



PROGRAMMA SHORT – TERM MOBILITY – ANNO 2011

Relazione Finale del Programma

Aerosol size distribution and vertical turbulent fluxes measured with different instruments: an inter comparison study.

Fruitore:

Antonio Donateo

Istituto di afferenza del Fruitore:

Istituto di Scienze dell'Atmosfera e del Clima – ISAC (u.o.s. Lecce)

Istituzione ospitante:

Institut de Radioprotection et Suréte Nucleaire (IRSN) – Cherbourg Octeville (France)

Dipartimento di afferenza: Terra e Ambiente

Introduzione

Lo scambio di calore, di momento e di massa tra la superficie terrestre e l'atmosfera gioca un ruolo chiave nei fenomeni climatici, nei sistemi ecologici e sulla salute umana. Tuttavia la nostra conoscenza dei processi chimici in atmosfera e dei meccanismi di interazione tra la biosfera e l'atmosfera terrestre è fortemente limitata dalla scarsa conoscenza del comportamento spaziale e temporale delle emissioni e della deposizione delle specie in traccia e degli aerosol. Per esempio per poter capire l'impatto antropico su tali meccanismi e i potenziali risultati di tale cambiamento è necessario studiare e quantificare i processi di scambio tra la superficie e l'atmosfera. La gran parte degli effetti del particolato atmosferico dipendono strettamente dalla dimensione delle particelle, per cui risulta molto importante studiare i processi di trasporto degli aerosol in funzione della loro dimensione: per esempio è molto importante capire i processi di emissione e deposizione turbolenta che controllano la distribuzione del particolato in aria. La misura dei flussi verticali turbolenti negli ultimi anni è stata oggetto di molta

attenzione da parte della comunità scientifica e si sono sviluppati diversi approcci alla misura, tuttavia l'attuale strumentazione di misura presenta dei limiti nel fornire i flussi verticali turbolenti distribuiti in dimensione, detti "size-segregated". Ci sono molti lavori relativi alla misura dei flussi verticali turbolenti con diversa strumentazione e su differenti tipi di superficie (Donateo et. al, 2006, Contini et al., 2010, Pryor, et al., 2006; Pryor, et al., 2007).). Attualmente, gli strumenti più utilizzati sicuramente in questi ultimi anni sono il Contatore a Condensazione (CPC) ed i contatori ottici, tuttavia, recentemente altre tipologie di strumenti sono state impiegate nella valutazione dei flussi turbolenti con la metodologia della eddy-correlation, in particolare gli impattori inerziali. In questo lavoro riportiamo i risultati relativi ad una campagna di misura di confronto tra un CPC ed un misuratore ELPI (Electrical Low Pressure Impactor), ovvero un impattore a bassa pressione che opera con elettrometri, nella misura dei flussi verticali turbolenti, della velocità di deposizione e della distribuzione dimensionale del particolato atmosferico.

Descrizione Sperimentale di Misura

Nell'estate del 2010, dal 12 al 30 luglio, è stata portata a compimento una campagna di misura in un sito suburbano a Lecce, in Puglia. Il sito di misura prescelto è un campo sperimentale di proprietà dell'Orto Botanico della Facoltà di Biotecnologie dell'Università del Salento, prestato all'Istituto di Scienze dell'Atmosfera e del Clima (ISAC) u.o.s. di Lecce per il periodo della campagna di misura. Si tratta di un sito di tipo suburbano caratterizzato dalla presenza di vegetazione bassa, circondato su due lati a ovest e sud ovest da una fila di alberi, altezza media circa 3-4 m (Fig.1). L'area di misura si presenta omogenea per una distanza media di circa 1 km, ma presenta una lunghezza di rugosità ed una altezza di dislocamento differenti nei diversi settori di provenienza del vento. E' dunque possibile avere degli effetti nei parametri turbolenti misurati dovuti alla presenza di perturbazioni per direzioni del vento da sud, sud-ovest. Tuttavia, entrambi le stazioni di eddy-correlation (con il CPC e con l'ELPI) sono soggetti agli stessi disturbi e quindi questo non pregiudica l'inter-comparison dei risultati. La stazione di misura si componeva di un laboratorio mobile, in dotazione presso il nostro Istituto, e tre pali pneumatici, di cui due a quota 10m ed uno, integrato nel laboratorio mobile, a quota 6m (Fig.2). Il primo palo (A) è stato equipaggiato con un

anemometro sonico (Gill R3) per la misura delle tre componenti del vento ad una frequenza di 100Hz (Fig.3).



Fig.1. Mappa satellitare (Google ®) del campo di misura. Con il pallino rosso viene indicata la posizione del laboratorio mobile, al centro del campo.



Fig.2. Laboratorio mobile con le due postazioni a 10 m (A,B) e la postazione a 6 m (C).

Tutti gli altri strumenti di misura montati sullo stesso palo hanno le uscite campionate e digitalizzate direttamente dall'anemometro, di modo che tutte le misure risultano perfettamente sincronizzate. Nelle immediate vicinanze dell'anemometro sonico è stato alloggiato il tubo di campionamento dell'aerosol: che risulta abbastanza vicino da permettere di campionare la stessa porzione d'aria dell'anemometro, ma distante a sufficienza da impedire qualsiasi distorsione del flusso stesso.

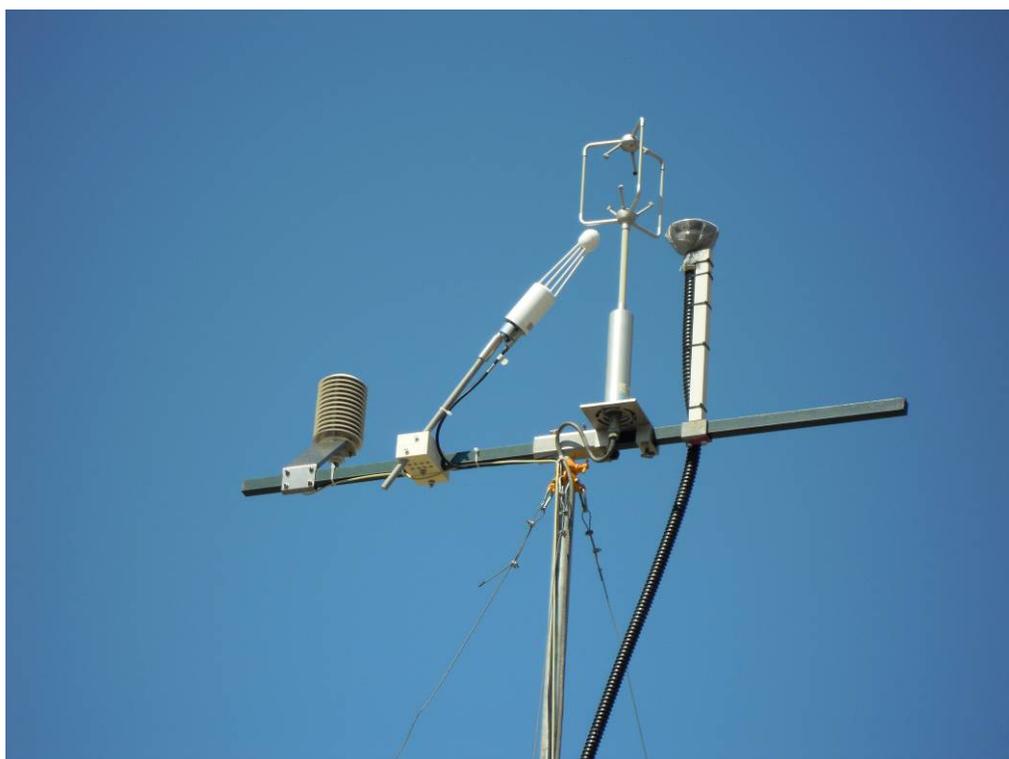


Fig.3. Postazione A (10m). In fila da sinistra il termo igrometro, il sensore ad infrarosso per la misura di CO₂ ed H₂O, l'anemometro sonico e la testa di campionamento per il particolato.



Fig.4. a) Contatore di Particelle a Condensazione (CPC) della Grimm (modello 5.403). b) Impattore Elettrico a bassa pressione (ELPI) della Dekati.

Un contatore a condensazione (CPC) della Grimm, modello 5.403 è stato utilizzato per misurare il numero di particelle campionate alla frequenza di 1Hz (Fig.4a). Il campione d'aria passa dalla testa di campionamento (inlet) al CPC mediante un tubo in gomma siliconica conduttivo, per impedire che le particelle vengano trattenute per effetti elettrostatici sulle pareti del tubo stesso. Una pompa (Tecora, Bravo H-plus) è stata utilizzata per aspirare aria dall'inlet, ad una portata di 45 l/min, per poter garantire un flusso turbolento (numero di Reynolds di 2550). Dal flusso portante è stato prelevato un flusso di campionamento di 1.5 l/min mediante un tubo in gomma siliconica di circa 1m iniettandolo direttamente nel CPC. Il contatore di particelle utilizzato è capace di rilevare particelle in un intervallo dimensionale che va da 11 nm fino a 1000 nm (1 μ m). Sempre sulla stessa postazione è stato installato un termo igrometro Rotronic (Campbell Scientific, MP100A) per la misura della temperatura e della umidità relativa. Sempre sulla stessa postazione, nelle immediate vicinanze dell'anemometro sonico è stato installato un spettrometro ad infrarosso (Licor, Li7500) (Fig.5) per la misura contemporanea della concentrazione molare di anidride carbonica e vapore acqueo, e la relativa misura del flusso di CO₂, H₂O, di calore sensibile e calore latente.



