

Disertační práce

**STANOVENÍ RESUSPENDOVATELNÉ
FRAKCE VE VZORCÍCH PŮD A
POULIČNÍHO PRACHU S VYUŽITÍM
RESUSPENZNÍ KOMORY**

Mgr. Martin Civiš

Školitel: RNDr. Jan Hovorka, Ph.D.



Univerzita Karlova v Praze

Přírodovědecká fakulta, Ústav pro životní prostředí

Praha 2010

PODĚKOVÁNÍ

Rád bych poděkoval svému školiteli RNDr. Janu Hovorkovi, Ph.D. za odborné vedení, cenné připomínky k práci a všestrannou pomoc během celého mého působení na Ústavu pro životní prostředí, Univerzity Karlovy v Praze. Současně bych rád poděkoval Dr. Wolfgangu Junkermannovi za odbornou pomoc a konzultace při zpracovávání leteckých dat a stavbě nephelometru po dobu stáže v německém Garmisch-Partenkirchenu. V neposlední řadě bych chtěl poděkovat své rodině a přátelům za jejich podporu a pochopení.

Tato práce byla finančně podpořena grantovou agenturou univerzity Karlovy č. 40307 a zahraniční stáž z evropského projektu INTROP č. 1304.

PŘEDMLUVA

S atmosférickým aerosolem se setkává každý z nás ať chce nebo nechce, přesto většinou v nejmenším netušíme, jak významně a dalekosáhle ovlivňuje jeho působení nejen život jednotlivce, ale celé naší planety. Důkazem může být nedávná erupce islandské sopky Eyjafjallajökull, která na několik dní zcela ochromila leteckou dopravu v Evropě. Teprve rozvoj moderních experimentálních technik nám dovolil poodhalit principy a zákonitosti působení atmosférického aerosolu, ale čeká nás mnohem větší práce, pokusit se získané znalosti využít v praxi tak, abychom se dovedli vlivu nepříznivých účinků vyvarovat, předcházet jim, případně je eliminovat.

Předložená disertační práce je zaměřena na vývoj laboratorního zařízení na disperzi pevných vzorků a následnou detekci vzniklého aerosolu za definovaných teplotně-vlhkostních podmínek. Vyvinuté laboratorní zařízení - resuspensní komora - bylo využito ke komplexní charakterizaci aerosolu ze vzorků hnědého uhlí, elektrárenského popílku, sádrovce a skrývkových zemin odebraných v severočeském hnědouhelném dole. Během svého doktorského studia jsem měl ještě možnost absolvovat několikaměsíční stáž na Ústavu pro výzkum meteorologie a klimatu v Garmisch-Partenkirchen. Výsledky stáže, měření optických vlastností aerosolů v mezní vrstvě atmosféry pomocí mobilní letecké platformy, jsou shrnuty v příloze A. Fyzikální parametry atmosféry spolu s početními koncentracemi částic sloužily jako vstupní data pro vytvoření modelu průchodu záření atmosférou, umožňujícího následné získání hodnot fotodisociačních frekvencí s vertikálním rozlišením. Hodnoty získané z modelu byly následně porovnány s hodnotami naměřenými během experimentálních letů. Byla tak zjištěna výpovědní hodnota matematického modelu.

OBSAH

1 ÚVOD	7
2 ZAŘÍZENÍ PRO ROZPTYL A NÁSLEDNOU DETEKCI AEROSOLU V LABORATOŘI.....	12
3 EXPERIMENTÁLNÍ ČÁST	14
3.1 Resuspenzní komora.....	14
3.2 Konstrukce komory	15
3.3 Regulace teploty a vlhkosti.....	16
3.4 Příprava a dávkování vzorků	18
3.5 Inlety a zařízení k odběru aerosolu na filtr	19
4 VÝSLEDKY A DISKUZE	20
4.1 Testy pomocí standardního křemenného prachu.....	20
4.2 Variabilita velikostní distribuce hmoty hlavních vzorků hnědého uhlí, sádrovce a elektrárenského popílku, odebraných v severočeském hnědouhelném dole	27
4.3 Gravimetrické analýzy hnědého uhlí a elektrárenského popílku.....	30
4.4 Elementární analýza elektrárenského popílku.....	33
4.5 Stanovení průměrných velikostních distribucí částic ve vzorcích odebraných v severočeském hnědouhelném dole pomocí APS	36
5 ZÁVĚR.....	58
SEZNAM POUŽITÝCH SYMBOLŮ A ZKRATEK:	60
LITERATURA:.....	62
SEZNAM PUBLIKACÍ:	67
PREZENTACE NA KONFERENCÍCH:	68
PŘÍLOHA A.....	69
STUDIUM ATMOSFÉRICKÝCH AEROSOLŮ S VYUŽITÍM LETECKÉ PLATFORMY, JEJICH VLIV NA PRŮCHOD SLUNEČNÍHO ZÁŘENÍ ATMOSFÉROU	69

1 VÝCHOZÍ STAV	70
2 EXPERIMENT	72
2.1 Vybavení letadla.....	72
2.2 Konstrukce nephelometru pro letecké platformy	74
2.3 Charakteristika letových dnů a záznam letových tratí.....	80
3 VÝSLEDKY A DISKUSE	82
3.1 Naměřené hodnoty fyzikálních parametrů	82
3.2 Vliv aerosolu na průchod záření atmosférou, matematický model	91
3.3 Fotodisociace molekul- model.....	91
5 ZÁVĚR	94

CÍL PRÁCE

Cílem této práce byla konstrukce zařízení umožňujícího disperzi pevných vzorků v definovaném objemu vzduchu a následná měření fyzikálních charakteristik vzniklého aerosolu a odběr jeho velikostně separovaných frakcí na filtr.

První část disertace pojednává o postupu konstrukce resuspenzní komory umožňující laboratorní simulaci rozptylu částic ve vzduchu za předem definovaných fyzikálních podmínek v závislosti na čase. Komora byla zkonstruována v laboratoři pro měření kvality ovzduší na Ústavu životního prostředí Přírodovědecké fakulty Univerzity Karlovy. Funkčnost komory byla otestována na standardním křemenném prášku o definované velikosti zrn.

V druhé části byla komora využita pro modelování resuspenze uhlíkatých a silikátových částic za definovaných teplotně-vlhkostních podmínek. Experimentální výstupy umožnily získat statistických a gravimetrických dat, poskytujících informace o velikostním a prvkovém složení distribuujících částic aerosolu v závislosti na čase.

Příloha A této práce je věnována modelu průchodu ultrafialového záření mezní vrstvou atmosféry, vytvořeného na základě dat získaných během letového měření. Za tímto účelem bylo ještě zkonstruováno přenosné zařízení (nephelometr) umožňující měření optických vlastností rozptýlených částic pomocí in-situ atmosférického monitoringu. Tato část byla splněna v rámci pobytu autora práce na Ústavu pro meteorologii a výzkum klimatu (IMK Institut für Meteorologie und Klimaforschung) v Garmisch-Partenkirchenu. Během tohoto pobytu bylo uvedené zařízení zkonstruováno a vyzkoušeno při atmosférickém monitorování fyzikálních vlastností mezní vrstvy atmosféry v rámci letecké kampaně v německém Porýní. Zde bylo prováděno měření pomocí ultralehkého letounu, který byl schopen měřit a zaznamenat fyzikální parametry (teplota, tlak, vlhkost, velikostní distribuce částic, rozptylové koeficienty, koncentrace atmosférického ozónu), které následně sloužily jako vstupní parametry pro vytvoření modelu popisujícího optické vlastnosti vertikálního aerosolového sloupce, jež byly následně porovnány s přímými hodnotami získanými během letového měření.

1 ÚVOD

Problematika resuspenze je řešena od konce třicátých let dvacátého století. Velice důležitým zdrojem hrubých částic atmosférického aerosolu je prach produkovaný mnoha různými povrchy a způsoby, jako jsou pouště bez vegetace, zemědělské plochy, povrchy silnic a cest, zdevastovaná krajina, sopečné erupce, staveniště a průmyslové zóny, nebo aerosoly produkované těžbou hornin či spalovacími procesy v průmyslu na celé naší planetě. Znečištění atmosférickým aerosolem vzhledem k výšce koncentrací, překračování limitních hodnot i prostorovému rozšíření patří k jednomu z největších problémů současné kvality ovzduší v industrializovaném světě, tedy i v České republice. Zatímco důsledky působení plynných polutantů na lidské zdraví jsou již dobře prozkoumány a zpracovány, o původu, chování a působení aerosolových částic je známo méně. Řada studií v minulosti (Dockery et al., 1993; Pope et al., 1995) poukázala na nepříznivé účinky aerosolových částic na lidské zdraví a vegetaci. Z původních odběrů celkového vzorku aerosolu bez velikostního rozlišení částic – TSP (Total Suspended Particles) přešla většina zemí k měření tzv. thorakální frakce aerosolu PM_{10} (soubor částic na filtru, kterému je předřazeno zařízení separující s 50% účinností částice o aerodynamickém průměru 10 μm). V devadesátých letech minulého století byla publikována studie, která poukázala na vyšší korelaci mezi negativními účinky $PM_{2.5}$ na lidské zdraví, než má PM_{10} (Schwartz et al. 1996). To vedlo také k regulaci emisí PM_x (PM_{10} a $PM_{2.5}$) a k nastavení nejvýše přípustných limitů pro imise aerosolových částic v USA a EU. V současné době jsou ve světě tendence přecházet k měření frakcí aerosolu $PM_{1.0}$, k měření závislosti počtu částic na jejich velikosti a nebo k měření hrubé (coarse) frakce aerosolu PM_{10} - $PM_{2.5}$

V České republice patří k nejvíce znečištěným oblastem Praha, Ostrava a některá malá sídla. TSP a postupně PM_{10} jsou zde kontinuálně monitorovány již řadu let Českým hydrometeorologickým ústavem a hygienickou službou. Aerosol je emitován do atmosféry zejména pomocí větrné turbulence, prašnými bouřemi, větrnou abrazí pŮd a hornin, nebo odvátím částic aerosolu z nekontrolovaných skládek. Resuspenze tohoto aerosolu je pak dalším významným zdrojem aerosolu jak pro lokální, tak interkontinentální vzdušné masy.

Resuspenze je proces, který je velice úzce spjat s adhezí, odtrhnutím částic z povrchu matečného materiálu a jejich transportem pryč. Resuspenze vzniká

v důsledku silného vzdušného proudění, mechanickými silami, dopadem jiných částic nebo elektrostatickými silami. Reentrainment nebo odvátí je specifický termín, který se váže spíše na vysokorychlostní proudění. U ostatních jevů je pochopena jejich podstata, ale hůře se pak počítá pravděpodobnost vzniku resuspenze.

Na rozdíl od statické adheze může resuspenze obsahovat rolování a klouzání částic před jejich samotným vzletem. Síly potřebné ke vznosu těchto částic jsou stokrát menší než síly potřebné ke statickému odtržení částic v centrifuze.

Reentrainment je stochastický proces, kdy je možné pouze za určitých podmínek proudění spočítat aerosolové frakce dané velikosti, které budou odtrženy z povrchu. Čím je velikost částice a rychlost proudění větší, tím je větší pravděpodobnost reentrainmentu.

Během častých turbulentních proudění vzniká na povrchu těles takzvaná tenká mezní vrstva. Částice menší než je tato vrstva jsou částečně chráněny před reentrainmentem. Pokud dojde k reentrainmentu těchto částic, je to jen díky vzniku náhodných turbulentních proudů, které pronikají skrze mezní vrstvu a odtrhávají částice. Tento reentrainment je časově závislý, čím delší časová expozice spolu se změnami rychlosti proudění (pulzování), tím větší reentrainment částic dané velikosti.

Situace je jiná, pokud se nachází na povrchu vrstva částic. V tomto případě mohou vzniknout dva procesy. Prvním případem je odtržení jednotlivých částic z horní části této vrstvy v podobě jednotlivých částic nebo malých clusterů. Tento proces se nazývá eroze. Druhým procesem je denudace, která spočívá v odtržení celého velkého kusu vrstvy částic. Proces reentrainmentu, který převládne, bude vždy záviset na adhezivních silách mezi částicemi navzájem a mezi částicemi a povrchem. Eroze sílí v závislosti na době expozice vzdušnému proudění, zatímco denudace je kompletní v čase kratším než jedna sekunda. Studie prováděné Zimonem (1982) ukázaly, že denudace různých minerálních prachů o velikostech od 10 do 87 μm probíhaly během rychlosti proudění vzduchu od 3 do 10 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$.

Vrstva částic může být také kromě vzdušného proudění resuspendována dopadem jiných částic. Tento způsob resuspenze je dokonce častější a má podstatný význam pro erozi půdy, emisi pouličního prachu a záchyt nesprávných částic při gravimetrických měřeních atmosférického aerosolu. John (1995) a jeho spolupracovníci zkoumali resuspenzi 8.6 μm částic fluoridu amonného pomocí dopadu 3 μm částic taktéž fluoridu amonného. Proud těchto částic byl kolmý k povrchu, dopadová rychlost pak byla 40 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$. Výsledky těchto pokusů ukázaly vysokou variabilitu resuspenze.

Při dopadu hmotných částic dochází často k jejich odskoku. Pokud částice o malé rychlosti (menší než několik $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$) dopadne na nějaký povrch, dojde ke ztrátě její kinetické energie. Tato energie pak deformuje samotnou částici a povrch tělesa. Čím větší rychlost částice, tím větší deformace a lepší adheze. Při vysokých rychlostech dopadu částic je část kinetické energie rozdělena do deformačních dějů (plastická deformace) a část přeměněna do elasticko-kinetické energie odrazu. K odrazu dojde vždy, pokud je elasticko-kinetická energie větší než adhezni síly. Odskakování částic se může objevit u částic různých velikostí, které by byly za statické situace silně připoutány k povrchu adhezni silami. K odskakování nedochází u částic se silnou deformací jako kapičky nebo dehet. Maximální odskokové rychlosti vznikají při středních dopadových rychlostech.

Problém odskoku částic byl studován při odběrech pevných částic na vláknové filtry s předřazeným impaktorem. Čím větší rychlost, velikost a tvrdost částice, tím větší pravděpodobnost vzniku odskoku, ovšem drsnost povrchu tělesa, na který částice dopadá, hraje také velkou roli. Povrchy namazané olejem nebo vazelínou zvyšují adhezni síly a deformaci, čímž značně znesnadňují odskakování částic (Hinds, 1999).

V současné době jsou používány dva přístupy, které definují podmínky za kterých dochází k odskoku částic. První přístup definuje limitující adhezi nebo kinetickou energii a druhý definuje kritickou rychlost V_c , za které dojde k odskoku částice, pokud byla tato kritická rychlost překročena. Kritická rychlost má následující rovnici:

$$V_c = \frac{\beta}{d_a},$$

kde β je konstanta závisící na materiálech a geometrické situaci. d_a je aerodynamický průměr částice. Cheng definoval horní limit dopadající rychlosti ($\beta=2\cdot 10^{-6} \text{ m}^2\cdot\text{s}^{-1}$), při které nebude docházet k odskokům částic (Cheng *et al.* 1979). Wall prováděl měření kritické rychlosti u částic fluoresceinu amonného, kdy tyto částice dopadaly na 4 různé druhy materiálu (Wall *et al.* 1990). Hodnoty β u tohoto experimentu se pohybovaly od $7.4\cdot 10^{-6}$ až do $2.9\cdot 10^{-5}$ se střední hodnotou $1.3\cdot 10^{-5} \text{ m}^2\cdot\text{s}^{-1}$.

Dahneke definoval rovnici kinetické energie potřebné k odskoku částice při kolizi s tělesem:

$$KE_b = \frac{d_p A(1-e^2)}{2xe^2},$$

kde x je předem definovaná separační vzdálenost, A je Hamakerova konstanta, e je pak koeficient restituace částice, který je roven poměru odrazové a dopadové rychlosti

částice. Reprezentativní hodnoty e se pohybují od 0.73 do 0.81 (Wall *et al.* 1990). Členy rovnice A a e závisí pouze na materiálu částice a povrchu tělesa. V současné době se výpočty provádějí pomocí těchto experimentálně zjištěných konstant. Ellenbeckerova regrese udává pravděpodobnost odskoku částic nepravidelného polévatého popela P_b s $CMD=0.14 \mu\text{m}$ (nejčtenější hodnota průměru částice) proti kinetické energii v J: $P_b=1-0.000224 \cdot (KE)^{-0.233}$.

Tuto rovnici podporují další výzkumy, které používaly částice chloridu sodného a uranu do velikosti $15 \mu\text{m}$. Rovnice udává 0 % a 50 % pravděpodobnost odskoku při KE $2 \cdot 10^{-16}$ a $4 \cdot 10^{-15}$ J. Tyto hodnoty odpovídají dopadovým rychlostem 0.03 a $0.12 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ pro částice o velikosti $10 \mu\text{m}$ a standardní hustoty.

