeltjes/cm³ gemeten met elektrische verdelingsanalysator, Wegproeven Veenendaal.
4 april 1978

Metingnummer		1	1	1	2	2			3
Afstand		80 m	30 m	30 m	120 m	120 m			30 m
meethoogte	voorbe-	3,7 m	1,2 m	0,35 m	1,5 m	0,35 m	voorbe-	voorbe-	3,7 m
diam. in µm	lasting						lasting	lasting	
0,01	3,80 E3	6,91 E4	1,11 E4	1,62 E4	7,14 E4	1,88 E4	3,24 E3	5,79 E3	6,03 E4
0,02	3,08 E3	1,81 E4	1,49 E4	2,36 E4	2,72 E4	1,09 E4	5,51 E3	4,28 E3	1,93 E4
0,04	8,56 E2	0	7,30 E3	2,60 E3	3,10 E3	2,20 E3	1,38 E3	1,01 E3	0
0,07	1,02 E3	3,97 E3	2,49 E3	2,17 E3	2,10 E3	2,64 E3	2,08 E3	1,69 E3	1,62 E3
0,13	6,16 E2	9,84 E2	9,23 E2	1,72 E3	1,15 E3	1,57 E3	1,23 E3	1,16 E3	2,23 E3
0,24	2,30 E2	2,85 E2	1,94 E2	2,74 E2	3,65 E2	5,00 E2	3,95 E2	4,36 E2	5,36 E2
0,42	7,5 E1	7,7 E1	1,43 E2	7,1 E1	9,9 E1	1,14 E2	1,06 E2	1,14 E2	1,22 E2
0,75	2,3 E1	2,3 E1	3,2 E1	2,8 E1	3,2 E1	3,4 E1	2,9 E1	2,8 E1	2,5 E1

Metingnummer	3	3	4	4	5	5	5	
Afstand	30 m	30 m	120 m	120 m	60 m	60 m	60 m	
meethoogte	1,2 m	0,35 m	1,5 m	0,35 m	3,7 m	1,2 m	0,35 m	voorbe-
diam. in µm								lasting
0,01	0	0	0	3,33 E4	3,65 E4	1,11 E4	3,36 E4	3,90 E3
0,02	3,63 E3	5,03 E4	1,48 E4	1,18 E4	1,32 E4	1,57 E4	1,74 E4	3,02 E3
0,04	8,08 E3	1,37 E4	2,38 E3	1,07 E3	1,59 E3	1,27 E3	1,85 E3	1,02 E3
0,07	1,96 E3	2,21 E3	1,87 E3	1,80 E3	2,04 E3	1,85 E3	2,24 E3	1,30 E3
0,13	2,12 E3	1,82 E3	1,04 E3	1,23 E3	8,83 E2	1,07 E3	1,30 E3	7,98 E2
0,24	7,44 E2	4,95 E2	3,52 E2	4,21 E2	3,47 E2	3,57 E2	4,28 E2	2,60 E2
0,42	1,30 E2	1,30 E2	1,00 E2	1,06 E2	1,00 E2	9,7 E1	9,8 E1	8,3 E1
0,75	3,2 E1	3,0 E1	2,8 E1	3,0 E1	3,2 E1	3,2 E1	3,4 E1	3,0 E1

6 april 1978

Metingnummer		1	1	1	2	2	
Afstand		60 m	60 m	60 m	120 m	120 m	
meethoogte	voorbe-	3,7 m	1,2 m	0,35 m	1,5 m	0,35 m	voorbe-
diam. in µm	lasting						lasting
0,01	1,41 E4	1,18 E5	5,68 E4	0	4,82 E4	2,99 E4	2,18 E4
0,02	1,49 E4	3,25 E4	1,61 E4	6,18 E4	3,13 E4	1,39 E4	1,57 E4
0,04	3,28 E3	7,91 E3	2,41 E3	5,42 E2	2,96 E3	7,73 E3	2,78 E3
0,07	3,99 E3	6,07 E3	4,43 E3	8,29 E3	4,56 E3	4,73 E3	3,34 E3
0,13	2,70 E3	2,89 E3	3,33 E3	3,16 E3	2,13 E3	1,90 E3	9,53 E2
0,24	7,58 E2	7,03 E2	1,08 E3	7,49 E2	4,93 E3	5,34 E2	2,29 E2
0,42	1,29 E2	1,12 E2	1,47 E2	1,24 E2	7,5 E1	7,6 E1	3,4 E1
0,75	2,8 E1	2,4 E1	2,6 E1	2,4 E1	1,5 E1	1,5 E1	7 E0