Fig.5. Posizionamento del Licor Li7500 rispetto all'anemometro sonico in posizione inclinata per evitare la deposizione di acqua piovana.

Il palo B, sempre a quota 10m, è stato equipaggiato con un anemometro sonico (Young, modello 81000) (Fig.6). In questa postazione è stato utilizzato un impattore elettrico a bassa pressione ELPI (Electrical Low Pressure Impactor) prodotto da Dekati Inc. (Tampere, Finland) (Fig.4b) per la misura del numero di particelle, della distribuzione dimensionale e del flusso verticale turbolento size-segregated. La linea di campionamento di ELPI era costituita da un tubo in acciaio inox ricurvo verso il basso, per impedire infiltrazioni da pioggia, con un diametro interno di 1.1 cm e lunghezza di 90 cm e da un tubo in gomma siliconica (7.40 m) connesso allo strumento di misura (Damay et al., 2009).



Fig.6. Postazione B (10m). Si può vedere la testa di campionamento per ELPI e l'anemometro sonico.

Il campionatore ELPI separa le particelle secondo il loro diametro aerodinamico utilizzando un impattore a cascata Berner a bassa pressione con un flusso di 30 l/min. Lo strumento è composto da 12 stadi, che ricoprono un intervallo dimensionale che va da 7 nm fino a 9.95 μm . Gli elettrometri dello strumento sono stati "azzerati" tutti i giorni all'inizio della misura con una procedura di azzeramento come riportato in (Damay et al., 2009).

Entrambi gli strumenti per la caratterizzazione del particolato, ovvero il contatore di particelle e l'impattore ELPI, sono stati alloggiati all'interno del laboratorio mobile. Sulla terza postazione (C) a 6 m è stato montato un solo anemometro per il controllo dei parametri di turbolenza e delle condizioni di omogeneità e stazionarietà delle operazioni di misura. Alla quota di 2.5 m è stata sistemata una postazione (D) (Fig.7a), per la misura della distribuzione dimensionale degli aerosol, da una testa di campionamento posto direttamente sul tetto del laboratorio mobile. La distribuzione dimensionale degli aerosol viene misurata con un DMA (Differential Mobility Analyser) della Grimm, modello 5.500 per poter effettuare un confronto con la distribuzione dimensionale ottenuta da ELPI. Il DMA permette di ottenere la distribuzione dimensionale delle particelle ultrafini nell'intervallo da 11 nm a 1000 nm.

Il campione di aria passa attraverso un primo tubo in acciaio inox con un flusso di 45 l/min aspirato mediante una pompa Tecora (Bravo H-plus). Una frazione del flusso portante (0.3 l/min) viene aspirata e condotta direttamente nello strumento per la determinazione della distribuzione dimensionale del particolato contenuto.

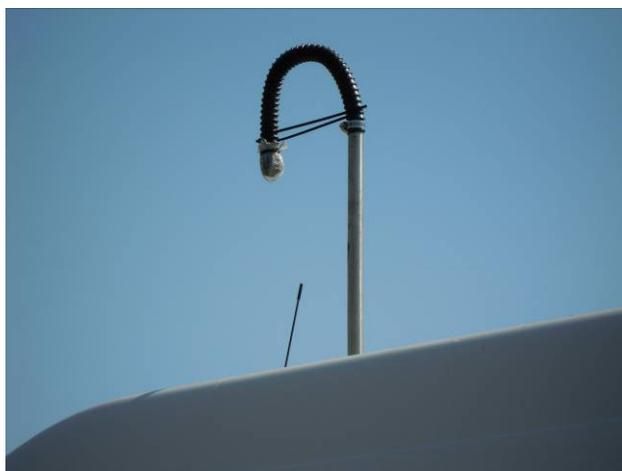


Fig.7. Testa di campionamento del DMA.

Il principio di funzionamento è basato sulla determinazione della mobilità elettrica delle particelle che attraversano un campo elettrico, la cui intensità viene variata ad intervalli regolari di tempo Flagan (1998) e Reischl (1997). Le particelle sono aspirate dall'atmosfera all'interno del DMA dove è applicato un campo elettrico radiale. In base alla carica elettrostatica portata dalle particelle e alla loro massa sono soggette, sotto l'azione del campo elettrico, a deflettere dalla traiettoria iniziale di una quantità che è

funzione della loro mobilità. Dimensionando opportunamente il campo elettrico e la velocità delle particelle al suo interno è possibile fare in modo che queste escano da una fenditura collocata all'uscita del DMA ed inviate al CPC dove sono contate. Variando il campo elettrico varia la classe di mobilità delle particelle che escono dal DMA. L'ambiguità dovuta alla carica elettrostatica portata dalle particelle viene risolta portando le particelle stesse, prima di entrare nel DMA, all'equilibrio elettrostatico mediante una nube di ioni bipolari.

La Fig.8 riporta un esempio di istogramma della distribuzione dimensionale ottenuta dal DMA durante la campagna di misura. In ordinata è riportata la concentrazione espressa come numero di particelle per centimetro cubo per logaritmo dell'intervallo dimensionale ($dN/d\log(dp)cm^3$), mentre in ascissa il diametro in nanometri (nm) delle particelle.

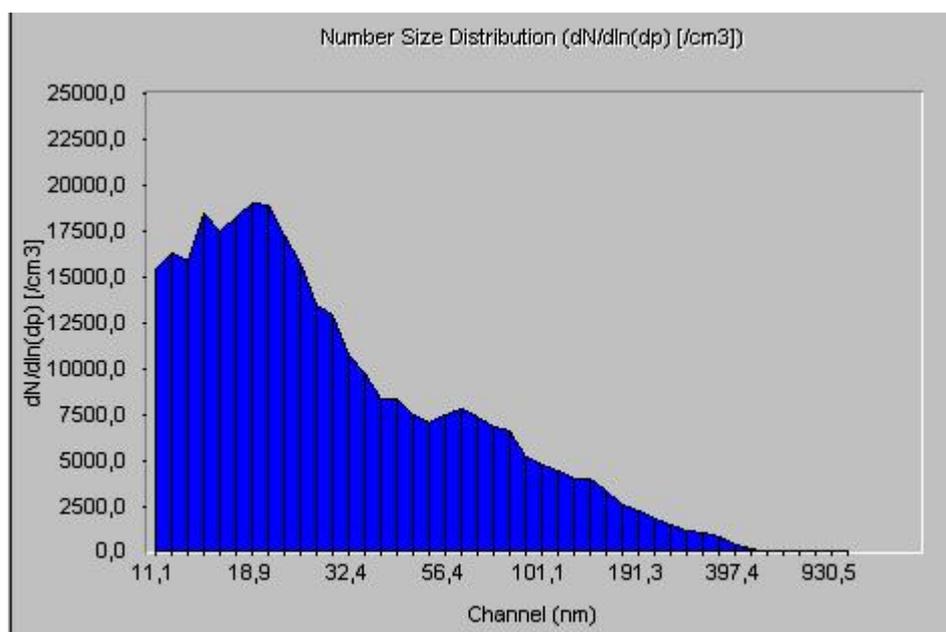


Fig.8 – Esempio di distribuzione dimensionale misurata dal DMA durante la campagna di misura.

Durante il primo periodo della campagna di misura si sono verificati molti fenomeni di condensazione di vapore acqueo nei condotti di campionamento e persino all'interno degli strumenti, a causa dell'elevata umidità relativa in aria nelle ore notturne. Questo tipo di fenomeni sono dovuti essenzialmente alla differenza di temperatura esistente tra l'esterno e l'interno del laboratorio mobile, che è stato tenuto costantemente a temperatura medio/bassa da un sistema di condizionamento, per evitare il

surriscaldamento della strumentazione stessa. Questi eventi di condensazione hanno portato comunque ad un malfunzionamento degli strumenti ed a misure errate. Per cui ad un certo punto, dal 20 luglio 2010, si è deciso di operare esclusivamente in orario diurno, dalle 8:00 del mattino fino alle 18:00 circa, quando i valori di umidità relativa esterna si mantenevano piuttosto bassi, al di sotto del 60%.

Procedura di analisi dati Eddy Covariance

La procedura di eddy correlation è basata sulla separazione della concentrazione in numero degli aerosol e della componente verticale della velocità del vento in una parte media (\bar{N} , \bar{w}) e una parte fluttuante (N' , w') (Businger, 1986; Moncrieff et al., 1997). Le serie temporali misurate sono state dapprima sottoposte ad un procedimento di individuazione ed eliminazione dei picchi anomali, probabilmente dovuti a temporanei difetti di elettronica e successivamente trasformati con una rotazione tridimensionale in un nuovo sistema di riferimento (riferimento streamline) annullando la velocità verticale media (McMillen, 1988). Successivamente i dati sono stati trattati con un processo di detrending lineare per poter estrarre dalle serie temporali eventuali trend di lungo periodo (Buzorius et al., 1998). Il tempo di media di riferimento scelto è di 30 minuti.

