

NILU  
TEKNISK NOTAT NR. 8/77  
REFERANSE: 03575  
DATO: AUGUST 1977

SAMFLYGING OVER DANMARK  
13 OG 14 JULI 1976

EN SAMMENLIKNING AV PRØVETAKERUTSTYR  
FOR SVOVELDIOKSYD OG SULFAT  
(NMR Prosjekt 7b)  
Yngvar Gotaas

NORSK INSTITUTT FOR LUFTFORSKNING  
POSTBOKS 130, 2001 LILLESTRØM  
NORGE

## SAMFLYGING OVER DANMARK 13 OG 14 JULI 1976

### EN SAMMENLIKNING AV PRØVETAKERUTSTYR FOR SVOVELDIOKSYD OG SULFAT (NMR-Prosjekt 7b)

#### 1 INNLEDNING

Prøvetakerutstyr som brukes i de nordiske land for måling av svoveldioksyd og sulfatkonsentrasjoner i luften ved bruk av fly ble sammenliknet i laboratoriet på Risø i desember 1975, (NMR-prosjekt 7a). Som et ledd i OECD-prosjektet "Long Range Transport of Air Pollutants", foretok NILU og MISU en samflyging med sine to fly over Sverige i 1974. Overensstemmelsen var meget bra, når en tar i betraktning den usikkerhet som enhver enkeltmåling er underlagt.

Aerosollaboratoriet ved Risø og NILU bruker begge filtre for oppsamling av svovelforbindelser, men analysemetodene er forskjellige. Det samme gjelder også til en viss grad filtermontering. Det var derfor ønskelig å foreta samtidige målinger fra de to fly i samme luftområder. Under samflygingene utenfor Sjælland, 13. og 14. juli, ble det holdt en innbyrdes avstand på ca. 100 m mellom de to fly.

#### 2 PRØVETAKERUTSTYR - ANALYSEMETODER

Risø-laboratoriet bruker et C-47 fly fra det danske flyvåpen (den militære utgave av DC-3, "Dakota"). Luftinntaket er plassert på en utskiftbar dør med filterholderne lett tilgjengelige i kabinen. I holderen er to filtre plassert i serie. Filtrene har form som to ruller som blir trukket fram etterhvert. Det første samler aerosoler. Det andre er impregnert med kaliumhydroksyd for oppsamling av svoveldioksyd. Instrumenteringen er for øvrig beskrevet utførlig av Heidam (1). Svovelmengden på

filtrene bestemmes ved isotopfortynningsanalyse (isotopic dilution analysis - IDA). Deteksjonsgrensen oppgis til 50 ng S og nøyaktigheten til 10% (1).

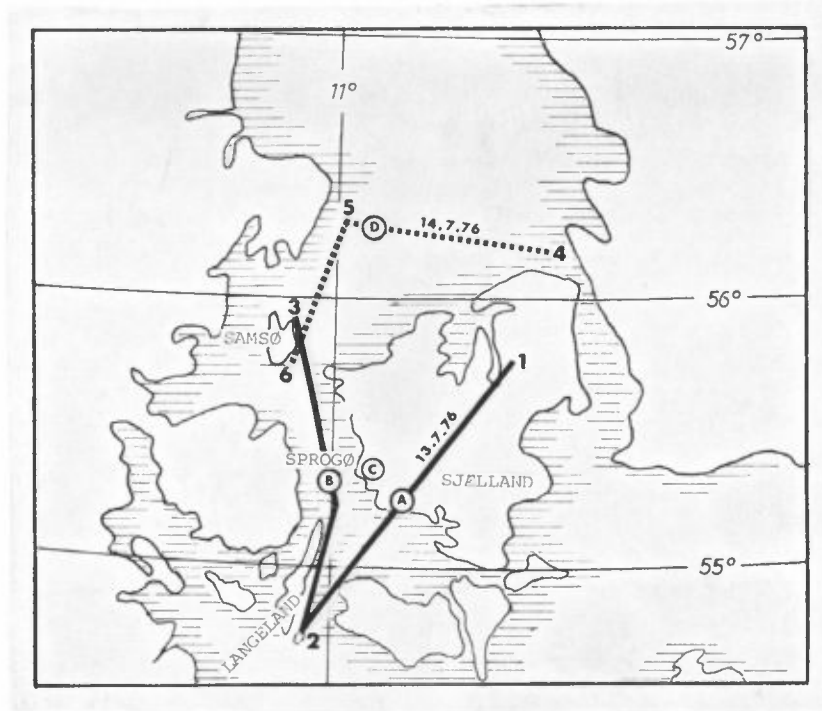
NILU bruker sitt eget to-motors Piper Aztec fly. Filtrene er også her plassert i serie, men luftinntak og filterholdere er plassert i nesen på flyet. Eksponeringen må derfor fjernstyres. Analysen foregår på Institutt for Atomenergi (IFA) på Kjeller. Det brukes en røntgen-fluorescens-metode (RF-metoden) som de selv har utviklet (2). Denne har vist seg spesielt egnet til analyse av filtre med små svovelmengder.