Podle hustoty, tvaru a aerodynamického průměru mají resuspendované částice různou usazovací rychlost. Pokud je částice vypuštěna do nepohybujícího se plynu, velice rychle dosáhne usazovací rychlosti, což je stav, kdy odpor vzduchu F_D působící na částici je stejný, ale s opačným znaménkem, než má gravitační síla F_G . Rovnice usazovací rychlosti má tvar:

$$V_{TS} = \frac{\rho_p d^2 g}{18\eta},$$

pro částice o průměru $d > 1 \mu\text{m}$ a Re (Reynoldsovo číslo) < 1.0 , kde ρ_p je hustota částice, d průměr částice, g gravitační rychlost a η viskozita. Usazovací rychlost rapidně roste se čtvercem průměru částice, ve Stokesově oblasti je nepřímo úměrná viskozitě a nezávisí na hustotě plynu. Částice aerosolu dosahují usazovací rychlosti téměř okamžitě a ve většině reálných situací je možné charakterizovat pohyb částic pomocí V_{TS} (Terminal Settling Velocity). U částic, které jsou menší než $1 \mu\text{m}$ a mnohdy dosahují velikosti rovnající se střední volné dráze plynu, dochází k rychlejšímu usazování, neboť relativní rychlost plynu na povrchu těchto částic není nulová. Je nutné proto provádět „Slip“ (smykovou) korekci pomocí Cunninghamova korekčního faktoru C_c . Cunninghamův korekční faktor se vypočítá podle následujícího vzorce:

$$C_c = 1 + \frac{2.52\lambda}{d},$$

kde λ je střední volná dráha plynu a d je opět průměr částice. Střední volnou dráhu plynu lze získat ze vzorce $\lambda = \frac{1}{\sqrt{2n\pi}d_m}$, kde d_m je kolizní průměr molekul definovaný jako vzdálenost mezi středy dvou molekul při vzájemném střetu, n je objemová

koncentrace molekul plynu. Rovnice pro výpočet V_{TS} pro částice s průměrem od 0.1-1 μm a $Re < 1.0$ je následující:

$$V_{TS} = \frac{\rho_p d^2 g C_c}{18\eta}$$

Pro částice menší než 0.1 μm lze také vypočítat Cunninghamův korekční faktor z experimentálně zjištěných dat. Pokud má částice rychlost Re v rozmezí 0.5 – 1000 (případy sopečné exploze nebo exploze špinavých bomb), lze vypočítat V_{TS} dle následující rovnice:

$$V_{TS} = \left(\frac{4\rho_p d_p g}{3C_D \rho_g} \right)^{0.5},$$

kde C_D se získá z rovnice:

$$C_D = \frac{24}{Re} (1 + 0.15 Re^{0.687}).$$

Vzdálenost, kdy se částice zastaví, je nejdůležitější pro velké částice s velkými rychlostmi, které mají alespoň v počátku často rychlost mimo Stokesovu oblast. Pomocí rovnice:

$$S = \frac{\rho_p d}{\rho_g} \left[Re_0^{1/3} - \sqrt{6} \arctg \left(\frac{Re_0^{1/3}}{\sqrt{6}} \right) \right]$$

lze vypočítat vzdálenost zastavení částic různých velikostí a hustot pro Re_0 do < 1500 . I při takto vysokých rychlostech jsou konečné dráhy, kdy se částice zpomalí na nulu, velice krátké a částice se zpomalují velice rychle. Toto rapidní zpomalení podtrhuje fakt, že nelze hodit ani velkou částici moc daleko. Ve většině případů, jako například sprej, výbuch nebo přírodní konvekce, je nosným prvkem částic vždy plyn.

Generování, záchyt a měření v kontrolovaném laboratorním prostředí může být velice důležitým nástrojem k určení emisních potenciálů různých zdrojů prachu i ke zjištění fyzikálních charakteristik, chemického složení nebo toxikologických rizik spojených s emisí částic do ovzduší ze specifických lokalit nebo zdrojových materiálů.

2 Zařízení pro rozptyl a následnou detekci aerosolu v laboratoři

Během dvacátého století bylo v literatuře popsáno několik desítek zařízení na produkci nebo resuspenzi prachu. Tato zařízení byla konstruována pro celou řadu různých účelů: například k simulaci kontaminovaného vzduchu uvnitř prašné tovární budovy (Dahmann *et al.* 1997); pro kontrolu průmyslových procesů (ASTM 1984); ve farmaceutickém průmyslu- vývoj zařízení suchých inhalátorů, které maximalizují koncentraci jemného aerosolu z důvodu co nejvzdálenějšího doletu částic uvnitř dýchacího traktu po jejich inhalaci (Hindle *et al.* 1995, Jashnani *et al.* 1995, Concessio *et al.* 1997, Newman *et al.* 2002, Newman *et al.* 2004); vystavování laboratorních zvířat vysokým koncentracím minerálních aerosolů z důvodů studie respiračních nemocí (Muhle *et al.* 1990, Nanesen *et al.* 1992); příprava vzorků pro chemické analýzy (Morales *et al.* 1994); měření ekofyziologických efektů akumulace prachu na listech stromů (Hirano *et al.* 1995); simulace průniku pevných částic do budov (Lewis 1995, Chen *et al.* 1999). Dále jsou již celou řadu let připravovány standardní prachy s různou velikostí částic a indexem lomu světla, které se používají zejména k testování efektivity záchytu částic na filtračních zařízeních nebo k testování optických přístrojů měřících rozptyl světla na částicích aerosolu. Nejznámější standardní prach je Arizona dust, jehož využití se datuje do začátku 40 let dvacátého století (SAE Handbook 1943). Zatím bylo bohužel vyvinuto jen velice málo zařízení, která se striktně zabývala produkcí a výzkumem prachu nebo minerálního aerosolu z hlediska jejich podílu na celkové koncentraci aerosolu v ovzduší.

Prvními průkopníky, kteří vybuodovali vlastní laboratorní zařízení na testování produkce prachu různých materiálů, byli koncem třicátých let dvacátého století Němci Andreasen, Hofman-Bang a Rasmusen (Andreasen *et al.* 1939). Ke svým experimentům použili dlouhou tenkostěnnou trubici, ve které měřili čas usazování částic různých materiálů a tím podle Stokesova zákona odvozovali jejich velikost. Tento výzkum zahrnoval i první měření frakcionace částic za různých podmínek relativní vlhkosti vzduchu a vlhkosti matečného materiálu. Jejich zařízení se dá považovat za předchůdce celé řady moderních přístrojů na produkci prachu a sledování volného pádu částic různých velikostí (Cheng 1973, Sutter *et al.* 1982, Heitbrink *et al.*

1992, Lanning 1995). Dále byla postupně konstruována další zařízení na tvorbu prachu, která byla založena na vibračním prosévání materiálu sítím (Deichman *et al.* 1944, Sonkin *et al.* 1946), nebo na vytváření prachu pomocí škrabky, porušující matečný materiál umístěný na rotujícím válci (Wright 1950, Graham *et al.* 1985).

Pro většinu laboratorních metod, které se zabývají produkcí prachu z matečných materiálů nebo resuspenzí ve vztahu k atmosférickému aerosolu (venku nebo ve vnitřních prostředích) je jedno společné, a to fyzický odběr aerosolových vzorků na filtračních médiích a následné provedení gravimetrických analýz. V literatuře je jen velice málo záznamů o použití jiných technologií založených na bázi optických senzorů (Li *et al.* 1996) nebo pomocí TEOM (Tapered-Element Oscillating Microbalance) (Busacca *et al.* 1997, Breum 1999).

Během rozsáhlých projektů Large- Scale Biosphere- Experiment in Amazonia (LBA) a Cooperative LBA Airborne Regional Experiment (CLAIRE) v roce 1998 v Brazílii a Surinamu byly v březnu 1998 překročeny pravidelné hodnoty koncentrací PM_{10} o faktor 3. Chemické analýzy a optická měření potvrdily, že se jedná o resuspendovaný prach ze saharských pouštních bouří. Došlo zde k mezikontinentálnímu transportu aerosolových částic z jedné části planety a následnému ovlivnění klimatického systému na jiné části planety (Andreae, 2001).

Resuspendovaný aerosol z pouličního prachu a zemědělských ploch přilehlých k městu se výrazně podílí na celkovém množství aerosolu rozptýleném v městském i periferním ovzduší (Watson *et al.*, 1989). Studie prováděné na západním pobřeží USA v devadesátých letech minulého století ukazují, že na celkové imisi PM_{10} se až z 80 % podílí resuspendovaný aerosol (Bernard *et al.*, 1992; California Air Resources Board, 1990). Odhady poměru mezi zdroji aerosolu a měření poměru mezi resuspendovatelnou a neresuspendovatelnou složkou aerosolu jsou velice komplikované zejména z důvodu různého stupně eroze zemského povrchu (Cowherd, 1992; Fryrear, 1992).

Jedním ze způsobů, jak zjistit poměr mezi resuspendovatelnou a neresuspendovatelnou složkou pouličního prachu, případně půd ze zemědělských ploch, je odebrat příslušné vzorky půd a pouličního prachu v centru a na okraji města a provést jejich resuspenzi v resuspenzní komoře v laboratoři (Chow *et al.*, 1994, Gill *et al.*, 2006, Shiotsuka *et al.*, 1992). Resuspendovaný vzorek lze poté velikostně-selektivními odběrovými hlavicemi rozdělit do několika velikostních frakcí a z jejich hmotností vypočítat poměr mezi resuspendovatelnou a neresuspendovatelnou složkou vhodného vzorku. Následným stanovením elementárního složení exponovaných filtrů z

resuspenzní komory a jeho porovnáním s elementárním složením městského aerosolu příslušné velikostní frakce lze odhadnout podíl resuspendovaného aerosolu na celkové koncentraci atmosférického aerosolu.

3 Experimentální část

Vývoj resuspenzní komory vycházel z předlohy funkčního zařízení používaného v Desert Research Institutu (DRI), University and Community College System of Nevada, USA (Chow *et al.* 1994). Zatímco v DRI byl používán hranolový tvar nádoby o objemu 400 l, v popisovaném uspořádání byl použit cylindrický tvar o stejném objemu, který lépe dovoluje promíchávání aerosolu. Suspenze aerosolu probíhá pomocí stlačeného plynu do předem navolených teplotně-vlhkostních podmínek (15-40 °C, RH 20-80 %).

3.1 Resuspenzní komora

Resuspenzní komoru lze vyrobit z celé řady materiálů, ale z důvodu případných přenosů náboje ze stěn nádoby a z důvodů vysokých relativních vlhkostí při určitých měřeních během resuspenze vyhovuje nejlépe těmto experimentům nerezová ocel nebo obyčejná žárově pozinkovaná ocel. Dle finančních možností lze nádobu nechat kompletně vyrobit z předem daného materiálu nebo modifikovat komerčně dostupné zařízení (boiler, filtrační věž nebo vzdušník). V popisovaném uspořádání byl z důvodů omezených finančních zdrojů studentského grantu zakoupen válcový komerční vzdušník od brněnské společnosti Aquaproduct, který byl následně modifikován pro účely resuspenze a aerosolového měření v hradecké společnosti BET. S rostoucím objemem nádoby lze zanedbávat vliv stěn a dalších elementů uvnitř nádoby, které ovlivňují resuspenzi. Optimální objem nádoby, která se vejde do průměrné laboratorní místnosti a lze s ní ještě poměrně snadno manipulovat, je 0.4-0.5 m³. Vyvinutá resuspenzní komora je vyrobena z žárově pozinkované oceli.

3.2 Konstrukce komory

Objem nádoby (V) je $0,437 \text{ m}^3$, vnitřní povrch (S) je $0,35 \text{ m}^2$ a poměr S/V $8,38$ (viz obr. 1). Do středu stěn nádoby jsou proti sobě umístěny dva asynchronní ventilátory s regulovaným výkonem 15 W , sloužící k vytvoření turbulentního prostředí. Ventilátory jsou zavěšeny na otočných hlavách, které podle potřeby a nastavení umožňují vznos částic ve vzduchu ($5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$) nebo jejich zvýšenou depozici v turbulentním prostředí, v neposlední řadě zajišťují homogenní rozmíchání vlhkého a teplého vzduchu v objemu komory před samotným experimentem. Ventilátory jsou napájeny střídavým napětím 230 V společným kabelem z elektrické sítě, přičemž každý z ventilátorů má svoji vlastní regulaci.



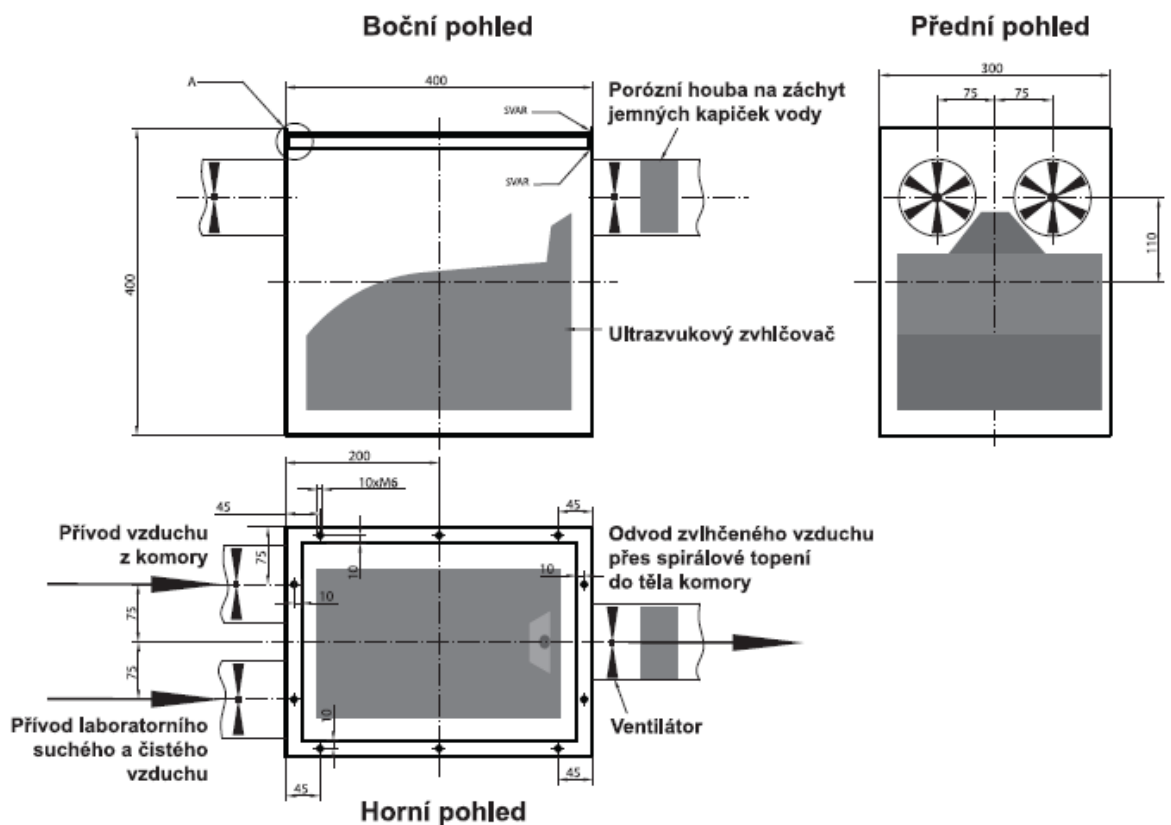
Obrázek 1: Resuspenzní komora Přf. UK.

V horní a dolní části komory byly umístěny průchodky o průměru 100 mm s mechanicky uzavíratelnou klapkou tak, aby mohl být podle potřeby oddělen vnitřní objem komory od vnější cirkulace vzduchu.

3.3 Regulace teploty a vlhkosti

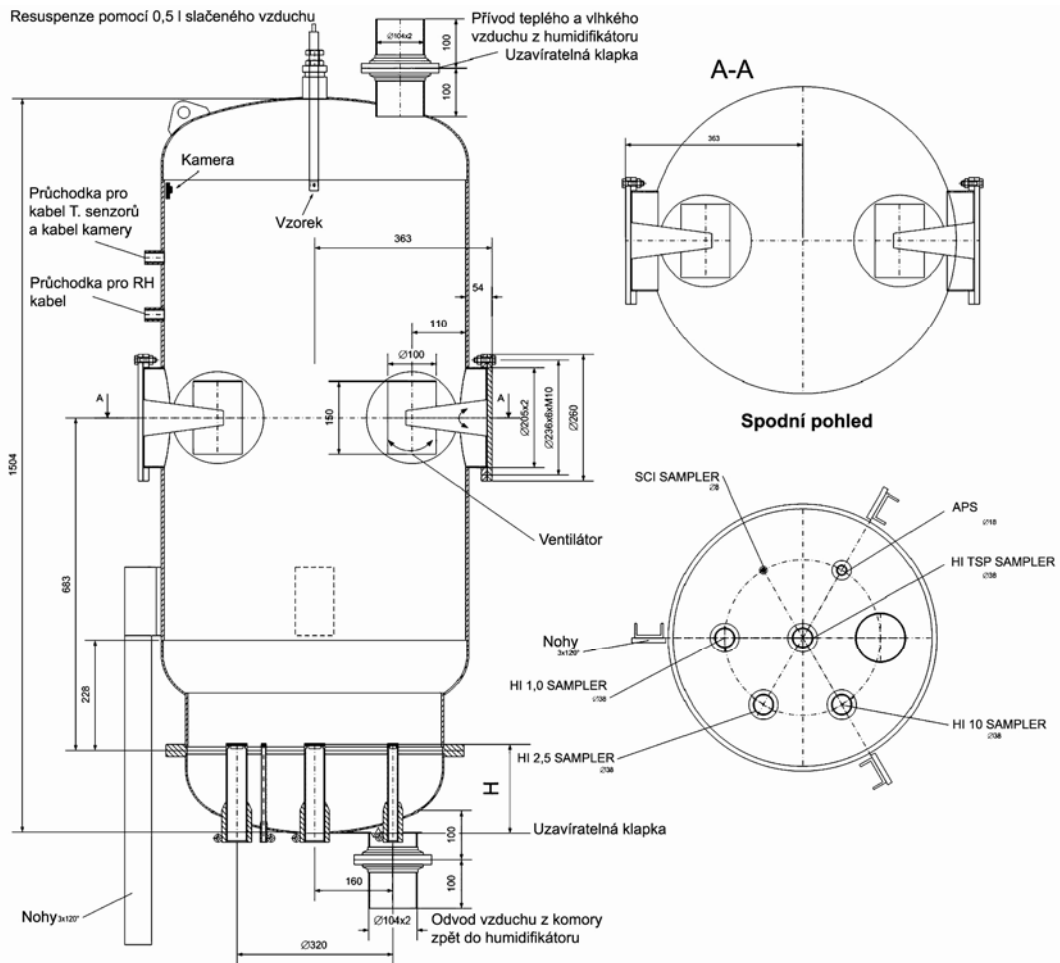
K horní průchodce je dvoustěnnou tepelně izolovanou hliníkovou hadicí přiváděn vzduch procházející zvlhčovačem a spirálovým topením (o vlhkosti 20-80% a teplotě 15-40 °C). Jak zvlhčovač tak topení má svou vlastní regulaci a má své vlastní

připojení do elektrické sítě střídavého napětí 230 V. K dolní průchodce je opět připojena stejná hadice pro odvod vzduchu z prostoru komory a přivádí jej tak cyklicky zpět do zvlhčovače. Díky této cirkulaci lze uvnitř komory dosáhnout požadovaných teplotně vlhkostních podmínek. Dvě teplotní čidla s přesností ± 0.5 °C a dvě vlhkostní čidla s přesností ± 4 RH sledují teplotu a vlhkost uvnitř komory v horní (1300 mm od základny odběrových hlavic) a dolní čtvrtině nádoby (430 mm od základny odběrových hlavic). Čidla jsou propojena s webovým serverem Poseidon 3268, který je síťovým kabelem spojen s počítačem. Údaje o teplotě a vlhkosti jsou ukládány v pětisekundových intervalech pomocí programu PN Eye. Zvlhčování vzduchu je prováděno pomocí komerčního ultrazvukového zvlhčovače s destilovanou vodou, který je umístěn v samostatné pozinkované nádobě s jedním výstupním a dvěma vstupními otvory, z nichž každý obsahuje asynchronní ventilátor s regulovaným výkonem (15 W) a manuální uzavíratelnou klapku. Rozptýlené vodní kapičky jsou zachytávány vysoce pórovitou houbou se 100 % účinností (testováno pomocí APS- Aerodynamic Particle Sizer). Na obrázku 2 je vidět schéma nádoby se zvlhčovačem.