Da qui è stato calcolato il flusso verticale turbolento in numero di aerosol $\overline{N'w'}$, e nello stesso modo è stato ricavato il flusso di momento ed i flussi di energia. Per poter tenere conto del tempo impiegato dal campione di aria per poter attraversare tutto il tubo di campionamento è stato introdotto un ritardo di 12s nel calcolo dei flussi con il metodo della eddy correlation. Il tempo di ritardo è stato ricavato in laboratorio dopo una serie di prove sulla risposta del CPC ed è stato successivamente confermato da una analisi statistica della posizione, nel tempo, del massimo in valore assoluto del coefficiente di correlazione R_{WN} tra la velocità verticale del vento e la concentrazione in numero degli aerosol. I flussi in numero di particelle sono stati riportati generalmente normalizzati in termini di velocità di deposizione (Pryor, 2006; Vong et al., 2004):

$$Vd = -\frac{\overline{N'w'}}{\bar{N}} = -\frac{F_N}{\bar{N}} \quad (1)$$

Un test di stazionarietà è stato effettuato per le serie di concentrazione di aerosol dopo il processo di detrending come descritto da (Foken & Wichura, 1996), scegliendo un valore di soglia dell'indice di non stazionarietà pari al 60%. La percentuale di dati non stazionari, sia per il CPC che per ELPI, è del 50% su tutto il periodo di misura e tutti questi casi sono stati eliminati dalle successive analisi.

Il tempo di risposta al primo ordine del CPC utilizzato non permette di misurare il contributo dei vortici più piccoli allo spettro di turbolenza della concentrazione di aerosol. Di conseguenza risulta necessario correggere i flussi misurati per tenere in conto dell'attenuazione. Una stima dell'entità di tale attenuazione dei flussi è stata proposta da Horst (1997) utilizzando una formula analitica basata sulla forma attesa dei cospettri tra la componente verticale della velocità del vento e la concentrazione: in maniera specifica è basata sulla frequenza normalizzata alla quale è localizzato il massimo del cospettro nelle diverse condizioni di stabilità atmosferica.

La valutazione del coefficiente di correzione di Horst (1997), il quale risulta particolarmente rilevante nelle condizioni di atmosfera stabile, nel nostro data set porta ad una correzione media del 9% sul valore misurato dei flussi dall'ELPI e del 17% sui dati del CPC.

Il conteggio delle particelle effettuato dal CPC è soggetto all'influenza delle fluttuazioni della densità dell'aria strettamente legate alle fluttuazioni della temperatura e della concentrazione di vapor acqueo (Webb et al., 1980). Questa correzione viene applicata per tenere conto della concentrazione in numero di particelle dovuta alle variazioni causate dal flusso di calore latente e di calore sensibile simultanei. I dati riportati in questo lavoro sono stati corretti e la correzione media è dell'1%.

Un altro effetto sui flussi di particelle misurati con il metodo della eddy correlation mediante un CPC è dovuto all'influenza delle fluttuazioni del rapporto di saturazione S che sono correlate con la velocità verticale (Fairall, 1984; Kowalski, 2001; Vong et al., 2004). Questo fenomeno influenza le misure di flusso poiché la crescita (o decrescita) delle particelle (associate alle fluttuazioni di umidità relative) possono spostare una frazione rilevante di particelle dentro o fuori della regione di sensibilità del CPC causando delle fluttuazioni apparenti con la velocità verticale. Tale correzione dipende strettamente dalla composizione chimica dell'aerosol campionato per il mezzo di una costante (spesso presa uguale a 0.5) (Fairall, 1984; Pryor et al., 2007). Tale correzione

non è stata applicata poiché il nostro data set di misure non fornisce informazioni riguardo la composizione chimica del particolato analizzato, per cui non possiamo ottenere informazioni attendibili riguardo il fattore di crescita delle particelle.

Le perdite in numero di particelle per il sistema di campionamento per il CPC, per il DMA e per ELPI sono state calcolate secondo la formulazione proposta da Baron & Willeke (2001) (per il flusso laminare all'interno della terminazione finale del tubo di campionamento) e secondo la formulazione di Hinds (1999) per il flusso turbolento nel tubo a sezione più larga. L'efficienza totale di conteggio è stata ottenuta come prodotto tra il coefficiente di penetrazione e l'efficienza di conteggio del CPC riportata in Heim et al. (2004).

Risultati di Misura

Meteorologia e micrometeorologia del sito di misura

Durante la campagna di misura la velocità del vento è stata relativamente regolare per il sito di misura con una velocità media pari a 1.70 m/s, con un picco massimo su medie di 30 minuti pari a 5m/s (Fig.9a). La temperatura media è stata di circa 27 °C, con un minimo di 16°C durante la notte fino ad un massimo di 38°C (Fig.9c). L'umidità relativa media varia tra il 25% e il 94% (Fig.9d). La direzione del vento è variabile sulle medie di 30 minuti, ma esiste una direzione più frequente di provenienza del vento da N-NW (Fig.10).

Il flusso di calore sensibile $H = c_p \rho \overline{w'T'}$ ed il flusso di calore latente $E = \rho \lambda_e \overline{w'q'}$ sono riportati in Fig.11a ed in Fig.11b, dove ρ è la densità dell'aria, $c_p = 1005 JK^{-1}kg^{-1}$ il calore specifico a pressione costante, $\lambda_e = 2.26 \times 10^6 J kg^{-1}$ è il calore latente di evaporazione, $\overline{w'T'}$ e $\overline{w'q'}$ sono, rispettivamente, i flussi cinematici di calore e di vapore acqueo.

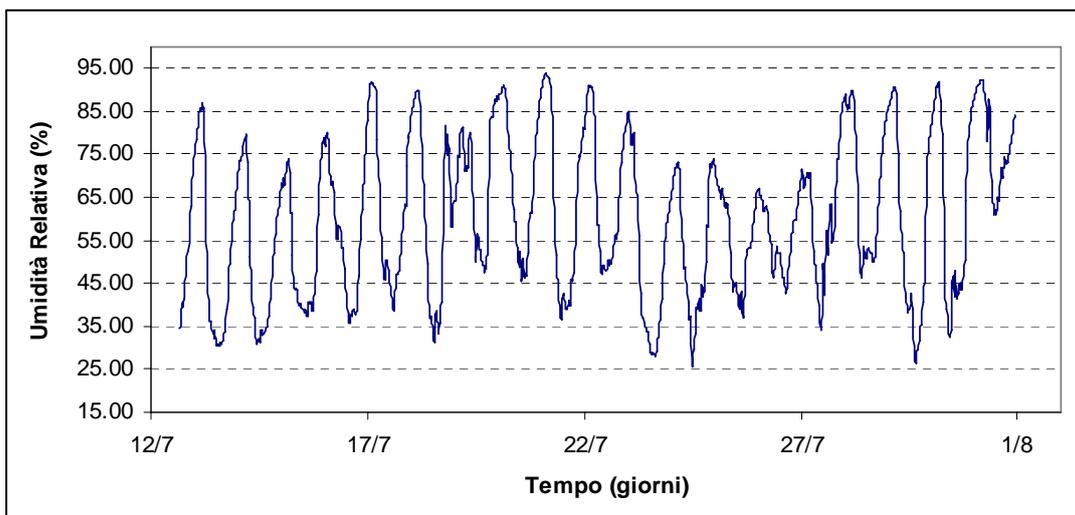
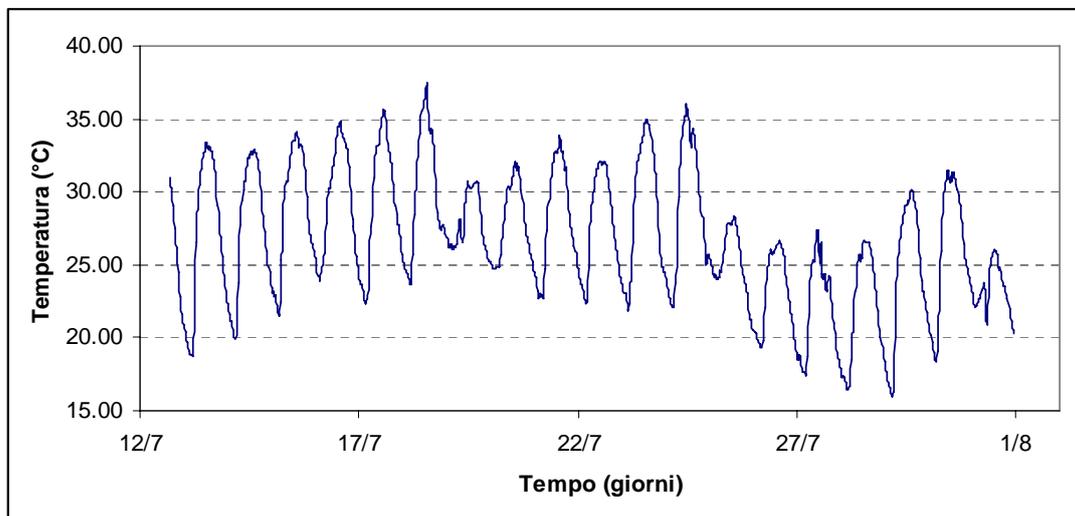
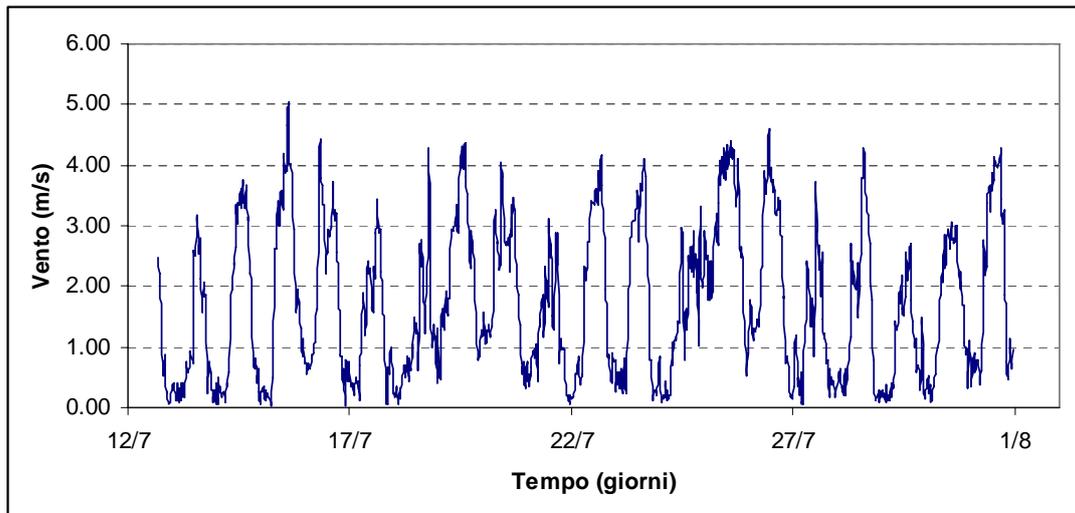