### 3 SAMFLYGINGENE 13. OG 14. JULI

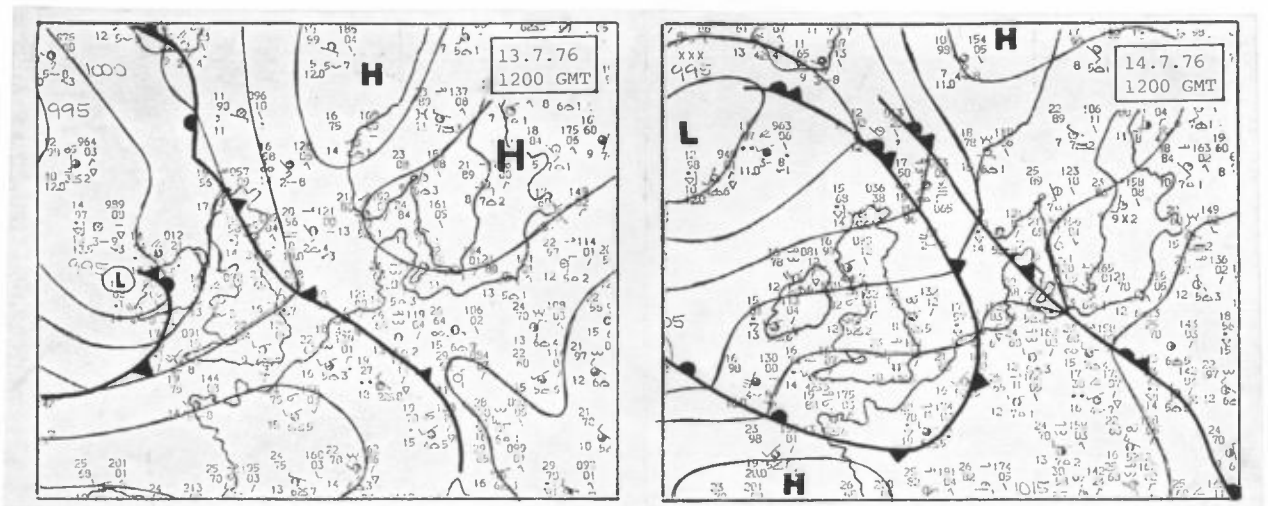
Figur 1 viser flyruter og målestrekninger.

Den 13. juli ble det først fløyet til sørenden av Langeland. Over strekningen Langeland-Samsø ble det så utført målinger i 3 forskjellige høyder. Den 14. juli foregikk prøvetakingen nord og nordvest av Sjælland, også denne gang i 3 forskjellige høyder.