Obrázek 2: Schéma vnější nádoby se zvlhčovačem (humidifikátorem).

Vyčištění vzduchu od volných prachových částic je prováděno pomocí předřazeného HEPA filtru, vstupní vzduch je zbaven vlhkosti pomocí silikagelu. Na obrázku 3 je zachyceno detailní schéma resuspenzní komory.

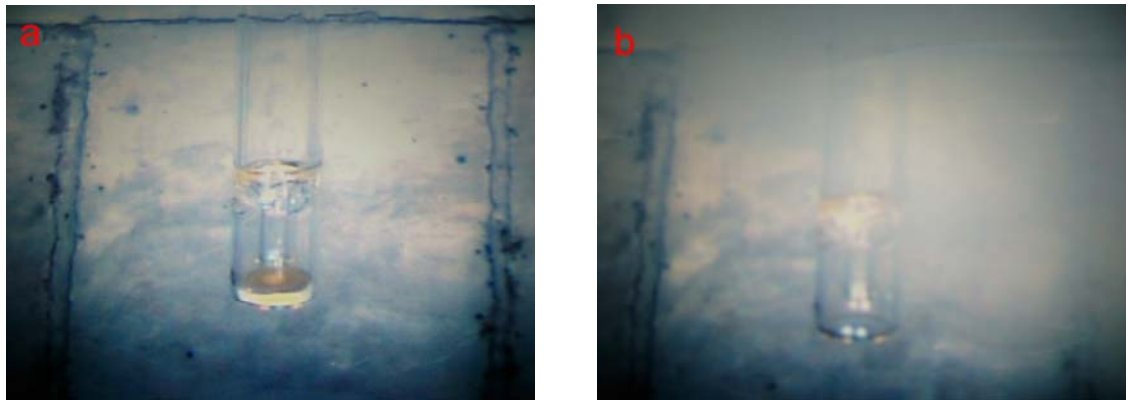


Obrázek 3: Schéma resuspenzní komory.

3.4 Příprava a dávkování vzorků

Před suspenzí je potřeba zkoumané vzorky nejprve vysušit při teplotě 40 °C a následně přesítovat Tyllerovým sítem s mezerami ok 0,037 mm. Jednotlivé vzorky je pak možné odvážit do speciální skleněné trubice, která má ve spodní části čtyři trysky. Trubice je následně vložena do průchodky umístěné ve středu horní podstavky komory. Po dosažení teplotně-vlhkostních podmínek je vzorek pneumaticky rozptýlen pomocí 0,8 l stlačeného suchého vzduchu z tlakové láhve, výsledná rychlost proudění z trysek

dosahuje $6 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$. Proces suspenze je možné sledovat prostřednictvím kamery, která je umístěna uvnitř komory (viz obr. 4).



Obrázek 4: a) Standardní křemenný prach před suspenzí. b) Standardní křemenný prach po suspenzi.

3.5 Inlety a zařízení k odběru aerosolu na filtr

Podstava komory je odnímatelná po povolení obvodového šroubení a spoj podstavy a těla komory je utěsněn pryžovým těsněním. Podstava může obsahovat dle potřeby odběrové hlavice různých průměrů (viz obr. 5).



Obrázek 5: Odběrové hlavice odjímatelné podstavy resuspenzní komory.

K odběru velikostních frakcí je možno použít čtyř Harvard impaktorů: TSP (Total Suspended Particulate), 10, 2.5 μm s průtokem 1 $\text{l}\cdot\text{min}^{-1}$ a 1.0 μm s průtokem 23 $\text{l}\cdot\text{min}^{-1}$. Dále lze použít odběrovou hlavici k připojení Sioutas kaskádního impaktoru, který je schopen odebírat velikostní frakce >2.5 , 2.5-1.0, 1.0-0.5, 0.5-0.25, <0.25 μm při průtoku 9 $\text{l}\cdot\text{min}^{-1}$. Vzorek je tak během odběru separován a zachycen na jednom 37 mm a čtyřech 25 mm PTFE (polytetrafluorethylen) předvážených filtrech. Filtry s deponovaným aerosolem lze podrobit chemické analýze.

K jedné odběrové hlavici je připojeno zařízení APS (model 3321), které v různých integračních intervalech (nejčastěji 5s) sleduje velikostní distribuce částic v rozmezí od 0,524 do 20 μm . V závislosti na suspendovatelném množství jednotlivých vzorků musí být analyzovaný aerosol před vstupem do APS ředěn čistým vzduchem (u sledovaných vzorků byl použit koeficient ředění 6,7x). Inlet APS má tak ještě boční přívod ředícího vzduchu s nastavitelným průtokem a předřazeným HEPA filtrem. Tabulka 1 shrnuje přístrojové vybavení, použité k analýze suspendovaného aerosolu.

Tabulka 1. Typy použitých impaktorů.

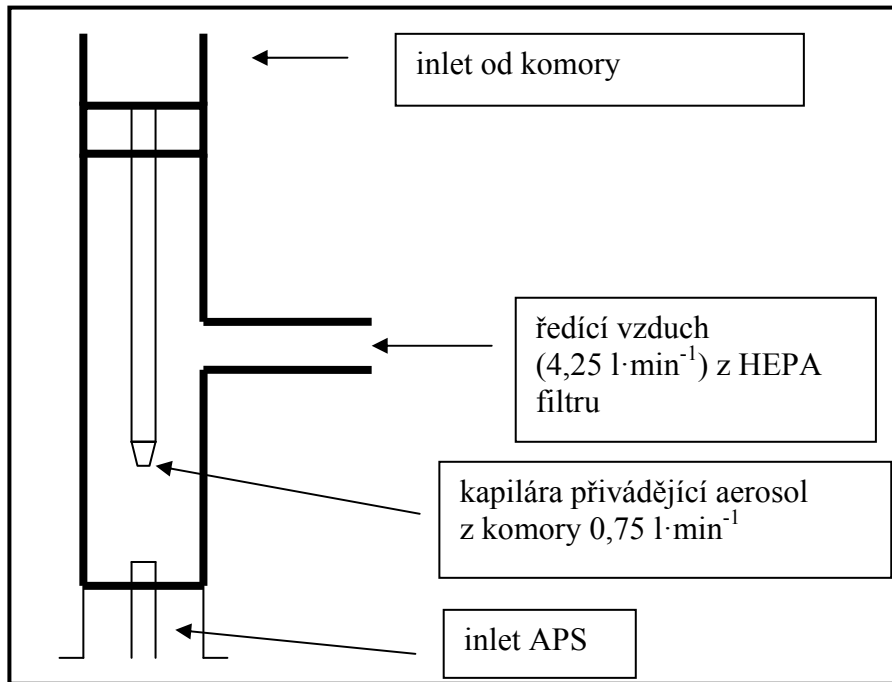
Harvard Impactor	TSP	PM10	PM2.5	PM1	
Sioutas Cascade Impactor	>2.5 μm	2.5-1.0 μm	1.0-0.5 μm	0.5-0.25 μm	<0.25 μm
Aerodynamic Particle Sizer	0.5-20 μm (52 kanálů)				

4 Výsledky a diskuze

4.1 Testy pomocí standardního křemenného prachu

První testovací experimenty byly prováděny při teplotě 20 $^{\circ}\text{C}$ a RH 50 % za použití standardního křemenného aerosolu o hustotě 2.65 $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$. Bylo provedeno 5 resuspenzí s navážkami 10, 25, 50, 75 a 100 mg. Průběh hmotnostní koncentrace každé resuspenze byl detegován pomocí APS s časovým rozlišením 5 s, naměřené velikostní distribuce byly přímo korigovány podle hustoty jednotlivých vzorků, dále pak byly opraveny

koeficientem ředění (6.7), neboť početní koncentrace dispergovaných částic dosahovala hodnot až 10^7 částic na cm^3 a analyzovaný vzduch musel tak být naředěn čistým suchým vzduchem. Schéma ředící trysky je na obrázku 6.



Obrázek 6: Schéma ředícího inletu k APS.

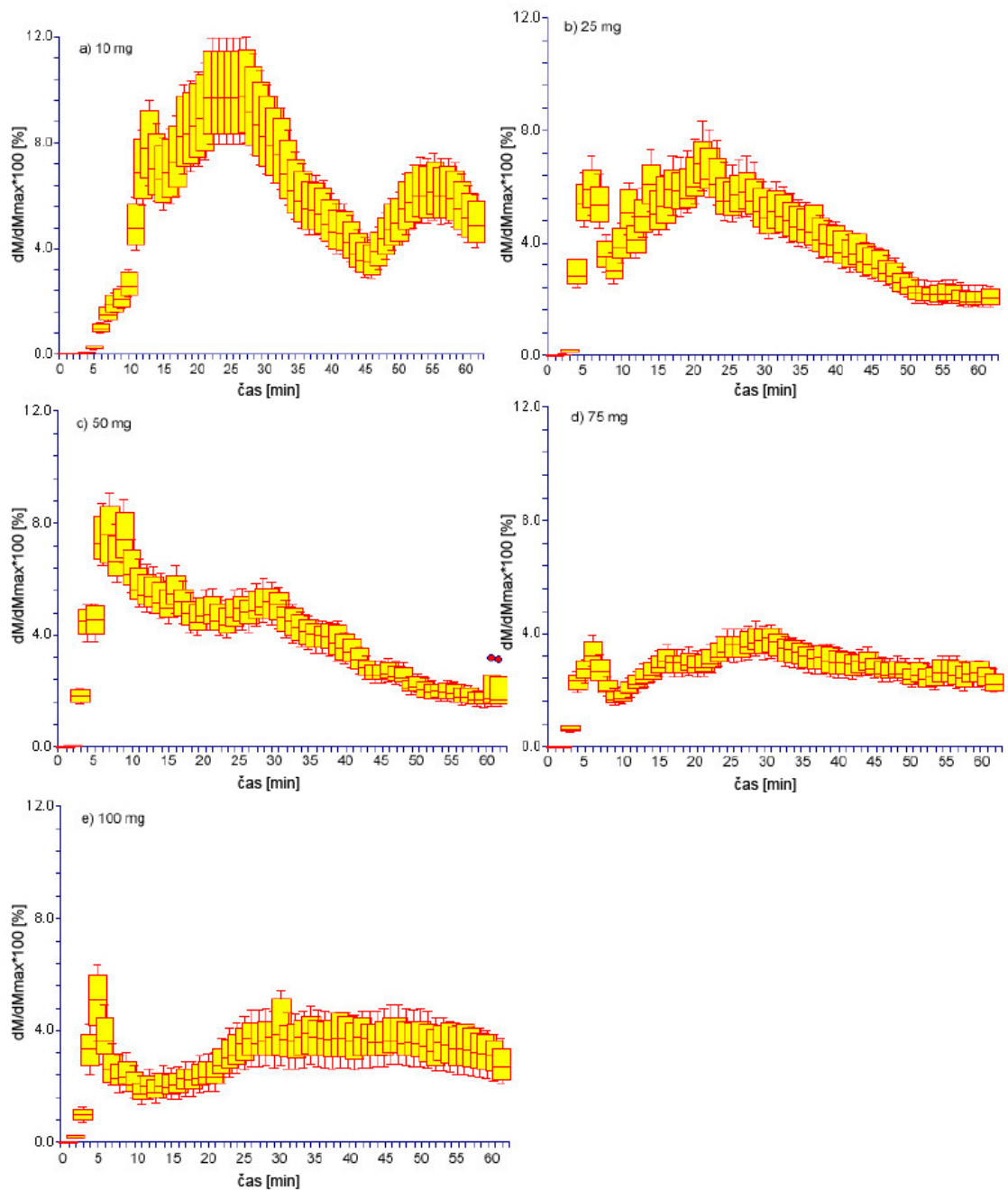
Inlet APS pracuje s průtokem $5 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$. Průtok vzduchu přiváděného z komory k inletu APS je $0,75 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$, průtok ředícího plynu přiváděného bočním vstupem do ředícího inletu je $4,25 \text{ l} \cdot \text{min}^{-1}$.

Míra resuspenze jednotlivých vzorků o různých hmotnostech je vyjádřena jako procentuální podíl naměřené hmotnostní koncentrace a maximální možné koncentrace vzorku stanovené pro jednotlivé navážky. Tabulka 2 ukazuje maximální hmotnostní koncentraci ($\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$) po suspenzi různých hmotností vzorku v objemu resuspenzní komory.

Tabulka 2. Maximální hmotnostní koncentrace při suspenzi 10, 25, 50, 75 a 100 mg vzorku.

Suspendovaná hmotnost vzorku [mg]	Hmotnostní koncentrace při 100 % suspenzi [$\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$]
10	22.88
25	57.25
50	114.41
75	171.62
100	228.83

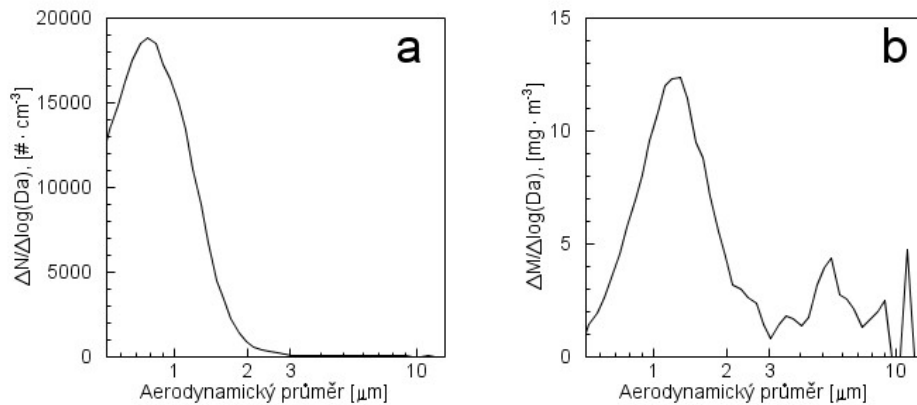
Míra resuspenze pro jednotlivé navážky křemenného prachu je patrná z obrázku 7.



Obrázek 7: Míra suspenze křemenného prachu vyjádřená jako podíl hmotnostní koncentrace ku maximální možné hmotnostní koncentraci dané suspendované navážky v % pro navážky: a) 10 mg, b) 25 mg, c) 50 mg, d) 75 mg a e) 100 mg, každý graf ukazuje maximum, 75% percentil, median, 25 % percentil a minimum pro každou minutu měření.

Z obrázku 7 je patrné, že neoptimálnější navážkou, umožňující největší míru suspenze, je 10 mg a průměrně dosahuje 10 %. Po zjištění hodnoty neoptimálnější navážky bylo

provedeno dalších 5 disperzí s časovým rozlišením 5 s. Během tohoto měření bylo získáno asi 720 velikostních distribucí částic aerosolu, z nichž bylo vybráno 300 distribucí s největší hmotnostní koncentrací. Z těchto distribucí byly pak stanoveny průměrné velikostní distribuce počtu a hmoty částic, které charakterizují stav v komře, kdy je v objemu tělesa rozptýleno nejvíce částic. Průměrná velikostní distribuce počtu a hmoty částic je vidět na obrázku 8.



Obrázek 8: a) Průměrná velikostní distribuce počtu křemenných částic. b) Průměrná velikostní distribuce hmoty křemenných částic.

Na obrázku 8a je vidět, že peak s maximem početnosti částic dosahuje téměř počtu $2 \cdot 10^4$ částic na cm^3 s aerodynamickým průměrem 0.7 μm . Průměrná velikost částice v této velikostní distribuci je 1.07 μm . Obrázek 8b ukazuje velikostní distribuci hmoty, která je charakteristická několika peaky: 1.29 μm ($12.3 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}$), 4.7 μm ($3.16 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}$), 6.7 μm ($2.5 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}$) a 11 μm ($4.7 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}$). Průměrná velikost částic je 2.42 μm . Další statistické údaje jsou uvedeny v tabulce 3, která uvádí statistické hodnoty pro průměrné velikostní distribuce počtu a hmoty částic včetně aerodynamického průměru částice o mediánu počtu CMD (count median diameter) nebo hmotnosti MMD (mass median diameter) aerosolu.

Tabulka 3. Statistické údaje pro dispergovaný křemenný prášek měřený pomocí APS.

	početní koncentrace částic	koncentrace plochy částic	hmotnostní koncentrace částic
medián (μm)	0.976	1.34	1.65
průměr (μm)	1.07 (CMD)	1.60	2.42 (MMD)
geometrický průměr (μm)	0.994	1.39	1.90
modus (μm)	1.04	1.38	1.49
geometrická směrodatná odchylka	1.44	1.62	1.90
celková koncentrace	$10^5 (\# \cdot \text{cm}^{-3})$	$15 \cdot 10^3 (\mu\text{m}^2 \cdot \text{cm}^{-3})$	$6.00 (\text{mg} \cdot \text{m}^{-3})$

V roce 2006 byla u křemenného prachu společností ISATECH provedena analýza rozptylu laserového záření na částicích pomocí přístroje MASTERSIZER 2000. Touto metodou bylo u křemenných částic zjištěno CMD 2,41 μm . Chyba experimentálního stanovení CMD u tohoto přístroje je $\pm 1,5 \mu\text{m}$, CMD křemenných částic zjištěných v resuspenzní komoře pomocí APS bylo 1,07 μm a tak se tento výsledek shoduje v rámci mezí experimentální přesnosti.