6 april 1978

Metingnummer Afstand meethoogte diam. in µm	voorbe- lasting	4 120 m 1,5 m	5 120 m 1,5 m	5 120 m 0,35 m	6 60 m 3,7 m	6 60 m 1,2 m	6 60 m 0,35 m	voorbe- lasting
0,01	1,15 E3	0	8,21 E3	7,38 E3	3,43 E4	5,05 E4	3,43 E4	8,42 E3
0,02	1,31 E4	2,98 E4	2,66 E4	3,45 E4	1,67 E4	2.84 E4	1,77 E4	1,08 E4
0,04	2,12 E3	4,43 E3	6,75 E3	5,39 E3	2,12 E3	3,30 E3	3,39 E3	4,18 E3
0,07	2,37 E3	2,45 E3	3,85 E3	3,55 E3	4,41 E3	4,54 E3	4,49 E3	3,48 E3
0,13	1,02 E3	1,18 E3	1,13 E3	1,16 E3	1,32 E3	1,59 E3	1,24 E3	1,09 E3
0,24	2,00 E2	2,46 E2	2,44 E2	2,99 E2	2,58 E2	2,78 E2	2,65 E2	2,15 E2
0,42	3,6 E1	3,7 E1	3,8 E1	4,6 E1	4,7 E1	4,4 E1	4,9 E1	3,4 E1
0,75	7 E0	5 E0	5 E0	8 E0	9 E0	9 E0	8 E0	6 E0

BIJLAGE 7. Zwavelhexafluoride concentraties in µm/m³ in Veenendaal; gestandariseerd naar lijnbron 50 µg/m·s.

datum		4 april 1978						6 april 1978					
metingnummer afstand	hoogte	1	2	3	4	5	6	1	2	3	4	5	6
30 m	3,7 m	2,42	1,85	2,27	–	–	–	–	–	–	–	–	–
30 m	2,0 m	3,48	2,53	3,88	3,73	3,77	–	1,65	1,74	–	1,78	1,56	1,52
30 m	1,2 m	3,99	2,87	4,72	–	–	–	–	–	–	–	–	–
30 m	0,7 m	4,49	3,10	5,12	–	–	–	–	–	–	–	–	–
30 m	0,35 m	4,63	3,17	5,23	–	–	–	–	–	–	–	–	–
60 m	3,7 m	–	–	–	1,48	2,05	1,47	1,60	1,20	0,82	0,98	0,81	0,79
60 m	2,0 m	2,15	2,13	1,82	2,13	2,38	1,88	1,85	1,48	0,98	0,95	0,99	0,96
60 m	1,2 m	–	–	–	2,56	2,59	2,27	1,98	1,60	1,10	1,08	0,94	0,91
60 m	0,7 m	–	–	–	2,48	2,53	2,36	2,20	1,62	0,96	1,10	0,98	0,95
60 m	0,35 m	–	–	–	2,78	2,74	2,42	2,26	1,58	1,11	1,26	1,05	1,02
90 m	2,0 m	2,24	1,44	2,18	1,94	2,14	–	1,07	0,91	–	0,82	0,83	0,81
120 m	2,0 m	1,73	1,00	1,31	1,23	1,70	–	1,13	0,86	–	0,59	0,70	0,68
	0,35 m	–	1,20	–	1,58	–	–	–	0,77	–	0,72	0,79	0,76

BIJLAGE 8. Meteorologische waarnemingsuitkomsten, Veenendaal.