Værkartene, figur 2, viser rolige værforhold, vinder fra sørøst og sør. En svak front over Nordsjøen trakk inn over Danmark 14. juli. Den ga svært disig luft og lavt skydekke over målestrekningene. Toppen av skylaget (dislaget) trer tydelig fram i 2000 fot (600 m) på temperatursonderingen fra København 14. juli, figur 3. Den 13. juli var luften tørrere og uten inversjoner. De stiplede linjer antyder temperaturfordelingen med høyden basert på flymålingene, samt på observerte sjøtemperaturer fra tyske og svenske kart.



Figur 1: Flyrute 13 og 14 juli 1976



Figur 2: Verkart, 13 og 14 juli 1976, 1200 GMT.

#### 4 RESULTATER

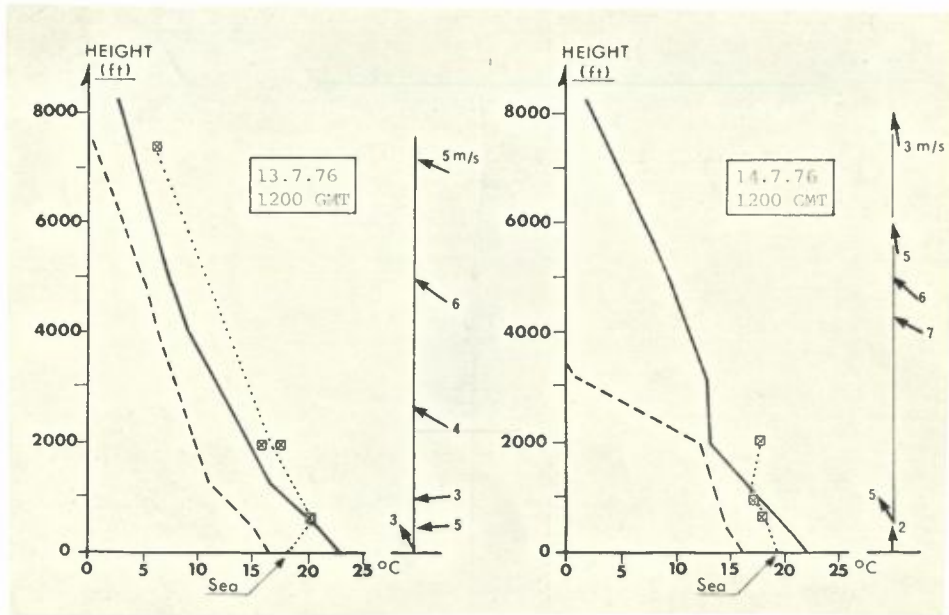
Tabell 1 gir de enkelte analyseresultater, samt tid og sted for målingene. Midtpunktene av de tilsvarende flystrekninger tjener som referanser.

Samtlige filtre, også de ueksponerte, ble først tatt med til Kjeller og analysert med XRF-metoder. Deretter ble de sendt til Risø for analyse med IDA-metoden.

Tabell 1 viser dobbelt sett av verdier for NILU-filtre merket henholdsvis (a) og (b). Dette viser til at det ble brukt to forskjellige typer prøvetakere. Det første settet (a) stammer fra "HEGO"-prøvetakeren. Den har magnetventiler som styrer luftstrømmen inn i filterholderene etter valg. Den annen (b), "Karusellen", har filterholdere plassert langs kanten av en dreibar skive. (Det var denne siste type som ble brukt i LRTAP-prosjektet.) Den gir imidlertid ingen muligheter for gjentatte eksponeringer.

I NILU-flyet er det også et integrerende nefelometer. Det registrerer lysspredningen fra partikler med diameter mellom  $0.1 \mu\text{m}$  og  $1 \mu\text{m}$  (3). For forholdet mellom sulfatkonsentrasjonen i luften og den målte spredningskoeffisient,  $b_{sp}$ , er det på grunnlag av en serie flymålinger estimert verdien  $0.2 \text{ gm}^{-2}$  (4), men med en betydelig spredning rundt denne middelvei. Dissipasjonen,  $\epsilon$ , av den turbulente mekaniske energi ble registrert med et MRI-instrument utviklet av MacCready (5). Fra slike målinger kan flere turbulens- og diffusjonsparametre estimeres.