Fig.9. Serie temporale della a) velocità del vento, b) temperatura e c) umidità relativa per tutto il periodo di misura

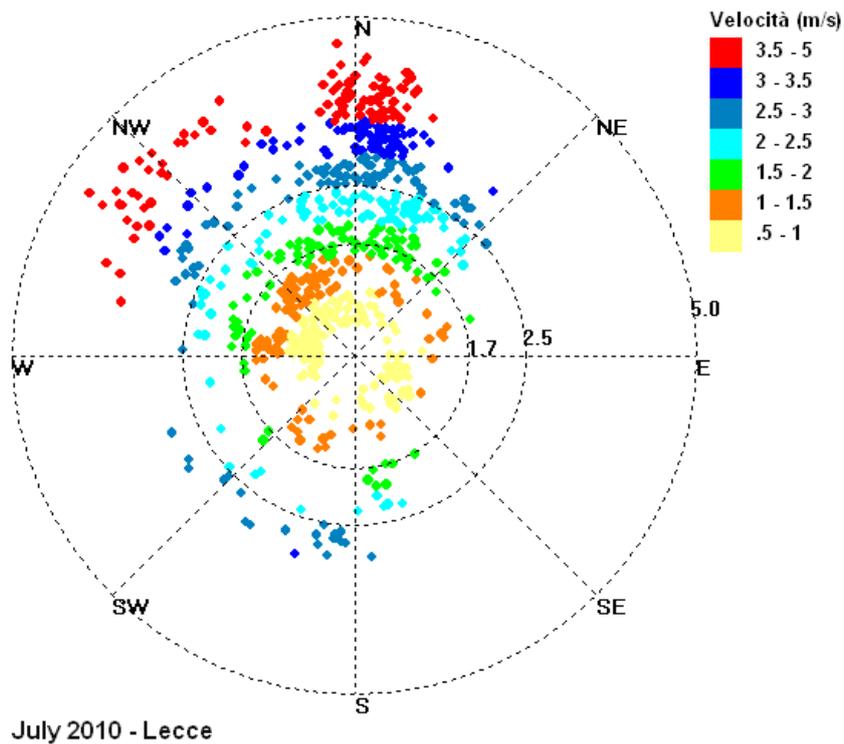


Fig.10. Rosa dei venti per tutto il periodo di misura della campagna

Su tutto il periodo il flusso di calore sensibile ha una media di circa 91 W/m^2 ed è principalmente positivo come mostrato in Fig.11a, mentre il flusso di calore latente di evaporazione è essenzialmente positivo con un valore medio di circa 18 W/m^2 (Fig.11b).

I risultati mostrano la presenza di lunghi periodi con flussi di energia molto intensi (con valori fino a 450 W/m^2 in valore assoluto) ed un valore medio su tutto il periodo di misura di circa 90 W/m^2 , come mostrato in Fig.11a.

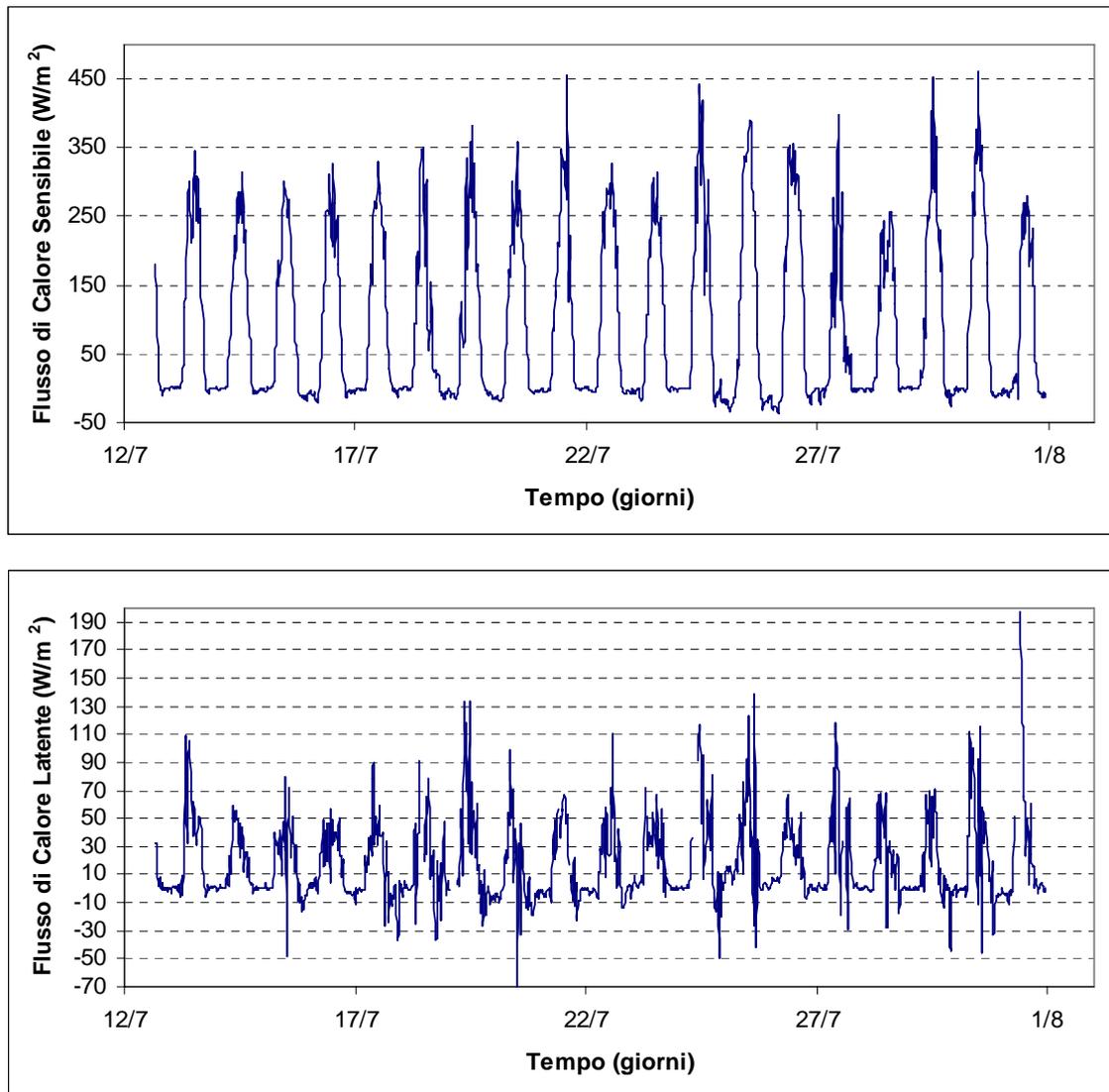


Fig.11. a) flusso di calore sensibile. b) flusso di calore latente di evaporazione

Analisi dati di concentrazione e flussi verticali turbolenti

Il confronto della concentrazione in numero di particelle (numero di particelle/cm³) è stato effettuato tra le misure di ELPI, del contatore di particelle e del DMA, per quest'ultimo la concentrazione totale di ottiene come somma del numero di particelle, corretto per le perdite, in ogni singolo canale utilizzato. In Fig.12 possiamo vedere un grafico a dispersione della concentrazione di particelle misurate dal CPC e da ELPI (pallini in blu). Nel grafico a dispersione è riportata una linea di best fit con i relativi coefficienti: si ha una pendenza di 0.75 con un coefficiente di determinazione $r^2=0.48$: dunque il confronto risulta decisamente non ottimale, pur essendo una misura alla stessa

quota (10m). Una spiegazione per questo tipo di comportamento può essere la perdita di particelle tipica dell'impatto.