Další důležitou vlastností dispergovaného křemenného prachu v objemu komory je jeho depoziční rychlost, která je důležitá ke stanovení minimálního času vzorkování dispergovaného aerosolu. Depoziční rychlosti mohou být stanoveny pomocí základní rovnice:

$$N=N_0 \cdot \exp(-\beta t),$$

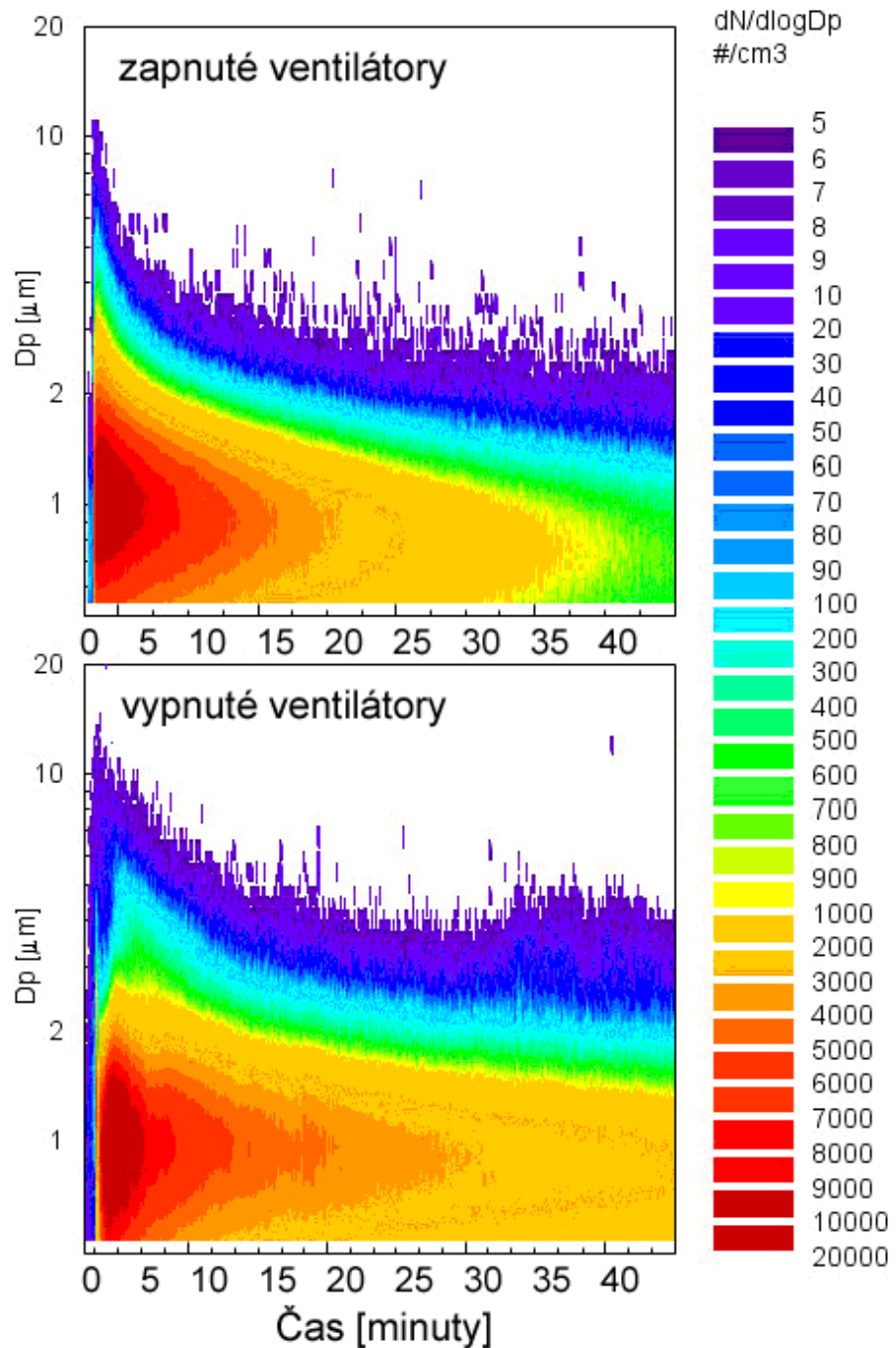
kde N je počet částic v daném časovém okamžiku, N_0 je počáteční počet částic v těle komory bezprostředně po suspenzi, β je konstanta depoziční rychlosti a t je čas. Tento model může být aplikován na data získaná z APS, zatímco depoziční rychlost V_d může být spočítána z následujícího vzorce:

$$V_d = \frac{V \cdot \beta}{S},$$

kde S a V jsou geometrický povrch respektive objem komory.

Dále byl sledován vliv ventilátorů na dynamiku depozice křemenného aerosolu v resuspenzní komoře. Za tímto účelem byly provedeny celkem 3 suspenze při zapnutých (pracujících na plný výkon 15 W) respektive při vypnutých větracích za podmínek 20 °C a RH of 50 %. Byla suspendována navážka vzorku o hmotnosti 10 mg. Obrázek 9 ukazuje vybrané suspenze křemenného aerosolu za podmínek zapnutých respektive vypnutých ventilátorů. Během vybrané resuspenze křemenného prachu za podmínek zapnutých ventilátorů dosahovala maximální početní koncentrace hodnoty 10^4 částic na cm^3 , aerodynamický průměr dominujících částic se pohyboval kolem 1,04 μm . Celé měření trvalo 85 minut (obrázek 9 ukazuje prvních 45 minut měření), ke konci pak dominovaly velikostní distribuci částice o aerodynamickém průměru pouze 0.8 μm . Během resuspenze křemenného prachu za podmínek vypnutých ventilátorů dosahovala maximální početní koncentrace 10^4 částic na cm^3 a aerodynamický průměr nejčtenější částice se opět pohyboval kolem 1.04 μm . Toto měření trvalo 223 minut, ke

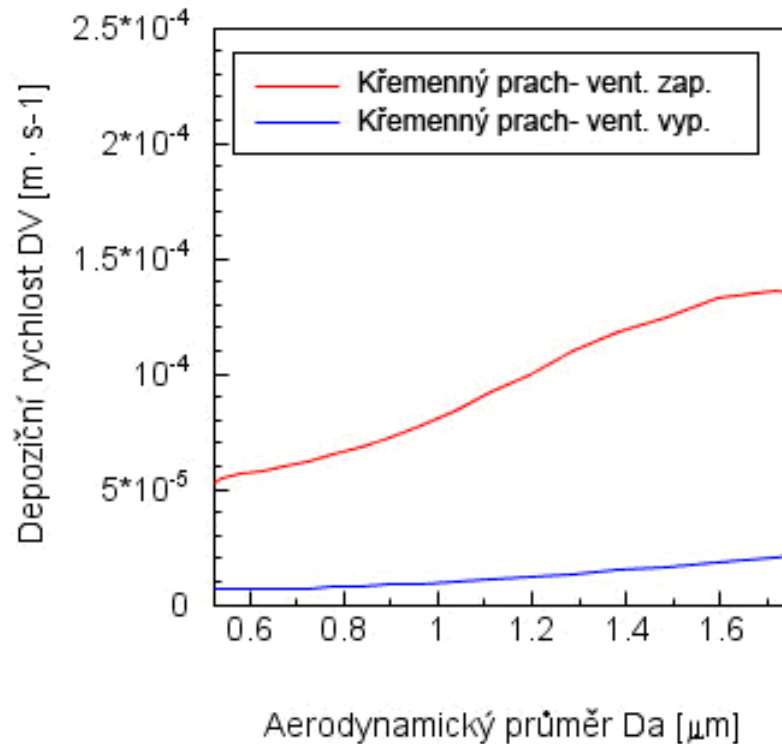
konci měření dominovaly velikostní distribuci, tak jako v předchozím případě, částice o aerodynamickém průměru 0.8 μm .



Obrázek 9: Změna početní koncentrace křemenného aerosolu měřeného pomocí APS za podmínek zapnutých respektive vypnutých ventilátorů.

Po provedení všech disperzí za podmínek zapnutých a vypnutých ventilátorů byla spočítána průměrná depoziční rychlost pro nejčetnější částice v početním spektru. Jednalo se o částice s aerodynamickým průměrem od 0.6 do 1.8 μm . Obrázek 10

ukazuje spočítané depoziční rychlosti za podmínek zapnutých respektive vypnutých ventilátorů.



Obrázek 10: Průměrné depoziční rychlosti křemenného aerosolu při zapnutých vypnutých ventilátorech.

Zobrázku 10 je patrné, že při zapnutých ventilátorech, kdy vzdušné proudění dosahuje v bezprostřední blízkosti ventilátorů rychlosti až $5 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ (měřeno přenosnou pitotovou trubicí), dosahuje depoziční rychlost u částic o aerodynamickém průměru $1.7 \mu\text{m}$ 14x větší hodnoty než za podmínek vypnutých ventilátorů. U částic o aerodynamickém průměru $0.6 \mu\text{m}$ je depoziční rychlost pouze 6x vyšší než za podmínek vypnutých ventilátorů. Při zapnutých ventilátorech je tedy depoziční rychlost vyšší v důsledku předávání kinetické energie z molekul plynu na částici vlivem míchání, míchání tak zrychluje pohyb částic v omezeném prostoru, snižuje se velikost mezní vrstvy a zvyšuje se depoziční rychlost.

Získané hodnoty depoziční rychlosti byly následně srovnány s modelem sedimentace pro částici o aerodynamickém průměru $1,07 \mu\text{m}$ za podmínek vypnutých ventilátorů a byla spočítána hodnota $7.69 \cdot 10^{-4} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$. Z modelu konečné usazovací rychlosti V_T (Hinds, 1999), kde:

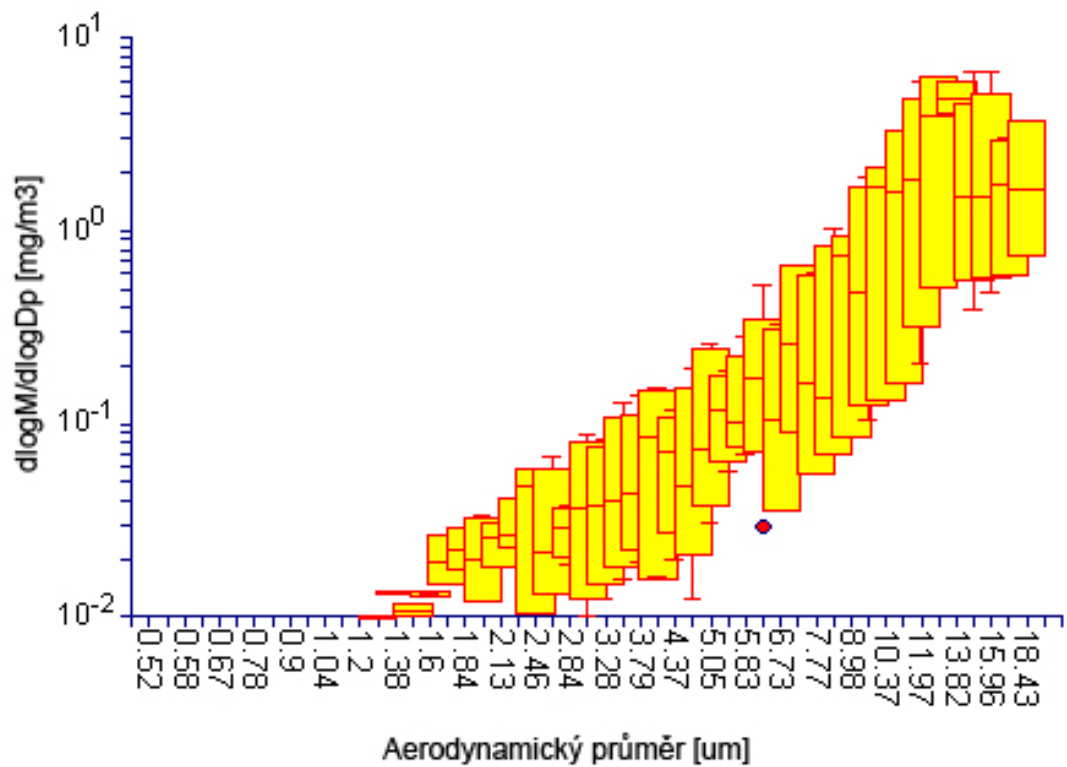
$$V_{TS} = \frac{\rho_p D_p^2 g}{18\eta},$$

pro částice o aerodynamickém průměru $D_p > 1 \mu\text{m}$ a Re (Reynoldsovo číslo) < 1.0 , kde ρ_p je hustota částice, d aerodynamický průměr částice, g gravitační zrychlení a η je viskozita, byla zjištěna hodnota konečné usazovací rychlosti $8.3 \cdot 10^{-4} \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$. Experimentálně zjištěná hodnota depoziční rychlosti se liší od koncové usazovací rychlosti pouze o $0.61 \cdot 10^{-4} \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ a tak výsledek experimentálně zjištěné depoziční rychlosti koresponduje s modelem sedimentace.

4.2 Variabilita velikostní distribuce hmoty hlavních vzorků hnědého uhlí, sádrovce a elektrárenského popílku, odebraných v severočeském hnědouhelném dole

Resuspenzní komora byla využita k získání informací o variabilitě profilů velikostní distribuce hmoty po suspenzi vybraných vzorků těžných nebo ukládaných materiálů v Severočeské hnědouhelné pánvi. Byl otestován vzorek sádrovce (hustota $2.32 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$), používaný v odsiřovacích jednotkách tepelných elektráren, dále elektrárenský popílek (hustota $2.42 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$), vznikající spálením hnědého uhlí a v neposlední řadě těžné hnědé uhlí. Sádrovec i popílek jsou zpětně ukládány do vytěžených míst povrchového lomu.

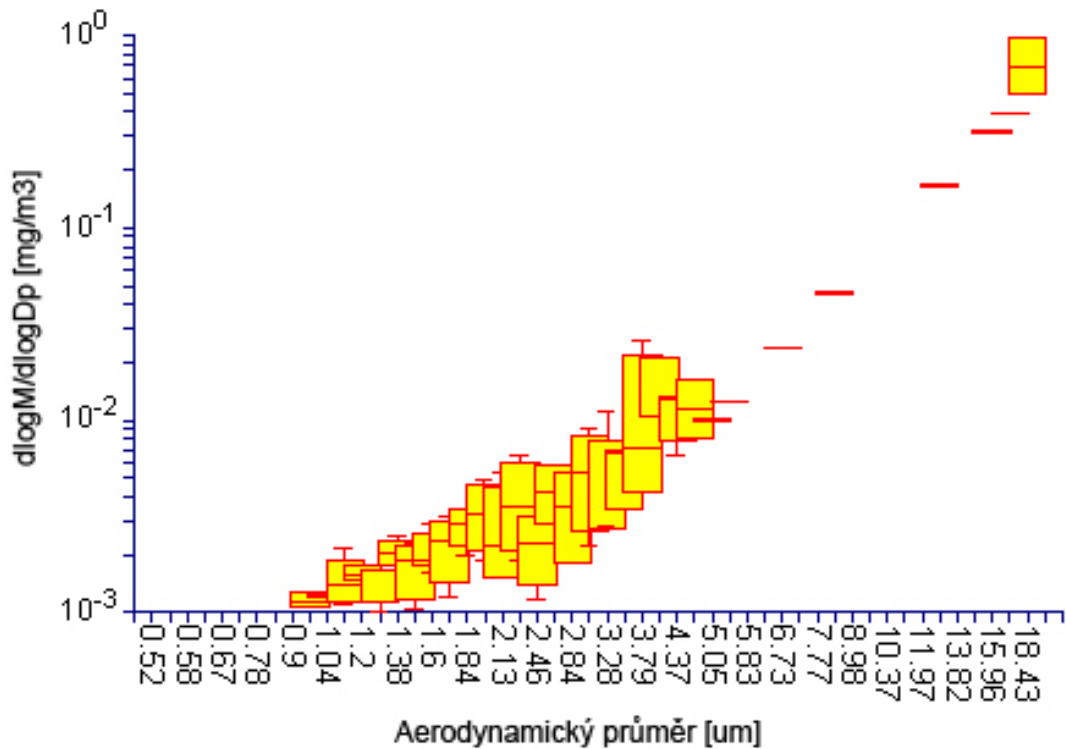
Vzorky byly několik hodin sušeny při $40 \text{ }^\circ\text{C}$ a následně upraveny přesítováním Tyllerovým sítem. V případě hnědého uhlí tvořil přesítovaný vzorek 9.6 % celkové hmotnosti, u sádrovce 8.2 % a u popílku 20.3 %. U všech vzorků byla zjištěna optimální navážka pro dosažení maximální suspenze částic, která činila u hnědého uhlí 10 mg, sádrovce 75 mg a popílku 25 mg. Optimální navážka každého vzorku byla následně rozptýlena v resuspenzní komoře a analyzována pomocí APS při teplotě $20 \text{ }^\circ\text{C}$ a RH 50 %. Obrázek 10 ukazuje log-log graf rozptylu velikostních distribucí hmoty hnědého uhlí během prvních pěti minut po suspenzi.



Obrázek 10: Log-log rozptyl hodnot hmotnostních koncentrací velikostních distribucí hnědého uhlí během prvních pěti minut po suspenzi.

Z obrázku 10 je patrné, že hnědé uhlí dosahuje největších hmotnostních koncentrací pro částice velikosti 12 μm . Průměrná hmotnostní koncentrace částic dosahovala $0.08 \text{ mg}\cdot\text{m}^{-3}$.