$\text{SO}_2$ -konsentrasjonene ble kontinuerlig registrert i NILU-flyet med et instrument basert på et coulometrisk prinsipp og konstruert av Novak (6), og som NILU har videreutviklet. Det har nå fått en responstid på noen få sekunder og en relativ nøyaktighet av  $1 \mu\text{gm}^{-3}$  eller bedre. De absolutte verdier er imidlertid noe usikre, på grunn av vanskeligheter med nøyaktig nullpunktbestemmelse.

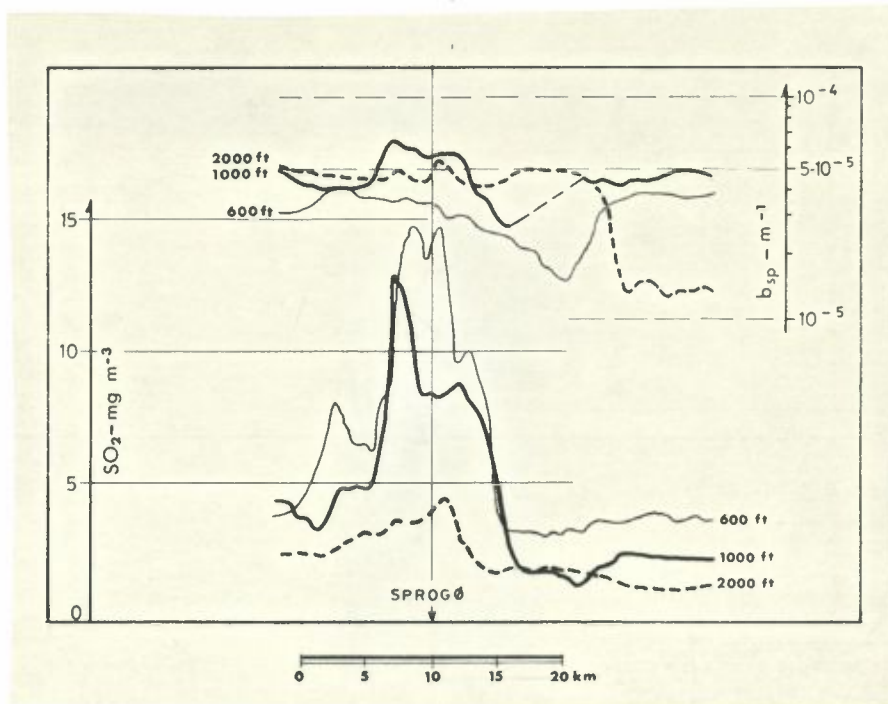


Figur 3: Vertikalsnitt av temperatur og fuktighet 13 og 14 juli 1976

Heltrukne linjer: temperatur - København sondering

Stiplede linjer: duggpunktsmålinger, København sondering

☒ : temperatur målt fra fly



Figur 4: Kopi av registreringer, 13 juli 1976

Tabell 1: Analyseresultater. Midtpunktene av flystrekingene er referensepunkter.