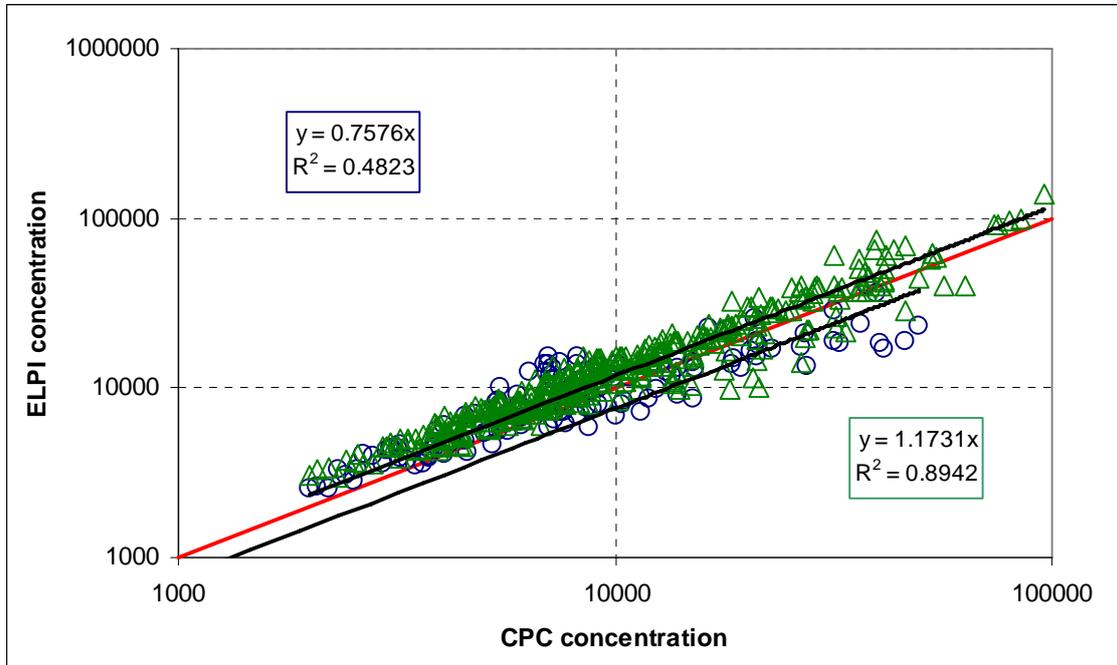


Fig.12. Grafico a dispersione della concentrazione in numero di particolato fine misurato rispettivamente con il CPC e con ELPI. In rosso è riportata la retta 1:1.

Infatti nelle misure con un impatto, per il suo stesso modo di funzionare si hanno delle perdite, per esempio per effetti di rimbalzo delle particelle da uno stadio ad un altro, oppure per fenomeni di volatilizzazione dell'aerosol negli stadi a bassa pressione, ovvero il primo ed il secondo stadio, che rappresentano anche la percentuale maggiore sul numero totale di particelle. La sottostima in concentrazione di particelle per ELPI si verifica soprattutto per concentrazioni superiori a 10000 particelle/cm³. A questo proposito va ricordato che il principio di misura dell'ELPI e quindi il numero di particelle è strettamente legato alla densità delle particelle campionate. L'elaborazione dei dati è stata effettuata stimando una densità media delle particelle pari a 1.5 kg/m³ che in realtà può cambiare nel tempo e soprattutto può cambiare in ogni singolo canale dimensionale (Held et al., 2008). Sempre nello stesso grafico presentato in Fig.12 abbiamo riportato i valori di confronto tra la concentrazione in numero di particelle rilevate dal CPC e dal DMA (triangoli in verde), con una pendenza di 1.17 con un coefficiente di determinazione $r^2=0.89$: dunque il confronto risulta decisamente

migliore. Constatato che esiste un offset tra i valori di concentrazione forniti dal CPC e quelli forniti da ELPI, è stata utilizzata una normalizzazione adatta a mettere in risalto l'andamento della concentrazione misurata dai due strumenti per facilitarne il confronto. E' stato scelto di operare una normalizzazione sul periodo giornaliero, dividendo tutti i valori per la concentrazione media giornaliera, e mediando i valori nelle singole ore della giornata (Fig.13). In questo modo le due misure mostrano un ottimo accordo per quanto riguarda il pattern giornaliero delle concentrazioni misurate. Le barre di errore rappresentano una deviazione standard dei dati misurati nella specifica ora di analisi.

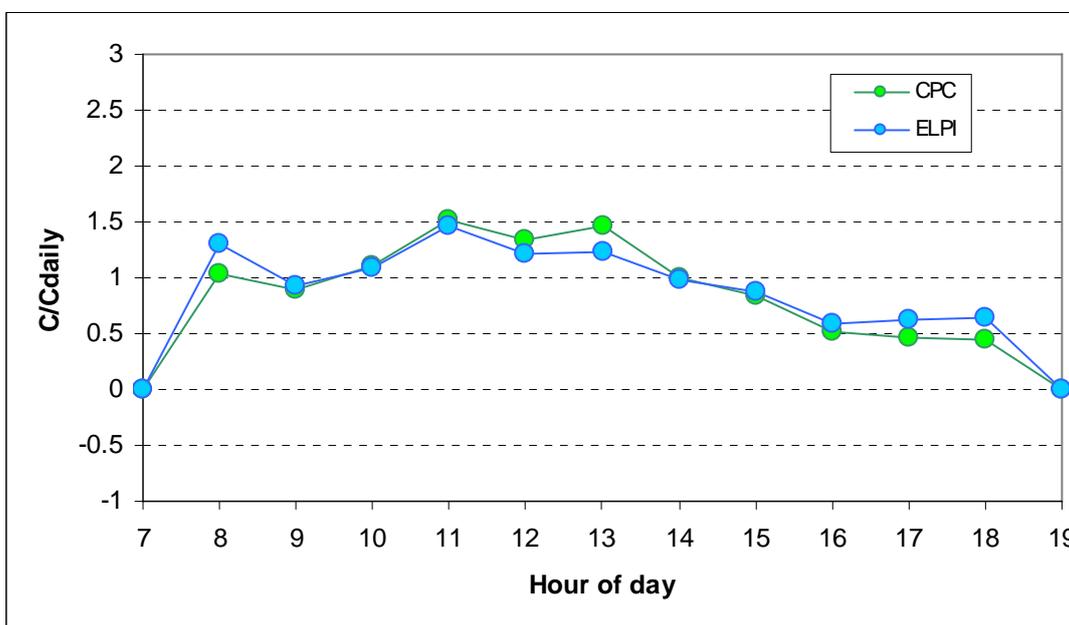


Fig.13. Confronto tra il rapporto della concentrazione in numero di particelle e la concentrazione giornaliera, il grafico è fatto come media per ogni singola ora del giorno. Si ricava in questo modo un confronto tra i pattern giornalieri della concentrazione per CPC ed ELPI

Una analisi approfondita è stata realizzata per tutto il periodo di misura della distribuzione dimensionale del particolato analizzato. Per poter effettuare questo confronto sono stati studiati i dati forniti da ELPI e DMA, quindi bisogna tener in conto che il confronto viene fatto su misure prese a quote differenti, 10m e 2.5m.

Effettuate le dovute correzioni per le perdite di materiale particolato nei tubi di aspirazione, i dati sono stati uniformati in termini di intervalli di diametro utilizzati.

Il primo passo effettuato in questo processo è stato di sovrapporre i canali dimensionali dell'ELPI con quelli del DMA. ELPI ha i seguenti tagli dimensionali (aerosol cut point):

7nm, 24.2nm, 31.4nm, 50nm, 98nm, 213nm, 319nm, 581nm, 898nm. Mentre per il DMA la risoluzione della distribuzione è più elevata ed i tagli sono i seguenti: 11.1nm, 12.1nm, 13.2nm, 14.5nm, 15.8nm, 17.3nm, 18.9nm, 20.6nm, 22.6nm, 24.7nm, 27nm, 29.6nm, 32.4nm, 35.5nm, 38.9nm, 42.6nm, 46.8nm, 51.3nm, 56.4nm, 62nm, 68.2nm, 75.1nm, 82.8nm, 91.5nm, 101.1nm, 111.9nm, 124.1nm, 137.8nm, 153.4nm, 171.1nm, 191.3nm, 214.4nm, 241.0nm, 271.8nm, 307.4nm, 348.9nm, 397.4nm, 454.3nm, 521.0nm, 599.5nm, 692.1nm, 801.4nm, 930.5nm, 1083.3nm.

Per poter far combaciare le due serie dimensionali è stato necessario sommare il numero di particelle dei canali del DMA corrispondenti all'intervallo dimensionale di ELPI. Poi è stato ricavato il diametro geometrico medio per ogni singolo intervallo: 13.02nm, 27.57nm, 39.62nm, 70.00nm, 144.48nm, 260.67nm, 430.51nm, 722.31nm, 960.26nm.

In una operazione di confronto di questo tipo si dovrebbe tener presente che il diametro delle particelle individuato da ELPI è un diametro di tipo aerodinamico, mentre quello misurato dal DMA è un diametro di mobilità: in sostanza sono due tipi differenti di caratteristiche misurate. Esistono molti studi in letteratura (DeCarlo et al., 2004; Slowik et al., 2004; Rostedt et al., 2009) che individuano le relazioni di trasformazione da diametro di mobilità in diametro aerodinamico e tutte queste relazioni tengono in conto il fattore di forma delle particelle, il fattore di "slip" e la densità stessa delle particelle (DeCarlo et al., 2004). Alcuni studi hanno messo in evidenza come sia molto difficile riuscire ad ottenere informazioni riguardo il fattore di "slip" o la densità stessa delle particelle, che potrebbe, tra l'altro, cambiare da canale a canale e durante la giornata a seconda della composizione chimica delle particelle campionate. Questo stesso studio ha messo in evidenza che comunque una correzione di questo tipo, fatta utilizzando una densità media costante (1.5 kg/m^3), non porta a migliorare sostanzialmente il confronto, come evidenziato anche in (Khlystov et al., 2004). Motivo per cui si è deciso di confrontare direttamente le size-distributions senza utilizzare correzioni sui diametri nominali degli strumenti. Una volta normalizzata la concentrazione per la concentrazione totale giornaliera, si ottiene il confronto riportato in Fig.14. E' stata riportata per completezza di informazione anche la deviazione standard relativa ad ogni canale come indicazione della variabilità giornaliera delle misure.