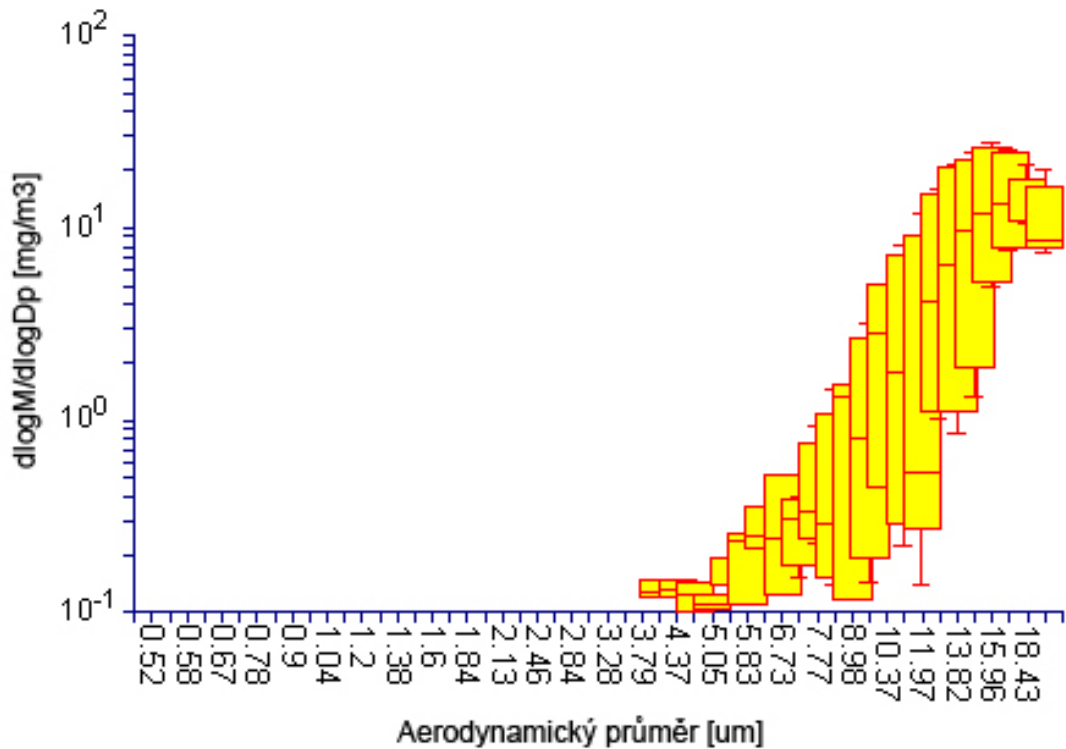
Rozptyl velikostních distribucí během prvních pěti minut po suspenzi vzorků sádrovce je zachycen na obrázku 11.



Obrázek 11: Log-log rozptyl hodnot hmotnostních koncentrací velikostních distribucí sádrovce během prvních pěti minut po suspenzi.

Z obrázku 11 je patrné, že maximum hmotnostní koncentrace sádrovce leží u menších hodnot. Průměrná velikost částic sádrovce byla $10.9 \mu\text{m}$. Průměrná hmotnostní koncentrace částic dosahovala $0.027 \text{ mg}\cdot\text{m}^{-3}$ a celkově je tak průměrná hmotnostní koncentrace zhruba 3x nižší než hodnota získaná pro hnědé uhlí.

Obrázek 12 zachycuje rozptyl naměřených velikostních distribucí u elektrárenského popílku.



Obrázek 12: Log-log rozptyl hodnot hmotnostních koncentrací velikostních distribucí elektrárenského popílku během prvních pěti minut po suspenzi.

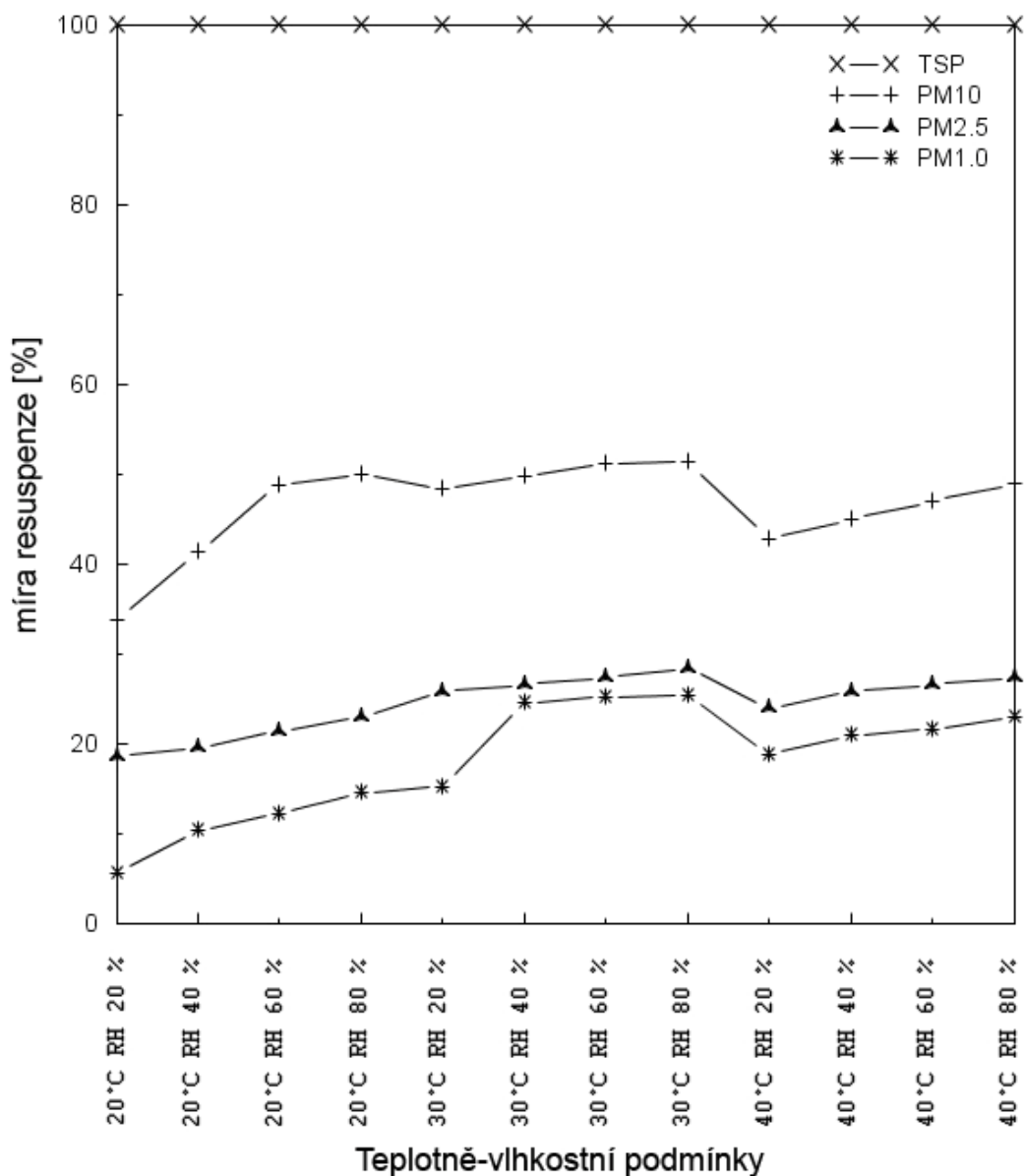
Velikostní distribuce hmoty elektrárenského popílku dosahují nejvyšších hodnot hmotnostní koncentrace v porovnání s ostatními vzorky. Průměrná hmotnostní koncentrace dosahuje hodnoty $0.38 \text{ mg}\cdot\text{m}^{-3}$ a skoro 5x převyšuje průměrnou hmotnostní koncentraci hnědého uhlí. Průměrná velikost částic se pohybuje kolem $10.9 \text{ }\mu\text{m}$.

4.3 Gravimetrické analýzy hnědého uhlí a elektrárenského popílku

Vzorek hnědého uhlí a elektrárenského popílku byl následně podroben gravimetrické analýze pomocí Harvard impaktorů měřících velikostní frakce TSP, PM_{10} , $\text{PM}_{2.5}$ a PM_1 , dále pak Sioutas kaskádního impaktoru měřícího velikostní frakce

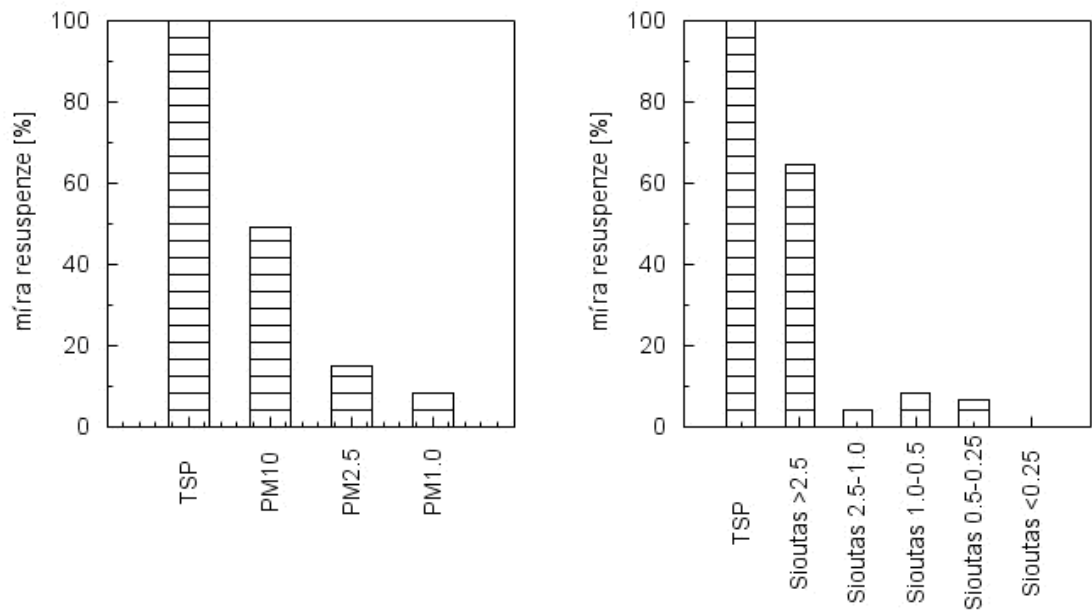
v rozsahu >2.5 , $2.5-1.0$, $1.0-0.5$, $0.5-0.25$, <0.25 μm . Deponované hmoty dispergovaného aerosolu byly stanovovány za různých teplotních a vlhkostních podmínek (20, 30 a 40 °C a RH 20, 40, 60 a 80 %).

Na obrázku 13 je velikostní distribuce hnědého uhlí stanovena jako poměr jednotlivých hmot ku TSP u HI, které vznikly pomocí pěti měření za definovaných teplotně-vlhkostních podmínek. Obrázek 13 ukazuje, že hmota daných velikostních frakcí vzrůstá s přibývajícím relativní vlhkostí. Nejvyšší přírůstky hmotnosti byly zaznamenány při 30 °C a RH 80 % u frakce $\text{PM}_{2.5}$ a PM_1 . Celkově je nejcitlivější na změnu relativní vlhkosti velikostní frakce PM_1 při 30 °C.



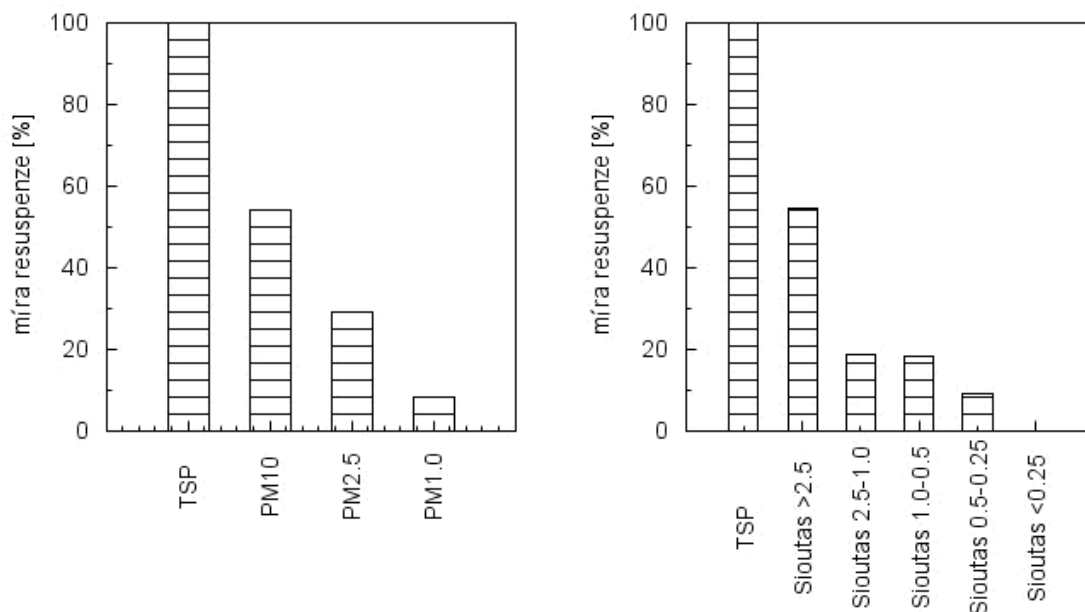
Obrázek 13. Velikostní distribuce hmotnostních koncentrací hnědého uhlí stanovená jako poměr jednotlivých frakcí ku TSP u HI za různých teplotně vlhkostních podmínek.

Obrázek 14 zachycuje velikostní distribuci hmoty hnědého uhlí vyjádřenou jako podíl jednotlivých frakcí s deponovanou hmotou ku TSP u HI a SCI (u SCI vznikla TSP sečtením všech hmotností) při 20 °C a RH 50 %. Frakce u HI $PM_{2.5}$ dosahovala hodnoty kolem 17 %, PM_1 pak hodnoty 10 %. Rozdíl obou frakcí (2.5-1 μ m) pak udává hodnotu 7 %. Pomocí SCI byla zjištěna procentuální hodnota frakce 2,5-1 μ m 5 %.



Obr. 14: Velikostní distribuce hmotnostních koncentrací hnědého uhlí stanovená jako poměr jednotlivých frakcí ku TSP u HI a SCI (20 °C a RH 50 %).

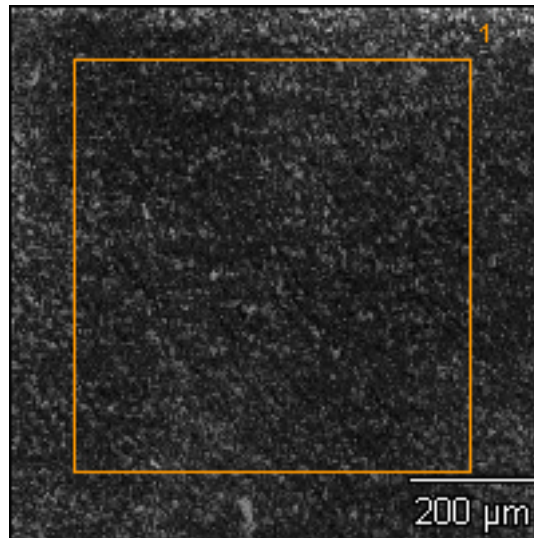
Grafy velikostních distribucí hmotnostní koncentrace jednotlivých frakcí elektrárenského popílku jako poměr jednotlivých frakcí ku TSP jsou zachyceny na obrázku 15. Elektrárenský popílek obsahuje větší procentuální zastoupení jemnějších částic velikostních frakcí $PM_{2.5}$ a PM_1 . Rozdíl obou frakcí (2.5-1 μ m) dosahuje hodnoty 10 %, SCI frakce 2.5-1 μ m pak dosahuje také stejné hodnoty 10 %. Popílek obsahuje větší procentuální zastoupení jemnějších frakcí 2.5-1, 1-0.5 a 0.5-0.25.



Obr. 15: Velikostní distribuce hmotnostních koncentrací elektrárenského popílku stanovená jako poměr jednotlivých frakcí ku TSP u HI a SCI (20 °C a RH 50 %).

4.4 Elementární analýza elektrárenského popílku

Plocha filtru o velikosti 0.36 mm^2 ($0.6 \times 0.6 \text{ mm}$) s deponovaným elektrárenským popílkem velikostní frakce TSP byla analyzována pomocí elektronového mikroskopu metodou disperzní rentgenové spektrometrie EDS (x-ray energy dispersive spectrometry) za použití softwaru Noran System Six (Thermo Electron Corp., USA) spojeného s elektronovým mikroskopem SEM (Hitachi S-4800). Na obrázku 16 je zachycen povrch filtru s deponovaným aerosolem elektrárenského popílku velikostní frakce TSP.



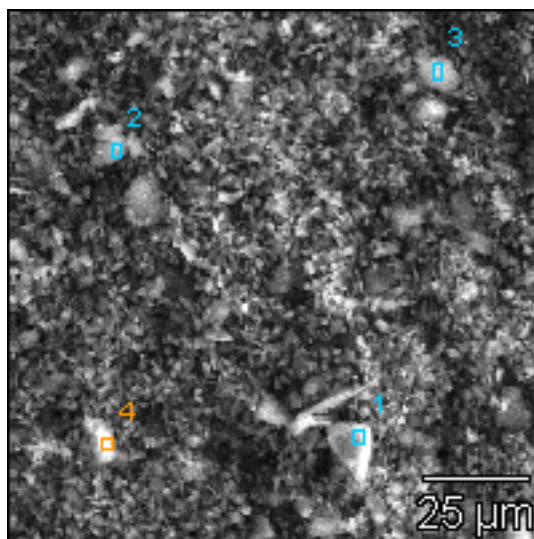
Obr. 16: Snímek z elektronového mikroskopu- filtr s deponovaným aerosolem elektrárenského popílku velikostní frakce TSP.