	13 juli					14 juli		
	0940	1027	1100	1133	1230	0913	0940	1024
Posisjon N	5513	5522	5522	5522	5530	5614	5614	5614
- " - E	1129	1058	1058	1058	1110	1112	1112	1112
- " - kart	A	B	B	B	C	D	D	D
Høyde (fot)	2000	650	1000	2000	7500	2000	1000	750
Varighet (min)	30	30	30	30	60	30	30	30
Flystreking (se kart)	1-2	2-3	3-2	2-3	3-2-1	6-7-8	8-7-6	6-7-8
<u>NILU filtre</u>								
SO <sub>2</sub> - RF (a) µgm <sup>-3</sup>	1.7	2.1	2.1	2.1	<0.1	<0.1	3.4	2.5
- RF (b)	1.7	2.3	2.4	1.4	<0.1	0.2	3.8	2.9
- IDA (a)	1.8	1.5	2.2	1.9	0.3	<0.1	2.2	1.9
- IDA (b)	4.1	2.0	1.4	1.0	<0.1	<0.1	1.0	1.8
SO <sub>4</sub> - RF (a) µgm <sup>-3</sup>	4.1	4.1	4.0	4.9	<0.6	5.0	11.6	10.9
- RF (b)	4.1	4.5	4.2	4.5	0.7	4.4	10.2	12.2
- IDA (a)	4.3	2.6	2.4	2.7	1.0	2.3	7.4	10.5
- IDA (b)	3.5	2.1	1.8	1.6	0.4	3.6	5.9	6.1
<u>RISØ-filtre</u>								
SO <sub>2</sub> - RF µgm <sup>-3</sup>	4.1	4.7	5.3	4.3	<0.5	<0.4	4.8	4.1
IDA	2.0	1.1	2.5	-	-	-	0.9	1.7
SO <sub>4</sub> - RF µgm <sup>-3</sup>	6.6	6.2	8.6	7.3	1.9	8.2	18.4	20.7
- IDA	0.7	0.8	1.0	0.9	0.1	3.1	5.6	6.4
SO <sub>2</sub> - NOVAK	5.7 <sup>1)</sup>	5.2 <sup>1)</sup>	4.0 <sup>1)</sup>	2.9 <sup>1)</sup>	0.1 <sup>2)</sup>	0.3 <sup>3)</sup>	3.7 <sup>3)</sup>	3.2 <sup>3)</sup>
- " - (max)	15	15	12.4	7.2	-	1.6	19	17
temp C	16.0	20.0	19.5	17.3	7.3	17.8	16.9	18.1
b <sub>sp</sub> <sup>-m<sup>1</sup></sup> x 10 <sup>-5</sup>	3.0	4.6	6.0	6.0	0.2	2.5	15	15
SO <sub>4</sub> <sup>4)</sup> µg <sup>-3</sup>	6	9	12	12	0.4	5	30	30
Turbulens ε <sup>1/3</sup> - cm <sup>2/3</sup> s <sup>-1</sup>	2.0	1.3	1.5	0.8	0.4	0.4	1.5	1.4
Skyer (vær)	6-3/8 Cu i 3000 ft	2/8 Cu 3000 ft	2/3 Cu i 3000 ft	3-5/8 Cu i 3000 ft	5-7/8, top- per 5000 - 7000 ft	4-7/8 Sc topp 1500 - 1800 ft 8/8 A5	Tett dis	Tett dis

Alle tider i GMT

(a) - "HEGO" prøvetaker

(b) - "Karusell" prøvetaker

1) fratrukket estimert nullpunkt = 6 µgm<sup>-3</sup>

2) - " - - = 7 "

3) - " - - = 8 "

4) SO<sub>4</sub> = 0.2 b<sub>sp</sub> gm<sup>-2</sup>

Figur 4 viser et eksempel på hvordan Novak-instrumentet registrerte en enkelt røykfane (fra et kraftverk) uten tilsvarende utslag i nefelometerkurven. Noe som indikerer en nær partikkelfri røyk. (At spredningskoeffisienten i 2000 fot viser en plutselig endring noe sør for Sprogø, kan skyldes gjennomflyging av en svakt hellende skilleflate i partikkelfordelingen.)