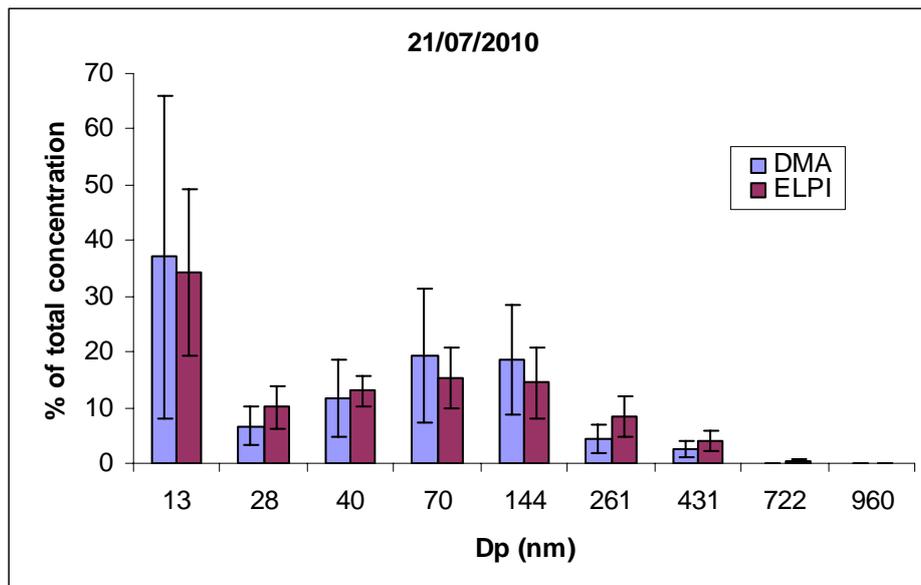


Fig.14. Confronto in forma adimensionalizzata della distribuzione dimensionale misurata con ELPI e DMA per il giorno 21 luglio 2010. Le barre di errore rappresentano la deviazione standard dei dati, per dare una indicazione della variabilità giornaliera dei valori.

In questa forma adimensionalizzata e normalizzata la distribuzione dimensionale relativa allo stesso periodo misurata dai due strumenti risulta confrontabile, come riportato anche da altri lavori, dove le misure però sono state effettuate in laboratorio, soprattutto in riferimento ad emissioni da motori (Zervas & Dorlhene, 2006). Questi risultati sono consistenti con quanto riportato nel lavoro di Maricq et al. (2000).

Mediante la procedura di eddy covariance sono stati ricavati i flussi verticali turbolenti di aerosol, sia per i dati del CPC sia per ELPI. In particolare nelle misure di ELPI si ottiene il flusso verticale turbolento size segregated ovvero il flusso per ogni singolo canale dimensionale. Il flusso totale, confrontato poi con il flusso misurato dal CPC, è stato ricavato come somma del flusso nei singoli canali dimensionali. In Fig.15 riportiamo un grafico a dispersione dei valori del flusso verticale turbolento misurato con il contatore di particelle e dall'ELPI alla stessa quota (10m). Dalla retta di best fit ricaviamo un valore della pendenza di 0.92 ($r^2=0.74$). Dunque i flussi misurati da ELPI risultano sottostimati rispetto a quelli misurati dal CPC, anche se in linea generale gli andamenti temporali si seguono abbastanza bene, soprattutto negli eventi di transizione, ovvero il passaggio dai fenomeni di emissione agli eventi di deposizione.

In ultima analisi è stato studiato il confronto della velocità di deposizione misurata con ELPI e CPC alla stessa quota (10m). In Fig.16 è mostrato un grafico a dispersione dei valori di V_d per il CPC e per ELPI. Da una retta di best fit otteniamo un valore della pendenza pari a 1.02 ($r^2=0.78$). In questo caso la correlazione risulta ben determinata, anche perché nella determinazione della velocità di deposizione dividendo per la concentrazione si annulla l'offset di cui abbiamo parlato in precedenza relativamente alla concentrazione ed ai flussi.

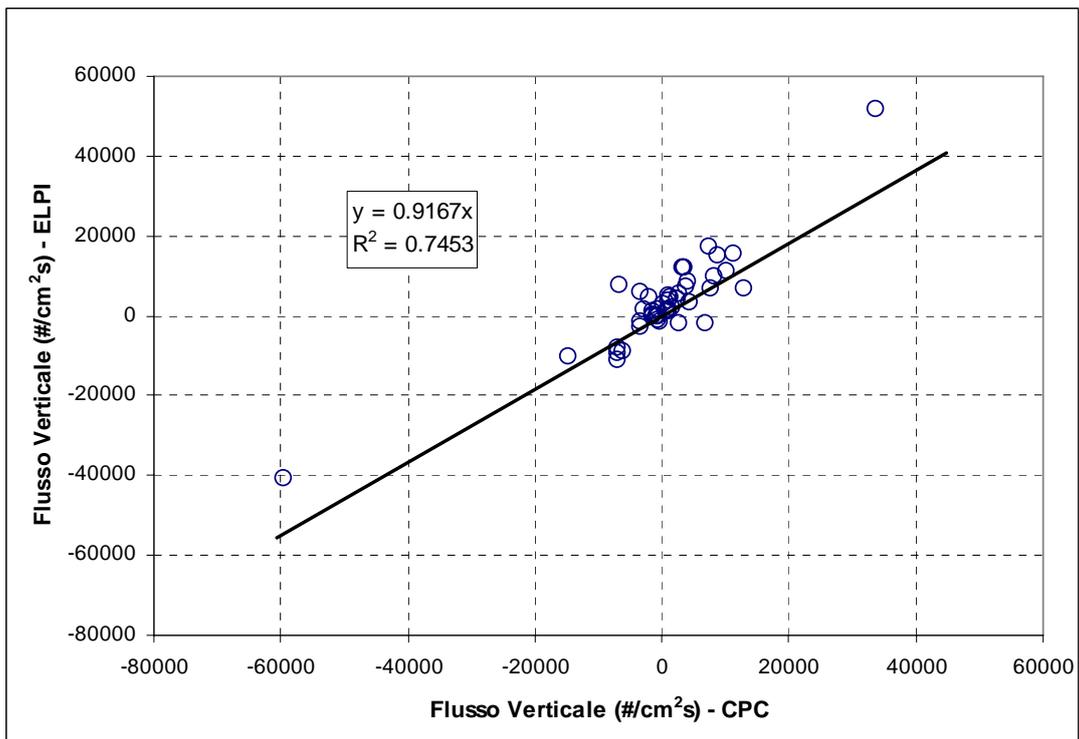


Fig.15. Confronto del flusso verticale turbolento misurato con il contatore di particelle e dall'ELPI alla stessa quota (10m).

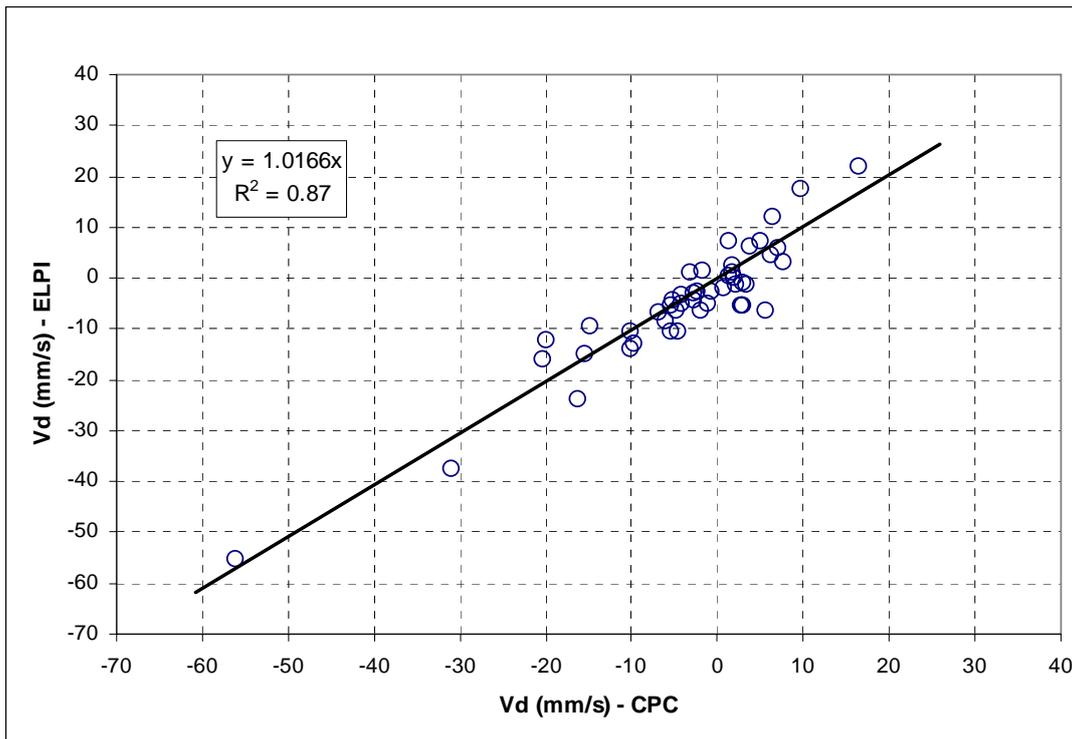


Fig.16. Confronto della velocità di deposizione (V_d) ricavata da CPC ed ELPI su tutto il periodo di misura alla stessa quota (10m).