Datum	4 april 1978						6 april 1978					
Metingnummer	1	2	3	4	5	6	1	2	3	4	5	6
Windsnelheid m/s												
$u_{3,7}$	3,80	3,81	4,08	4,68	3,99	3,76	3,40	3,81	4,24	4,85	4,59	4,45
$u_{2,0}$	3,41	3,37	3,76	4,22	3,56	3,33	2,83	3,57	4,05	4,73	4,49	4,36
$u_{1,2}$	3,15	3,12	3,42	3,89	3,28	3,08	2,69	3,30	3,67	4,42	4,19	4,05
$u_{0,7}$	2,85	2,84	3,08	3,50	2,96	2,79	2,48	3,09	3,47	4,02	3,81	3,69
$u_{0,35}$	2,41	2,39	2,56	2,93	2,47	2,37	2,14	2,67	3,03	3,50	3,29	3,19
wrijvingswindsnelheid cm/s	23,3	23,4	25,8	29,3	25,3	23,1	15,0	19,2	20,8	23,7	22,8	22,2
ruwheidslengte cm	0,49	0,58	0,63	0,62	0,68	0,57	0,10	0,12	0,10	0,08	0,09	0,10
relatie vochtigheid %	98	93	86	91	92	–	60	42	–	28	35	32
temperatuur graden C	5	6	8	8	7	–	4	7	–	10	9	10
windrichting ten opzichte van wegas in graden	76	76	55	72	72	82	90	90	90	90	90	90

BIJLAGE 9. Aerosolconcentraties in deeltjes/cm³ gemeten met de elektrische verdelingsanalysator in de IJ-tunnel.

Metingnummer	1	2	3	4	5	6
Diam. in µm						
0,01	1,33 E6	1,13 E6	5,34 E5	8,82 E5	4,74 E5	6,87 E5
0,02	2,96 E6	2,03 E6	1,49 E6	1,06 E6	4,58 E5	7,44 E5
0,04	5,99 E5	3,48 E5	2,55 E5	1,55 E5	9,73 E4	1,29 E5
0,07	3,74 E5	1,92 E5	1,67 E5	9,67 E4	5,84 E4	8,45 E4
0,13	8,06 E4	3,91 E4	4,15 E4	2,65 E4	1,40 E4	1,88 E4
0,24	1,42 E4	6,19 E3	7,61 E3	5,17 E3	2,96 E3	3,63 E3
0,42	2,34 E3	9,96 E2	1,22 E3	8,60 E2	5,22 E2	6,80 E2
0,75	4,39 E2	1,74 E2	2,83 E2	2,01 E2	1,22 E2	1,36 E2

BIJLAGE 10. Andere metingen in de IJ-tunnel.

Metingnummer	1	2	3	4	5	6
Concentratie in deeltjes/cm³ gemeten met condensatiekernenteller	1,59 E6	1,34 E6	9,55 E5	8,32 E5	4,32 E5	5,65 E5
Voorbelasting condensatiekernen	5,48 E4	4,47 E4	6,46 E4	3,64 E4	3,17 E4	3,12 E4
Temperatuur in graden C	2	0	0	0	0	0
Relatieve vochtigheid in %	76	82	–	85	90	85

CURRICULUM VITAE

Eltjo Buringh is op 18 juli 1949 te Wageningen geboren. Na het eindexamen gymnasium B is aan de Landbouwhogeschool de studierichting milieuhygiëne gevolgd. Het ingenieursexamen heeft twee hoofdvakken omvat: gezondheidsleer en kennis luchtverontreiniging. In 1975 is een driejarig promotie onderzoek gestart op de vakgroep luchthygiëne en -verontreiniging, waarvan deze dissertatie het resultaat is.

Tijdens en na zijn studie is, soms in samenwerking met anderen, gepubliceerd over diverse onderwerpen. Deze betreffen ondermeer de invloed van tolueen op de gezondheid van arbeiders in een grafische industrie, de invloed van ploegendienst op de gezondheid en het verband tussen ziekteverzuim en conjunctuur in de textielindustrie. Verder is een tweetal artikelen geschreven over het meten van aerosolen in de buitenlucht en geschreven over verkeerslawaai in een stad, het Nederlandse milieubeleid en over de vergelijking van een aantal optische deeltjestellers. Van zeer recente datum zijn artikelen over het atmosferisch gedrag en de emissie van verkeersaerosolen. Naar aanleiding van deze publikaties zijn voor verschillende universiteiten en congressen lezingen gehouden. De auteur is docent geweest bij een aantal cursussen. Sinds november 1979 is de auteur beleidsmedewerker 'mens en arbeid' bij de Federatie Nederlandse Vakbeweging.