Výsledné prvkové složení sumarizuje tabulka 4. V tabulce jsou uvedeny jednotlivé velikostní frakce a jejich prvkové složení, včetně přiřazení jednotlivých minerálů. Hlavní složkou velikostní frakce PM_{10} je Mullit $Al_6Al_4(O_3)(O_{1/2}, OH, F)Si_3O_{16}$, který se nejčastěji (až v 80 %) vyskytuje v elektrárenských popílcích (Minařík)⁴⁷. Frakci $PM_{2.5}$ dominovaly sulfidy, pyrity, pyrhotiny a polytypy sulfidu. PM_1 obsahovala největší procentuální zastoupení sodíku, jednalo se s největší pravděpodobností o částice složením odpovídající sodnému sklu.

Tabulka 4. Procentuální zastoupení prvků jednotlivých velikostních frakcí TSP, PM₁₀, PM_{2.5}, PM₁, SIOUTAS >2.5, 2.5-1.0, 1.0-0.5, 0.5-0.25 a <0.25 µm.

	Atom (%)												Species
	O	Na	Mg	Al	Si	S	Cl	K	Ca	Ti	Fe	Cu	
TSP	73.35	0.26		2.37	20.2	2.24		0.07	0.3	0.08	1.12		vše
PM ₁₀	71.4		0.35	3.27	23.14	0.94		0.13	0.15		0.62		Mullit
	75.11		0.81	4.32	16.08	2.09		0.13	0.48	0.11	0.88		Mullit
	67.32	0.44	0.76	7.77	20.74	1.08		0.48	0.35	0.1	0.85	0.11	Mullit
	68.07		0.69	7.7	20.42	0.93		0.5	0.16	0.11	1.3	0.14	Mullit
PM _{2.5}	71.51	1.35		2.73	11.43	10.4			1.72		0.89		polytypy sulfidu
	74.85	1.15		1.79	11.3	8.03			0.55		2.33		polytypy sulfidu
	61.35		0.73	8.13	21.91	2.98		0.72	0.54	0.1	3.35	0.18	polytypy sulfidu
	77.11	4.35		1.23	12.96	1.45					0.91	2	polytypy sulfidu
PM ₁	77.18	3.24	0.91	4.1	10.72	1.77		0.15	0.22		1.7		sodné sklo
	73.34	10.5		3.93	4.34							7.89	sodné sklo
	74.88	7.46		2.97	10.59							4.1	sodné sklo
SIO A	72.68			1.41	22.7	0.39			2.61		0.21		Mullit
	71.48			0.59	27.59	0.33							Mullit
	81.48			1.94	16.58								Mullit
	74.95			0.42	24.27								Mullit
SIO B	65.9	0.31		0.63	32.03	0.49			0.34		0.31		křemen
	72.06			0.77	26.35	0.36			0.23		0.24		křemen
	57.1			1.32	40.88	0.4					0.29		křemen
SIO C	67.23			1.64	28.23	0.46			0.34		2.11		křemen
	72.51			0.65	26.84								křemen
SIO D	58.92	28.7		1.42	6.13	3.09	0.41	0.08	0.57		0.6	0.11	pyrity
	62.85	12.5		2.88	15.34	4.2	0.28	0.17	0.71		0.89	0.16	pyrity
	64.45	16.7		2.55	13.35	1.68	0.2	0.11	0.32		0.62		pyrity
	63.73	10.3		3.36	17.88	2.02	0.33	0.28	0.68		1.25		pyrity
SIO E	82.25	1.88	0.6	3.98	9.22	2.07							sodné sklo
	79.67	7.06		2.24	6.12	1.31						3.59	sodné sklo
	70.29	0.53		8.68	13.32	3		0.16	1.41	0.17	2.41		sodné sklo
	75.81	1.84	0.85	5.92	9.47	1.02		0.23	0.34		4.53		sodné sklo

Bodovou analýzou nejčtenějších zrn na filtru Sioutas kaskádního impaktoru u frakce A (>2.5 µm) byl identifikován Mullit, u frakce SIO B (2.5-1.0 µm) a SIO C (1.0-0.5 µm) byl identifikován minerál křemen. SIO D (0.5-0.25 µm) byla nejvíce tvořena pyrity, frakce SIO E (<0.25 µm) sodným sklem. Obrázek 17 ukazuje filtr s deponovaným aerosolem elektrárenského popílku velikostní frakce B (2.5-1.0 µm). Je zde patrná aglomerace částic na filtru v bodech 1, 2, 3 a 4.



Obr. 17: Snímek filtru s deponovaným aerosolem elektrárenského popílku velikostní frakce SIO B (2.5-1.0 μm).

4.5 Stanovení průměrných velikostních distribucí částic ve vzorcích odebraných v severočeském hnědouhelném dole pomocí APS

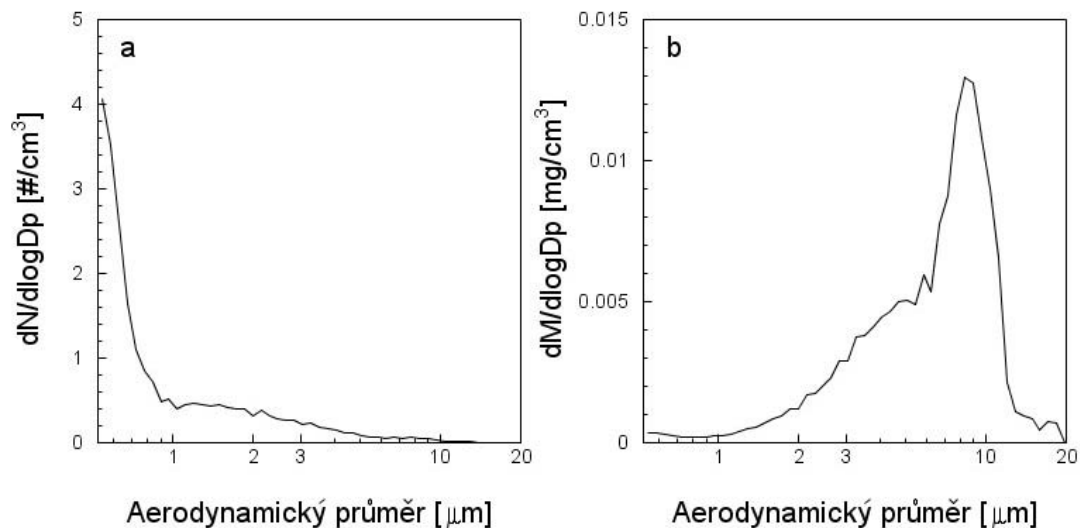
V severočeském hnědouhelném dole Nástup byly odebrány vzorky o hmotnosti 1-2 kg z různých částí povrchu důlního díla, dopravní komunikace, skládky hnědého uhlí, těžebních míst, skládky popílku, sádrovce a půdy určené k zakrytí skládek sádrovce a popílku. Strategie odběru vzorků vedla k těm částem dolu, které nejvíce přispívají k emisi částic aerosolu. Seznam těchto vzorků, spolu s geografickou polohou, zdánlivou hustotou, % zbylé hmotnosti po dvouhodinovém sušení při 40 °C a následném přesítování Tyllerovým sítem a navážkou vzorku použitou k suspenzi, je zachycen v tabulce 5.

Tabulka 5. Seznam vzorků odebraných v severočeském hnědouhelném dole.

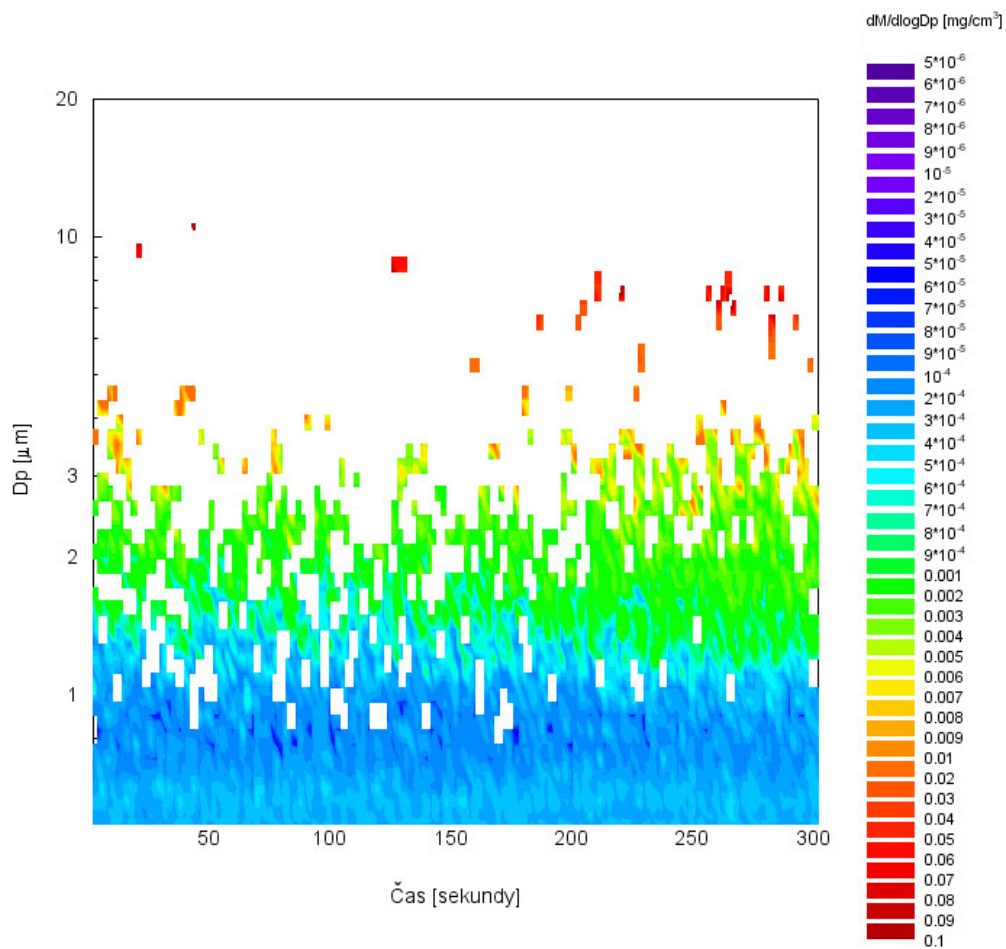
vzorek	lokalita	poloha		zdánlivá hustota [kg/m ³]	% hmotnosti po přesítování	navážka k suspenzi [mg]
1	homogenizační skládka	E 13,33299	N 50,40022	1,66	5,31	10
2	zakladač	E 13,33890	N 50,41228	2,65	0,96	10
3	dno dolu	E 13,32273	N 50,42746	1,66	2,41	10
4	silnice uhelný prach	E 13,32273	N 50,42746	1,66	16,81	10
5	samotný důl	E 13,32727	N 50,42886	1,66	1,05	10
6	komunikace důl	E 13,32727	N 50,42886	1,66	6,55	10
7	skládka popílku	E 13,28177	N 50,42273	2,22	10,32	10
8	zahrabávka sádry	E 13,27959	N 50,41076	2,94	3,28	10
9	popílek-čerstvý	E 13,27959	N 50,41076	2,32	16,32	10
10	skrývka	E 13,38563	N 50,40848	2,73	0,41	10
11	popílek Tušimice	E 13,37946	N 50,38382	2,65	6,77	10

Celkem bylo provedeno pět disperzí každého vzorku v resuspenzní komoře za podmínek 20 °C a RH 50 %. Jednotlivé velikostní distribuce počtu a hmotnostní koncentrace částic byly měřeny s 2 s časovým rozlišením po dobu 10 minut. Následně bylo vybráno prvních 5 minut (150 distribucí) z každé disperze (celkem 5 disperzí jednoho vzorku). Ty byly následně použity k vytvoření průměrné velikostní distribuce (z celkových 750 distribucí) počtu a hmoty částic jednotlivých studovaných vzorkům.

Na obrázcích 18-39 jsou zobrazeny průměrné velikostní distribuce počtu a hmoty částic jednotlivých vzorků spolu s grafy změn hmotnostních koncentrací vybraných distribucí v čase. Tabulky 6-16 uvádějí statistické hodnoty pro průměrné velikostní distribuce počtu a hmoty částic včetně aerodynamického průměru částice o mediánu počtu CMD (count median diameter) nebo hmotnosti MMD (mass median diameter) aerosolu.



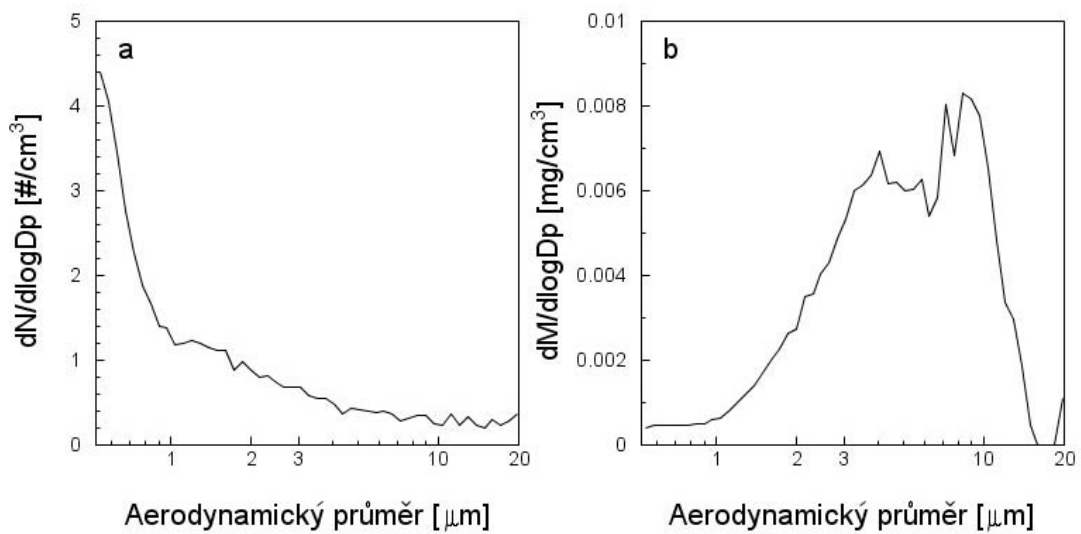
Obr. 18: Vzorek 1, Homogenizované uhlí: a- velikostní distribuce počtu částic, b- velikostní distribuce hmoty částic.



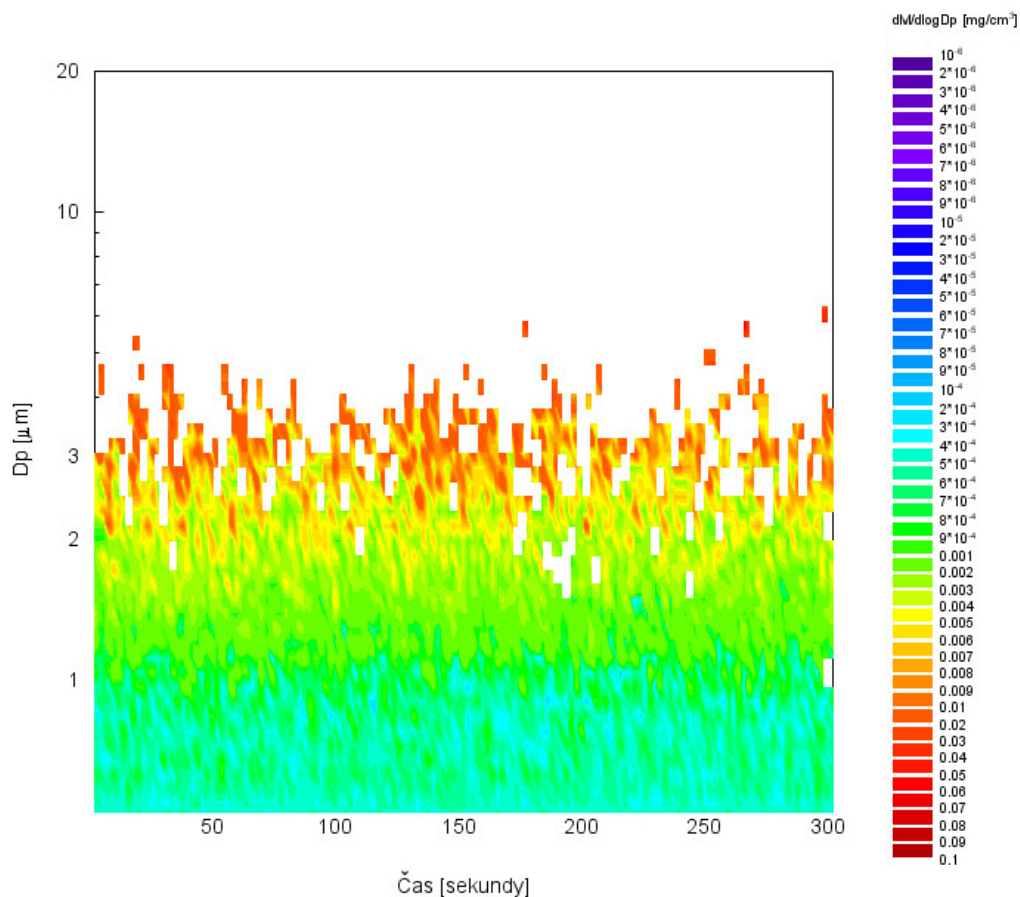
Obr. 19: Vzorek 1, Změna hmotnostní koncentrace po disperzi homogenizovaného uhlí.