Conclusioni

In questo lavoro è stato fatto un confronto tra la concentrazione in numero di particelle, la distribuzione dimensionale ed i flussi verticali turbolenti misurati con tre strumenti differenti. In particolare per la misura della concentrazione in numero di particelle è stato utilizzato un contatore di particelle a condensazione (CPC) ed un impattore elettrico a bassa pressione (ELPI). Per la misura della distribuzione dimensionale del particolato campionato è stato utilizzato un DMA e sempre lo stesso ELPI.

Il confronto sulla concentrazione mostra che ELPI misura una concentrazione inferiore rispetto a quanto misurato dal contatore di particelle, pur essendo alla stessa quota di misura (10m). Il confronto di concentrazione tra il CPC ed il DMA risulta sicuramente migliore. Se si opera un confronto solo sulla concentrazione normalizzata, l'andamento è sicuramente molto simile per i due strumenti. Anche il confronto della distribuzione dimensionale operata con ELPI e DMA risulta buono, i due andamenti sono simili e confrontabili, sebbene entrambi presentino una variabilità giornaliera.

Il confronto tra il flusso verticale turbolento misurato alla stessa quota da CPC ed ELPI è di buona qualità, migliore risulta il confronto della velocità di deposizione misurata

sempre dagli stessi due strumenti. Infatti la velocità di deposizione, essendo una normalizzazione del flusso per mezzo della concentrazione, risente sicuramente di meno di eventuali offset sui valori di concentrazione. Possiamo dunque concludere che ELPI risulta uno strumento adeguato a misurare i flussi verticali turbolenti di aerosol e la relativa velocità di deposizione size segregated, ovvero con un contributo di informazione ulteriore riguardo la velocità di deposizione in ogni singolo canale dimensionale. Infatti questa ultima informazione non può essere reperita ricorrendo semplicemente alle misure con un contatore di particelle.

I risultati possono essere sintetizzati in questo modo:

- la concentrazione in numero di particelle viene sottostimata dalle misure con ELPI a causa delle perdite interne dello strumento, incluse perdite dovute al funzionamento in condizioni di bassa pressione degli ultimi due stadi, che rappresentano anche la frazione più consistente sul totale di particelle;
- il confronto della distribuzione dimensionale risulta buono, anche senza dover necessariamente compensare per le differenze tra diametro aerodinamico e diametro di mobilità elettrica;
- i flussi verticali turbolenti sono in ragionevole accordo per tutto il periodo di misura;
- il confronto della velocità di deposizione secca è buono con un coefficiente di determinazione pari a $r^2=0.78$ ed una pendenza della retta di best fit pari a 1.02 per tutto il periodo di misura

I risultati di questo lavoro saranno illustrati alla prossima European Aerosol Conference (EAC2011) che si terrà a Manchester (UK) dal 4 al 9 settembre 2011 mediante una presentazione orale. Sempre nella stessa conferenza tali risultati sono presentati con un poster, di cui è allegata copia (in formato A4) in appendice.

Bibliografia

Baron, P.A and K. Willeke (2001). *Aerosol Measurement: principles, techniques, and applications*. 2nd Edition, J. Wiley and Sons Inc.

Businger, J.A. (1986). Evaluation of the accuracy with which dry deposition can be measured with current micrometeorological techniques. *J. Clim. Appl. Meteorol.*, 25, pp. 1100-1124.

Buzorius G., Rannik U. Makela J.M., Vesala T., Kulmala M., 1998. Vertical aerosol particle fluxes measured by eddy covariance technique using condensational particle counter. *Journal of Aerosol Science* 29, 157-171.

Contini, D., A.Donateo, F. Belosi, F.M.Grasso. G. Santachiara, F.Prodi, 2010. Deposition velocity of ultrafine particles measured with eddy-correlation method over Nansen Ice Sheet (Antarctica). *Journal of Geophysical Research*, 115, D16202.

Damay, P.E., D.Maró, A.Coppalle, E.Lamaud, O.Connan, D.Hebert, M.Talbaut, M.Irvine, 2009. Size-resolved eddy covariance measurements of fine particle vertical fluxes. *Journal of Aerosol Science*, 40, 1050-1058.

DeCarlo, P.F., J.G.Slowik, D.R.Worsnop, P.Davidovits, J.L.Jimenez, 2004. Particle morphology and density characterization by combined mobility and aerodynamic diameter measurements. Part 1: Theory. *Aerosol Science and Technology*, 38, 1185-1205.

Donateo A., D.Contini, F.Belosi, 2006. *Real time measurements of PM2.5 concentrations and vertical turbulent fluxes using an optical detector*. *Atmospheric Environment*, vol. 40, pp. 1346-1360.

Fairall, C.W. (1984). Interpretation of eddy correlation measurements of particulate deposition and aerosol flux. *Atmos. Environ.*, 18, 7, pp. 1329-1337.

Flagan, R.C., 1998. History of Electrical Aerosol Measurements. *Aerosol Science and Technology*, 28, 301-380.

Foken, T. & Wichura, B., 1996. Tools for quality assessment of surface-based flux measurements. *Agricultural and Forest Meteorology*, 78, 83–105.

Heim, M., G.Kasper, G.P.Reischl, C.Gerhart (2004). Performances of a new commercial electrical mobility spectrometer. *Aerosol Sci. Technol.*, 38(S2), pp. 3-14.

Held, A., A.Zerrath, U.McKeon, T.Fehrenbach, R.Niessner, C.Plass-Dulmer, U.Kaminsky, H.Berresheim, U.Poschl, 2008. Aerosol size distribution measured in urban, rural and high-alpine air with an electrical low pressure impactor (ELPI). *Atmospheric Environment*, 42, pp. 8502-8512.

Hinds, W.C. (1999). *Aerosol Technology. Properties, behaviour, and measurement of airborne particles*. 2nd Edition, J.Wiley and Sons Inc.

Horst, T.W., 1997. A simple formula for attenuation of eddy fluxes measured with first-order-response scalar sensor. *Boundary-Layer Meteorology*, 82, pp. 219-233.

Khlystov, A., C.Stanier, S.N.Pandis, 2004. An algorithm for combining electrical mobility and aerodynamic size distributions data when measuring ambient aerosol. *Aerosol Science and Technology*, 38(S1), 229-238.

Kowalski, A.S. (2001). Deliquescence induces eddy covariance and estimable dry deposition errors. *Atmos. Environ.*, 35, pp. 4843-4851.

Maricq, M.M., H.D.Podsiadlik, R.E.Chase, 2000. Size distributions of motor vehicle exhaust PM: a comparison between ELPI and SMPS measurements. *Aerosol Science and Technology*, 33, 239-260.

McMillen R.T., 1988. An eddy correlation technique with extended applicability to non simple terrain. *Boundary Layer Meteorology*, 43, 231-245.

Moncrieff, J.B., J.M. Massheder, H. deBruin, J.Elbers, T.Friborg, B.Heusinkveld, P.Kabat, S.Scott, H.Soegaard, A.Verhoef (1997). A system to measure surface fluxes of momentum, sensible heat, water vapour and carbon dioxide. *J. Hydrol.*, 188-189, 589-611.

Pryor, S.C., 2006. Size-resolved particle deposition velocities of sub-100nm diameter particles over a forest. *Atmos. Environ.*, 40, pp. 6192-6200.

Pryor, S.C., S.E. Larsen, L.L. Sorensen, R.J. Barthelmie, T. Gronholm, M. Kulmala, S. Launiainen, U. Rannik and T. Vesala, 2007. Particle fluxes over forests: analyses of flux methods and functional dependencies. *J. Geophys Res.*, 112, D07205, doi:10.1029/2006JD008066.

Reischel, G.P., J.M.Maekelae, J.Necid, 1997. Performance of Vienna Type differential mobility analyser at 1.2-20 nanometer. *Aerosol Science and Technology*, 27: 651-672.

Ristimaki, J., A.Virtanen, M.Marjamaki, A.Rostedt, J.Keskinen, 2002. On-line measurement of size distribution and effective density of submicron aerosol particles. *Journal of Aerosol Science*, 33,1541-1557.

Rostedt, A., M.Marjamaki, J.Keskinen, 2009. Modification of the ELPI to measure mean particle effective density in real-time. *Aerosol Science*, 40, 823-831.

Slowik, J.G., K.Stainken, P.Davidovits, L.R.Williams, J.T.Jayne, C.E.Kolb, D.R.Worsnop, Y.Rudich, P.F.Deccarlo, J.L.Jimenez., 2004. Particle morphology and density characterization by combined mobility and aerodynamic diameter measurements. Part 2:Application to combustion-generated soot aerosol as a function of fuel equivalence ratio. *Aerosol Science and Technology*, 38, 1206-1222.