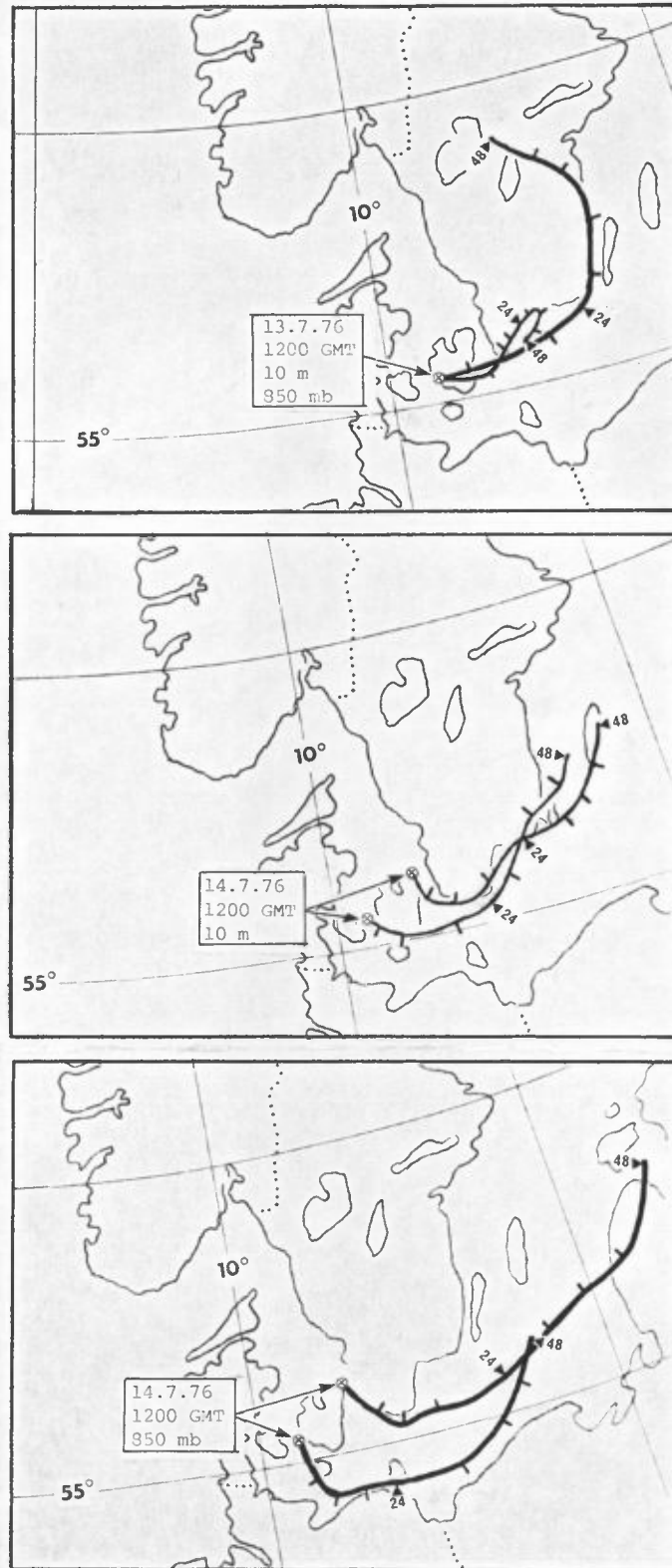
## 5 DISKUSJON

For å undersøke hvilke områder luften hadde passert, er det laget 48 timers luftpakke-trajektorier bakover i tiden. De er basert såvel på observert bakkevind (10 m) som på observert vind i 850 mb-flaten (1500 m). Trajektoriene er vist i figur 5. Som en ser har luften passert over sør-Sverige, og ikke over de store industriområder i Øst-Europa som de sørøstlige og sørlige vinder i måleområdene kunne tyde på. Utslipp av svovelforbindelser er relativt lavt over sør-Sverige på denne årstid. Det kan forklare de relativt lave svovelskonsentrasjoner som ble målt.

Bruk av røntgen-fluorescens metoden for analysering av filtrene fra Risø kan gi feil verdier fordi disse filtre har en annen diameter på den eksponerte flaten enn kalibreringsfiltrene. Det som burde gitt best overensstemmelse er Risø-filtre analysert med IDA og NILU-filtre analysert med RF.

Resultatene fra IDA-analysen på norske filtre er fratrukket blindverdier lik et middel av de ueksponerte filtre. En enkeltstående høy verdi for et av de ueksponerte impregnerte filtre (prøvetaker 1) er utelatt.