Tabulka 6. Vzorek 1. Homogenizovaného uhlí.

homogenizační skládka	početní koncentrace	hmotnostní koncentrace
průměr	49,84 [$\#/cm^3$]	0,15 [mg/cm^3]
medián	49,84 [$\#/cm^3$]	0,13 [mg/cm^3]
směrodatná odchylka	7,74 [$\#/cm^3$]	0,1 [mg/cm^3]
průměr částic	1,28 μm (CMD)	6,73 μm (MMD)
průměrné velikosti částic	0,77 μm	1,71 μm
maximální dosažená koncentrace	73,56 [$\#/cm^3$]	4,32 [mg/cm^3]
% hmotnosti vzorku po přesítování	5,31%	5,31%
suspendované % z celkové hmotnosti odebraného vzorku		0,03%



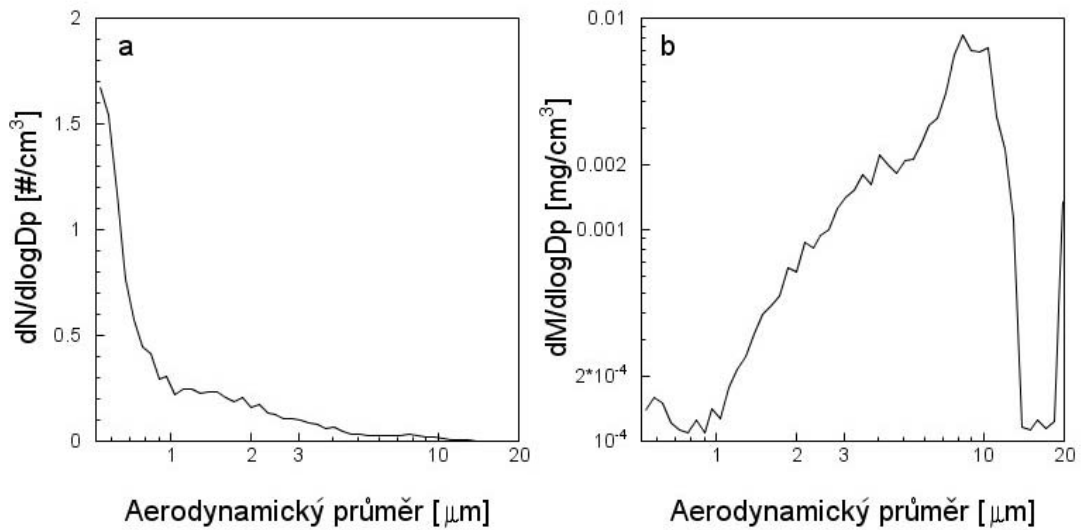
Obr. 20: Vzorek 2. Prach odebraný na konstrukci zakládacího zařízení: a- velikostní distribuce počtu částic, b- velikostní distribuce hmoty částic.



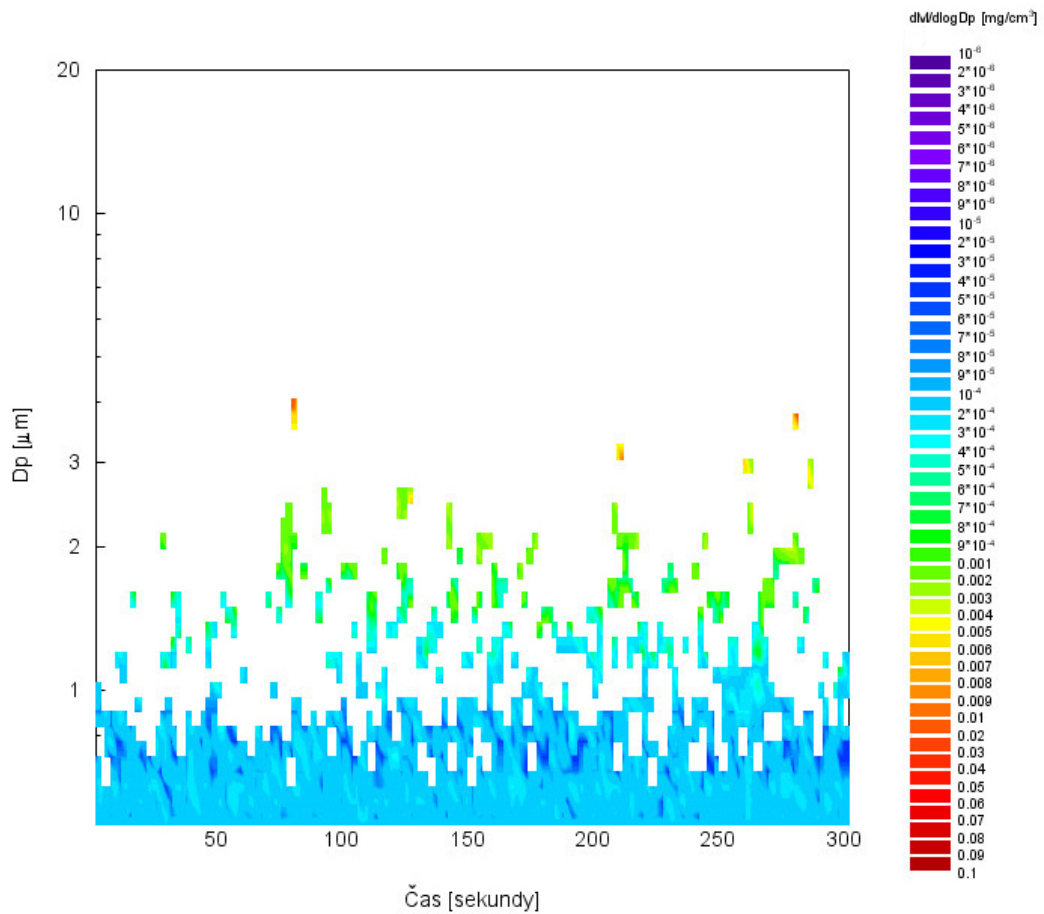
Obr. 21: Vzorek 2, Změna hmotnostní koncentrace po disperzi prachu odebraného na zakládacím zařízení.

Tabulka 7. Vzorek 2. Prach odebraný na konstrukci zakládacého zařízení.

zakладаč	početní koncentrace	hmotnostní koncentrace
průměr	63,8 [# /cm ³]	0,17 [mg/cm ³]
medián	67,93 [# /cm ³]	0,14 [mg/cm ³]
směrodatná odchylka	19,14 [# /cm ³]	0,1 [mg/cm ³]
průměr částic	3,05 μm (CMD)	12,86 μm (MMD)
průměrné velikosti částic	0,89 μm	11,97 μm
maximální dosažená koncentrace	65,12 [# /cm ³]	0,97 [mg/cm ³]
% hmotnosti vzorku po přesítování	0,96%	0,96%
suspendované % z celkové hmotnosti odebraného vzorku		0,01%



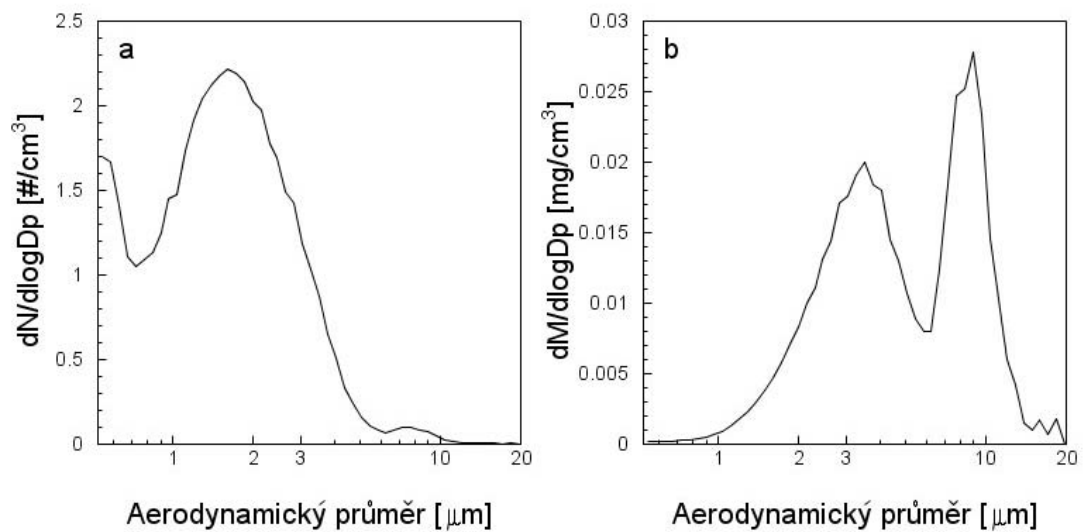
Obr. 22: Vzorek 3., Dno hnědouhelného dolu: a- velikostní distribuce počtu částic, b- velikostní distribuce hmoty částic.



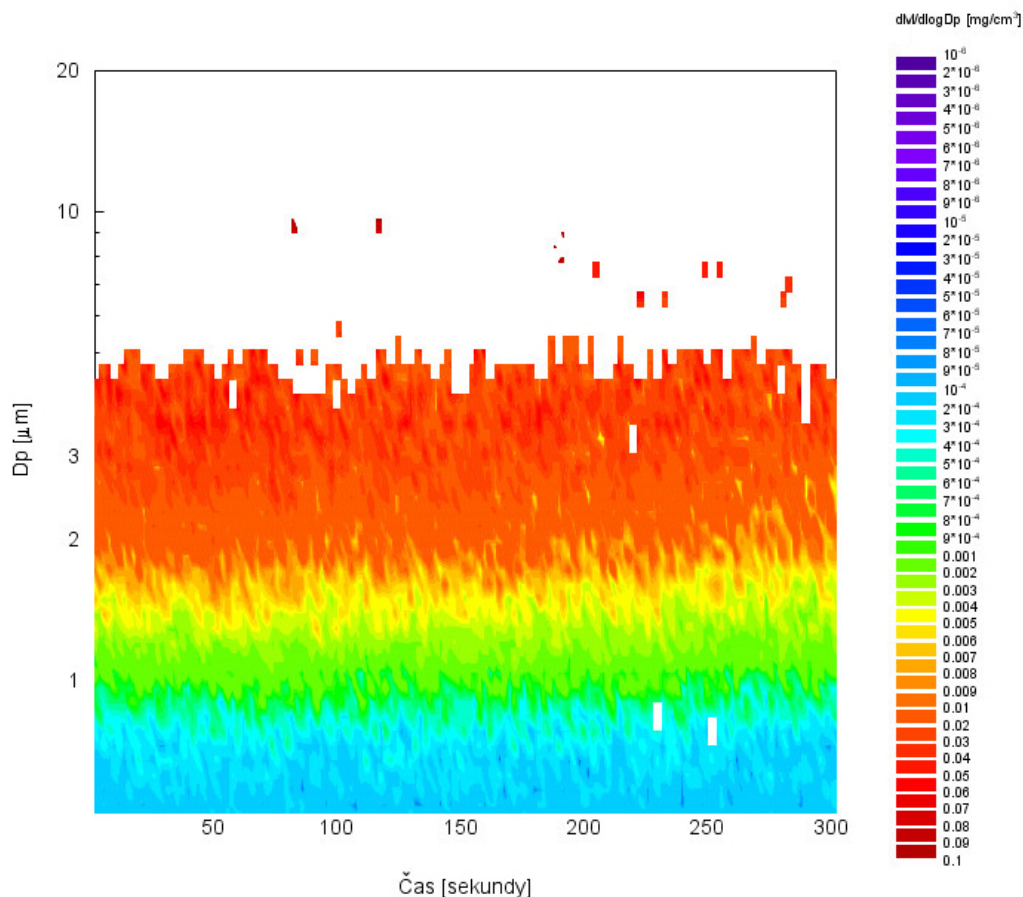
Obr. 23: Vzorek 3, Změna hmotnostní koncentrace po disperzi prachu odebraného na dně hnědouhelného dolu.

Tabulka 8. Vzorek 3., Dno hnědouhelného dolu.

dno dolu	početní koncentrace	hmotnostní koncentrace
průměr	21,84 [$\#/cm^3$]	0,08 [mg/cm^3]
medián	21,9 [$\#/cm^3$]	0,06 [mg/cm^3]
směrodatná odchylka	2,56 [$\#/cm^3$]	0,07 [mg/cm^3]
průměr částic	1,28 μm (CMD)	2,13 μm (MMD)
průměrné velikosti částic	0,835 μm	3,78 μm
maximální dosažená koncentrace	32,36 [$\#/cm^3$]	0,84 [mg/cm^3]
% hmotnosti vzorku po přesítování	2,41%	2,41%
suspendované % z celkové hmotnosti odebraného vzorku		0,01%



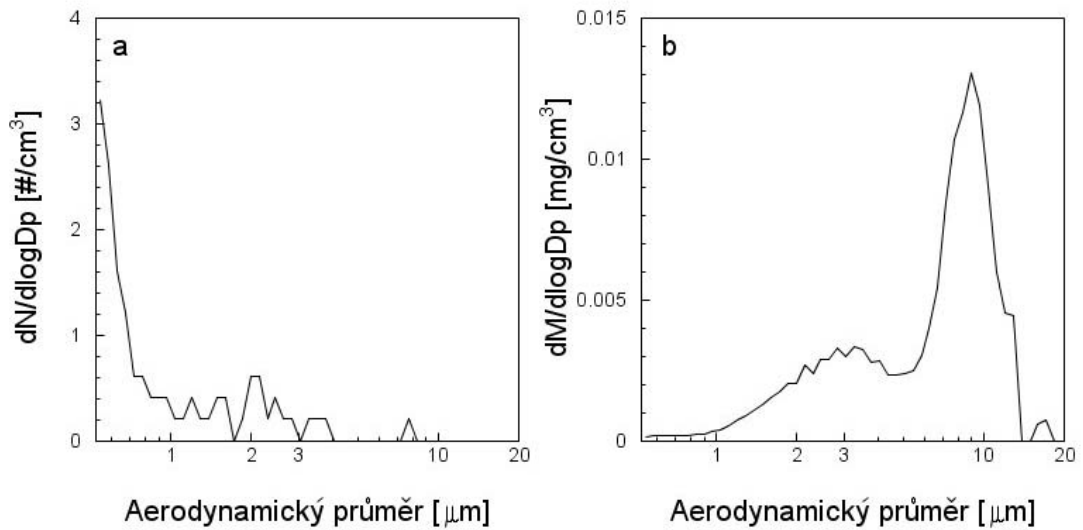
Obr. 24: Vzorek 4. Povrch důlní komunikace: a- velikostní distribuce počtu částic, b- velikostní distribuce hmoty částic.



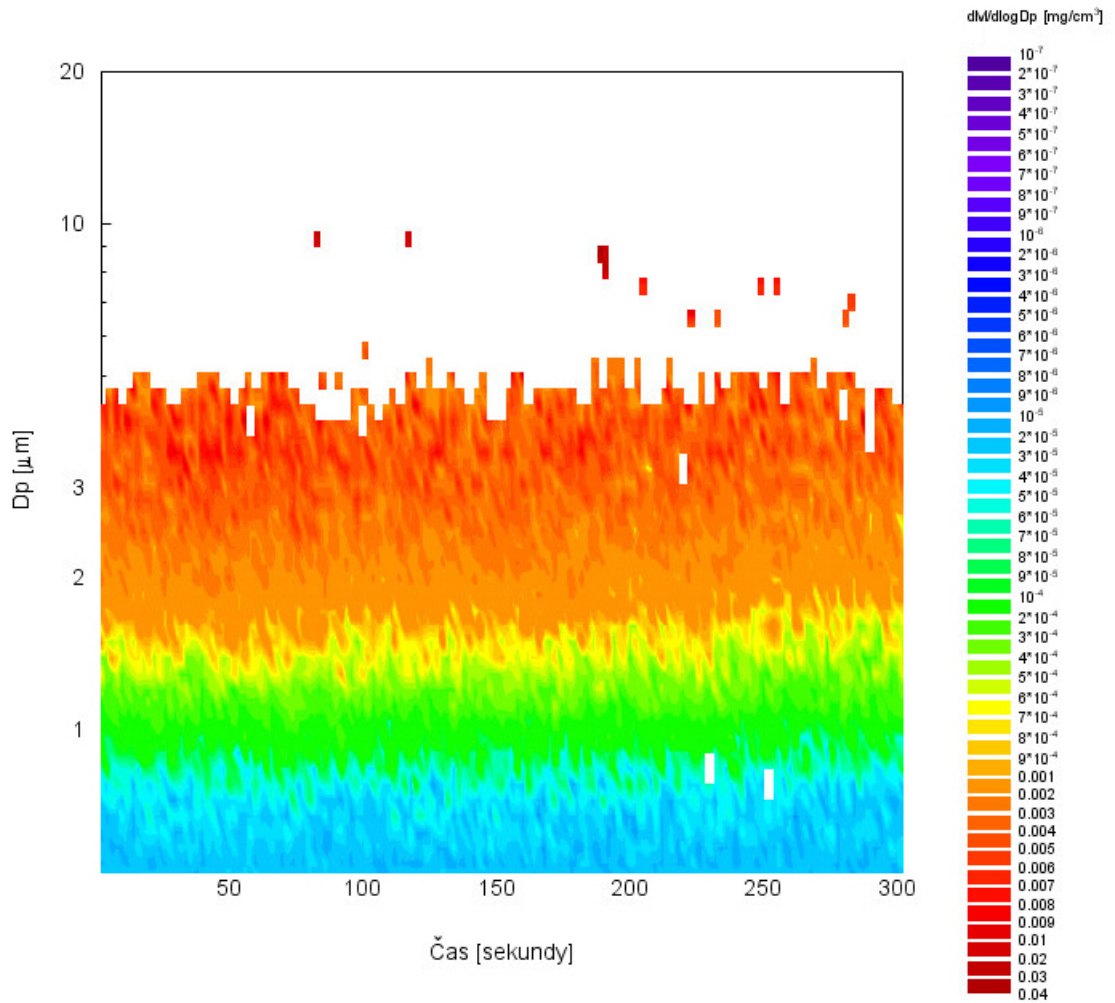
Obr. 25: Vzorek 4, Změna hmotnostní koncentrace po disperzi prachu z důlní komunikace.

Tabulka 9. Vzorek 4., Povrch důlní komunikace.