Vong, R.J., D. Vickers and D.S. Covert (2004). Eddy correlation measurements of aerosol deposition to grass. *Tellus B*, 56, pp. 105-117.

Webb, E. K., G. I. Pearman, and R. Leuning (1980). Correction of flux measurements for density effects due to heat and water vapour transfer. *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 106, pp. 85-100.

Zervas, E. & P.Dorlhene, 2006. comparison of exhaust particle number measured by EEPS, CPC and ELPI. *Aerosol Science and Technology*, 40, 977-984.

Lecce, 03/08/2011

dr. Antonio Donateo

MEASUREMENT OF SUB-MICRON AEROSOLS DRY DEPOSITION VELOCITY ON A HETEROGENEOUS FIELD BY EDDY CORRELATION USING AN ELECTRICAL LOW PRESSURE IMPACTOR AND A CONDENSATION PARTICLE COUNTER



G.Bacon¹, A. Donateo², D.Contini², D.Maro¹ and F.Belosi³

¹ IRSN (Institute of Radioprotection and Nuclear Safety), Cherbourg-Octeville, 50100, France

² ISAC (Institute of Atmospheric Sciences and Climate), National Research Council (CNR), 73100, Lecce, Italy

³ ISAC (Institute of Atmospheric Sciences and Climate), National Research Council (CNR), 40129 Bologna, Italy



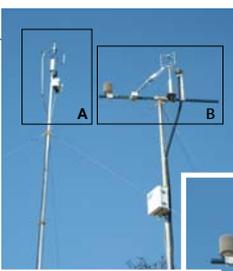
CONTEXT AND OBJECTIVES

To understand and quantify the impact of a chronic or accidental atmospheric release of pollutant in the form of aerosols in the environment, it is essential to know the transfer velocity of aerosols at the surface. Dry deposition velocity (V_d) is obtained by the ratio of flux deposited and the aerosol concentration measured in air. The direct measurement of turbulent fluxes is object of intense research efforts and various approach exist (Donateo *et al.*, 2006; Damay *et al.*, 2009). However, current measuring instrumentation is limited in its ability to provide size resolved particle number and mass fluxes. There are several works regarding the quantification of vertical turbulent fluxes based on different equipments and over different surfaces. The most used devices are surely the Condensational Particle Counter (CPC) and the inertial impactors. Here we report results of an inter-comparison campaign at a suburban location between a CPC and a DMA vs. ELPI for the determination of deposition velocity and size distribution.

EXPERIMENTAL SITE AND METHODOLOGY

Station A (10m) - IRSN Eddy Covariance System:

- Electrical Low Pressure Impactor (ELPI) by Dekati
- Ultrasonic anemometer Young, model 81000



Station B (10m) - ISAC Eddy Covariance System:

- Condensational Particle Counter (CPC) Grimm, Model 5.403
- Ultrasonic anemometer Gill R3
- LI7500 LICor Inc



Station C (2.5m) - ISAC

- Inlet DMA
- Differential Mobility Particle Sizer Model Grimm 5.500



Fig.1. Satellite map of experimental site by Google®. Red point indicate Mobile Laboratory position.



Fig.2 Mobile Laboratory and 2 stations very close each other for eddy correlation measurement.

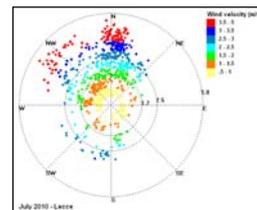


Fig.3 Wind direction rose for whole measurement period.

The measurement site (Fig.1) is the experimental field of the Lecce (Italy) Section of ISAC-CNR placed inside the University Campus (40°20'13.34''N, 18°07'22.03''E). The site is a rectangular field characterized by short vegetation, with two contiguous side at west with small trees. The site is characterized for at least 1 km in all directions by the presence of patches of trees (5m-10m tall) (Fig.2), small buildings and roads internal at the Campus. The displacement height has been estimated at 6.1 ± 0.4 m and the roughness length at 0.53 ± 0.02 m. The measurement was carried out from July 20th to 31th 2010 during daytime in unstable atmospheric condition.

Data Processing

High frequency data despiking

Synchronization of w and c (lag time)

Coordinate rotation: mean $W = 0$ detrend c , detrend T

Calculating covariance on 30 minutes
Quality test (Foken & Wichura, 1996) - confidence interval of 60%
Correction for low frequency response correction (Horst, 1997)

Dry deposition velocity

$$V_d = -\frac{w'c'}{\bar{c}}$$

V_d : dry deposition velocity (m.s⁻¹)

w : vertical wind velocity (m.s⁻¹)
 T : sonic temperature (°C)
 c : concentration (particles.m⁻³)

w' : fluctuation of vertical wind velocity (m.s⁻¹)
 T' : fluctuation of temperature (°C)
 c' : fluctuation of concentration (particles.m⁻³)

$w'c'$: deposit flux of particles (particles.m⁻².s⁻¹)

RESULTS AND DISCUSSION

Concentration and size distribution

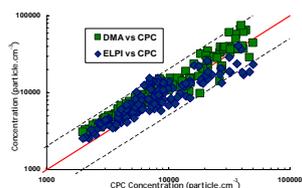


Fig.4. Comparison of ELPI, CPC and DMA particle number concentration (30 min average). The broken gray lines indicate a 50% deviation from the 1:1 line (red).

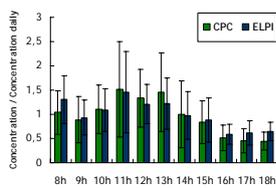


Fig.5. Comparison of CPC and ELPI daily pattern of normalized concentration (average of the whole campaign).

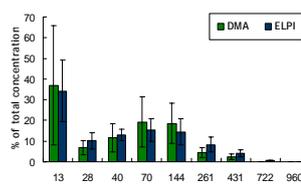


Fig.6. Comparison of DMA and ELPI size distribution for 21/07/2010. Error bar represent daily standard deviation.

Flux and deposition velocity

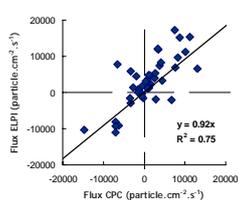


Fig.7. Fluxes after correction for low frequency response and quality test selection for the whole measurement period.

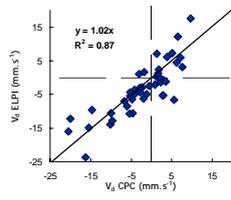


Fig.8. Dry deposition velocity measured with an ELPI and a CPC.

	CPC	ELPI	1/L (m ⁻¹)
Upward fluxes V_d/U^*	-0.0232	-0.0204	-0.025
Downward fluxes V_d/U^*	0.0117	0.0113	-0.0319

Table 1. Deposition velocity statistics separating upward and downward fluxes.

A comparison between particle number concentrations measured with ELPI, CPC and DMA is reported in Fig.4. The comparison between ELPI and CPC shows an underestimation (slope of 0.75) of concentration of ELPI, especially at concentrations larger than 10000 particles/cm³. This is likely due to internal losses in the impactor including losses due to the low pressure conditions (especially in the first stage of ELPI). The overall correlation between CPC and DMA is good even if the measurement heights are different. The slope is 1.17 ($R^2=0.89$). Once that concentrations have been normalized they shows a similar daily pattern (Fig.5) and a similar size distribution (Fig.6). With regard to particle size distribution (Ristimaki *et al.*, 2002), Fig.6 provides the normalized particle concentration in each bins. It should be noted that bins are centered to mean geometric diameters, without compensating for differences between the aerodynamic diameter for ELPI and the electrical mobility diameter for DMA (Khlystov *et al.*, 2004). These results are consistent with the data reported in Maricq *et al.* (2000). In Fig.7 is reported a comparison between vertical turbulent fluxes for ELPI and CPC similar behavior is observed in other days. Finally, in Fig.8 a scatter plot of dry deposition velocity V_d obtained with ELPI and CPC is reported showing good correlation with a determination coefficient of $R^2=0.87$ and a slope of 1.02.

CONCLUSIONS

The comparisons of particle number concentrations, size distributions and vertical turbulent fluxes shows that ELPI is measuring lower concentration with respect to CPC and DMA but having a similar daily pattern and a similar size distribution. Therefore ELPI could be a valuable instrument for atmospheric measurements and for evaluation of size-segregated deposition velocity. Results could be summarized as:

- particle number concentration ELPI concentration value are in agreement with DMA & CPC value but underestimate for concentration larger than 10000 particle.cm⁻³.
- particle size distribution comparison is good, also without compensating for differences between aerodynamic and electrical mobility diameter;
- vertical turbulent aerosol fluxes are in reasonable agreement for all period;
- aerosol dry deposition velocity comparison is good with a determination coefficient $R^2=0.87$ and a slope of 1.02 for whole period.

REFERENCES

- Damay, P.E. *et al.*, 2009. Journal of Aerosol Science, 40, 1050-1058.
 Donateo, A. *et al.*, 2006. Atmospheric Environment, 40, 1346-1360.
 Foken Th. *Et al.*, 1996. Agricultural and Forest Meteorology, 78, 83-105.
 Horst, T.W., 1997. Boundary-Layer Meteorology, 82, 219-233.
 Khlystov A. *et al.*, 2004. Aerosol Science and Technology, 38(S1), 229-238.
 Maricq M.M. *et al.*, 2000. Aerosol Science and Technology, 33, 239-260.
 Ristimaki *et al.*, 2002. Journal of Aerosol Science, 33,1541-1557.