Figur 5: 48 timers luftpakke trajektorier (bakover i tiden)

Røntgen-fluorescens-metoden (XRF) kan best sammenholdes med isotop-fortynnings-metoden (IDA) og eksponerte Risø-filtre med de tilsvarende NILU-filtre, ved å betrakte middel- og maksimumskonsentrasjoner. Dette er gjort i tabell 2.

Tabell 2: Middel- og maksimalverdier,  $\mu\text{gm}^{-3}$ .  
(a)- "Hego"-prøvetaker, (b)- "Karusell"-prøvetaker.

		Middel	Maks		Middel	Maks	
		<u>NILU-filtre</u>					
SO <sub>2</sub>	RF(a)	1.8	3.4	RF(b)	1.9	3.8	
	IDA(a)	1.5	2.2	IDA(b)	1.4	4.1	
SO <sub>4</sub>	RF(a)	5.6	10.9	RF(b)	5.6	12.2	
	IDA(a)	4.2	10.5	IDA(b)	3.1	6.1	

Risø-filtre

		SO <sub>2</sub>		SO <sub>4</sub>		
RF		3.5	5.3	RF	9.7	20.7
IDA		1.0	2.5	IDA	2.3	6.4

Tabellen viser gjennomgående god overensstemmelse mellom de to prøvetakere i NILU-flyet og mellom de to analysemetoder, selv om IDA-metoden gir urimelig lave SO<sub>4</sub>-konsentrasjoner for "Karusell"-prøvetakeren. For de danske filtre (Risø), eksponert over samme tidsrom og i samme luftområde som de norske, gir RF-metoden langt høyere verdier enn IDA-metoden. Den indikerer også høyere konsentrasjoner enn på de tilsvarende norske. Dette er vanskelig å forklare, noe skyldes trolig forskjellen i filtertype.

## 6 KONKLUSJON

Interkalibreringen av prøvetakerutstyr for SO<sub>2</sub> og SO<sub>4</sub> over Danmark i juli 1976, har vist gjennomgående god overensstemmelse, men også betydelige avvik i de målte konsentrasjoner av SO<sub>2</sub> og SO<sub>4</sub>. Konsentrasjonene var gjennomgående lave. Det øker usikkerheten, men forklarer ikke alene alle uoverensstemmelser.

Forskjellen i filtertyper spiller også inn. Undersøkelsen viser at en bør regne med tildels betydelige unøyaktigheter i målte konsentrasjonsverdier, langt større enn det som analysemetodene alene tilsier.

## 7 REFERANSER

- (1) Heidam, N.Z. Aircraft measurements of air pollution over Denmark and the North Sea. Risø -M 1813, Health physics department, Danish Atomic Energy Commission, Risø. 1975.
- (2) Bonnevie-Svendsen, M., Follo, A. Evaluation of filters, standardization and measuring procedure for X-ray fluorescence analysis of sulfur in air-borne matter. Work report CH-98, Institutt for Atomenergi, Kjeller, 25 pp., 1972.
- (3) Garland, J.A. The integrating nephelometer as an instrument for measuring the scattering coefficient of the atmosphere and its use in atmospheric pollution studies. Pp 490-505 in: Observations and measurements of atmospheric pollution, WMO Special Environmental Report No 3. Geneva (WMO-NO 368), 1973.

- (4) Waggoner, A.P.,  
Vanderpol, A.J.,  
Charlson, R.J.,  
Granat, L.,  
Trägårdh, C. Sulphate-Light scattering ratio  
as an index of the role of sul-  
phur in tropospheric optics.  
Nature 261, 120-122.
- (5) MacCready, P.B. An Application Memorandum for  
the MRI Universal Indicated  
Turbulence System (UITS) -  
MRI 170 M-917, 17 pp., 1970.
- (6) Lahmann, E., Automatische Schwefeldioxid Be-  
stimmungen mit einem Polaro-  
graphisch-Coulometrisch arbeitenden  
Gerät. Wasser, Luft und Betrieb 15,  
366-367, 1971.