<u>povrch důlní komunikace</u>	<u>početní koncentrace</u>	<u>hmotnostní koncentrace</u>
průměr	56,8 [# /cm ³]	0,43 [mg/cm ³]
medián	58,48 [# /cm ³]	0,42 [mg/cm ³]
směrodatná odchylka	19,09 [# /cm ³]	0,19 [mg/cm ³]
median velikosti částic	3,28 μm	11,97 μm (MMD)
průměr velikosti částic	3,05 μm	5,42 μm
maximální dosažená koncentrace	95,87 [# /cm ³]	1,54 [mg/cm ³]
% hmotnosti vzorku po přesítování	16,81%	16,81%
suspendované % z celkové hmotnosti odebraného vzorku		0,32%



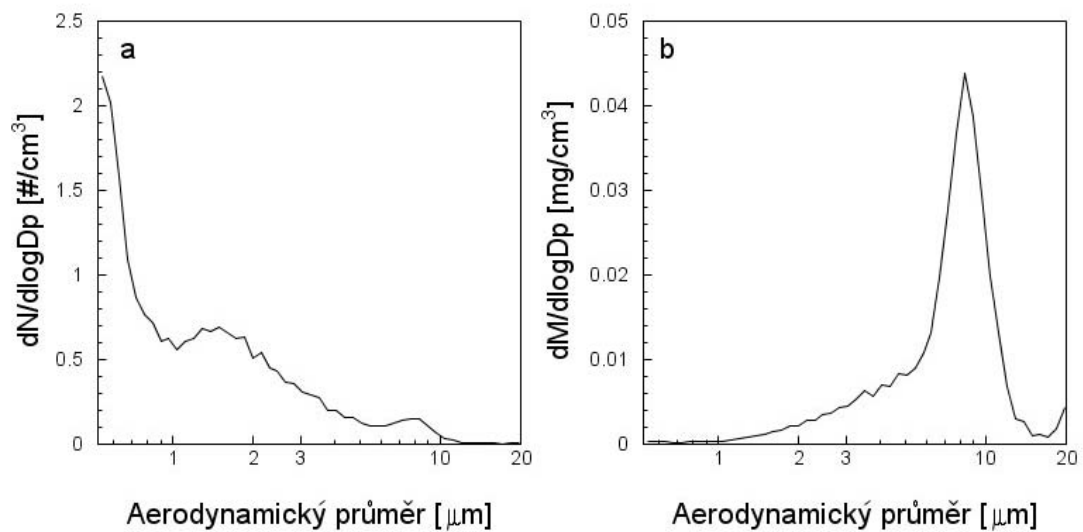
Obr. 26: Vzorek 5. Samotný důl: a- velikostní distribuce počtu částic, b- velikostní distribuce hmotyčástic.



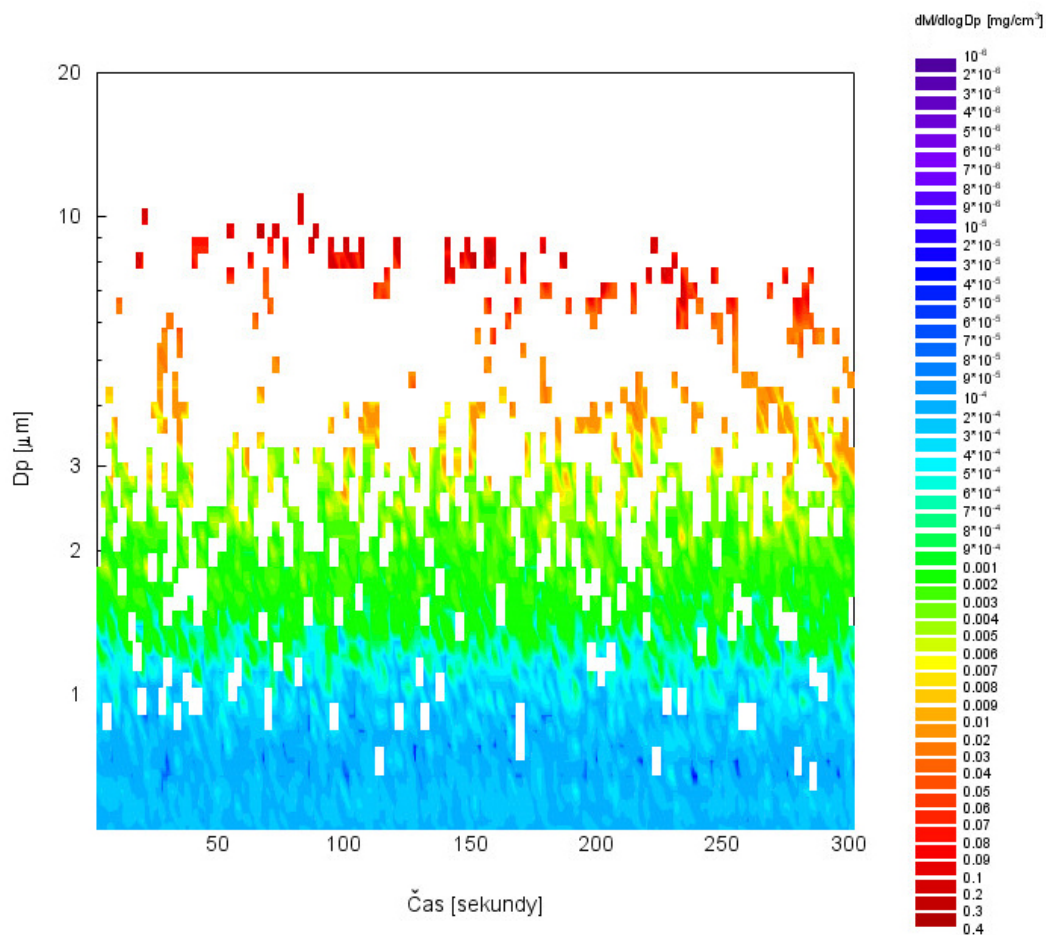
Obr. 27: Vzorek 5, Změna hmotnostní koncentrace po disperzi uhlého prachu ze samotného dolu.

Tabulka 10. Vzorek 5. Samotný důl.

samotný důl	početní koncentrace	hmotnostní koncentrace
průměr	30,91 [#/cm ³]	0,15 [mg/cm ³]
medián	30,35 [#/cm ³]	0,12 [mg/cm ³]
směrodatná odchylka	4,92 [#/cm ³]	0,1 [mg/cm ³]
průměr částic	3,05 μm (CMD)	1,98 μm (MMD)
průměrné velikosti částic	1,84 μm	3,78 μm
maximální dosažená koncentrace	46,02 [#/cm ³]	0,79 [mg/cm ³]
% hmotnosti vzorku po přesítování	1,05%	1,05%
suspendované % z celkové hmotnosti odebraného vzorku		0,01%



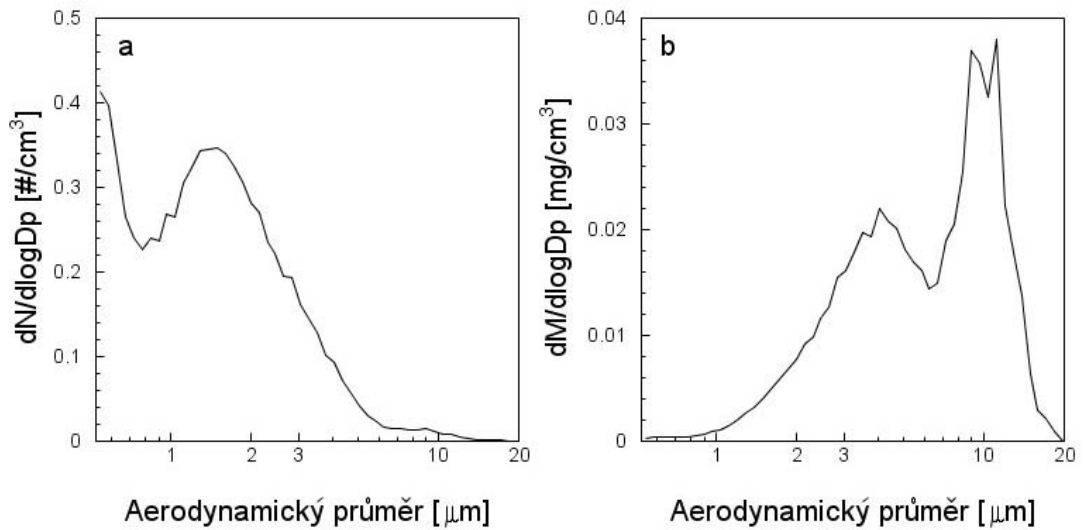
Obr. 28: Vzorek 6. Komunikace na dně dolu: a- velikostní distribuce počtu částic, b- velikostní distribuce hmoty částic.



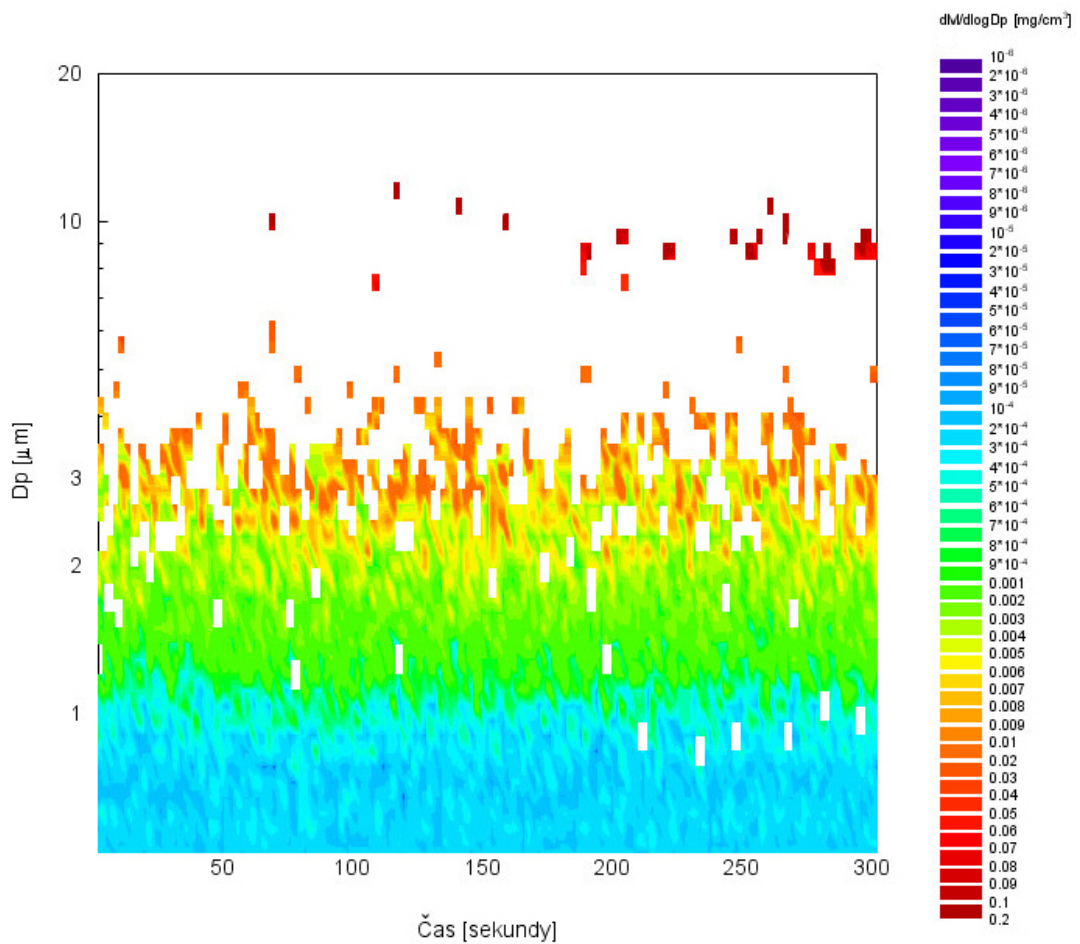
Obr. 29: Vzorek 6, Změna hmotnostní koncentrace po disperzi prachu z komunikace na dně dolu.

Tabulka 11. Vzorek 6. Komunikace na dně dolu.

komunikace na dně dolu	početní koncentrace	hmotnostní koncentrace
průměr	34,85 [# /cm ³]	0,36 [mg/cm ³]
medián	35,77 [# /cm ³]	0,34 [mg/cm ³]
směrodatná odchylka	7,44 [# /cm ³]	0,19 [mg/cm ³]
průměr částic	1,28 μm (CMD)	3,28 μm (MMD)
průměrné velikosti částic	3,6 μm	4,07 μm
maximální dosažená koncentrace	58,48 [# /cm ³]	1,75 [mg/cm ³]
% hmotnosti vzorku po přesítování	6,55%	6,55%
suspendované % z celkové hmotnosti odebraného vzorku		0,10%



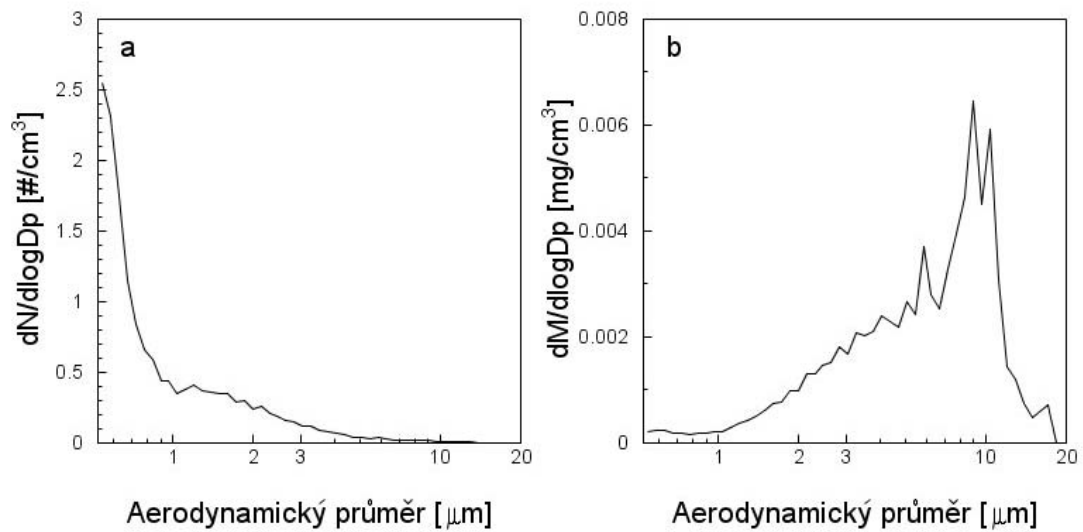
Obr. 30: Vzorek 7. Skládka popílku: a- velikostní distribuce počtu částic, b- velikostní distribuce hmoty částic.



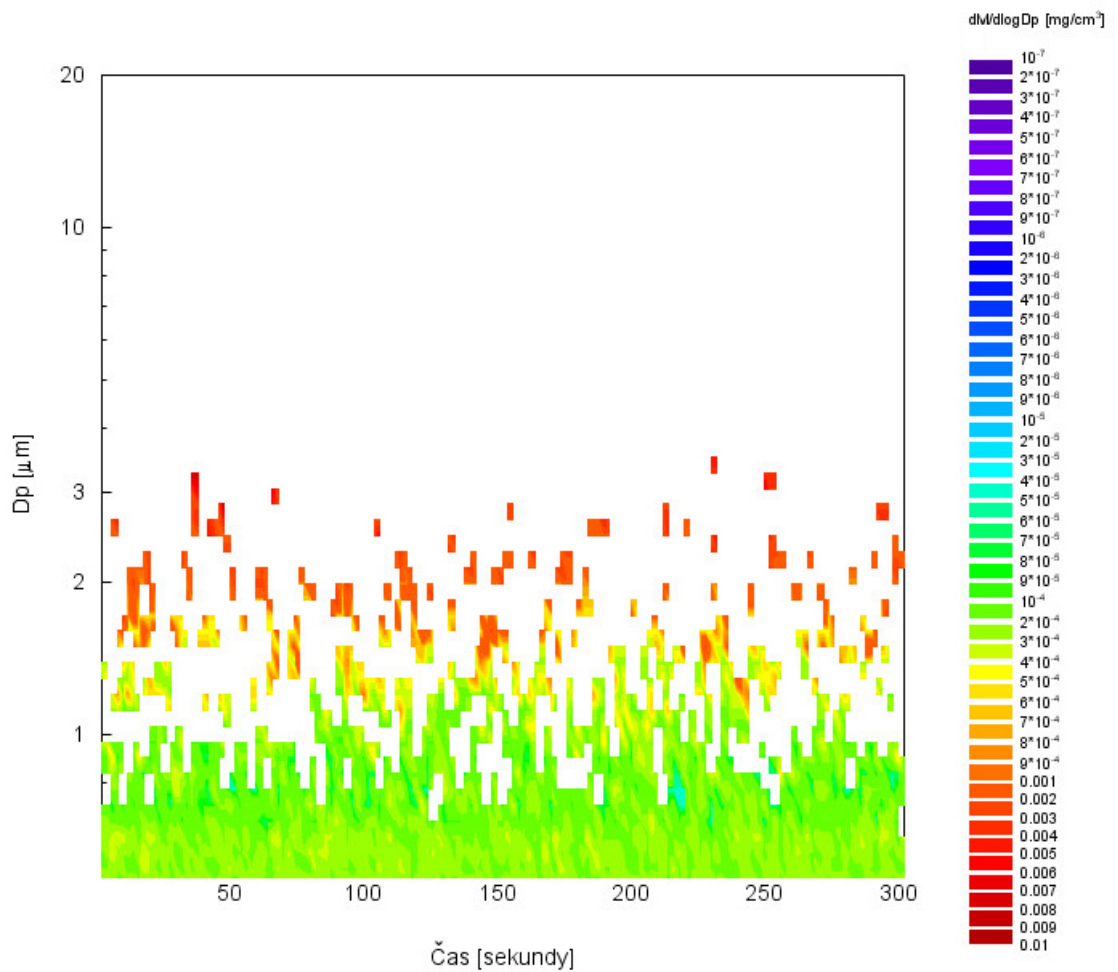
Obr. 31: Vzorek 7, Změna hmotnostní koncentrace po disperzi popílku ze skládky popílku.

Tabulka 12. Vzorek 7. Skládka popílku.

skládka popílku	početní koncentrace	hmotnostní koncentrace
průměr	68,74 [# /cm ³]	0,59 [mg/cm ³]
medián	67,93 [# /cm ³]	0,54 [mg/cm ³]
směrodatná odchylka	17,79 [# /cm ³]	0,25 [mg/cm ³]
průměr částic	3,05 μm (CMD)	2,12 μm (MMD)
průměrné velikosti částic	2,64 μm	2,45 μm
maximální dosažená koncentrace	132,14 [# /cm ³]	1,74 [mg/cm ³]
% hmotnosti vzorku po přesítování	10,32%	10,32%
suspendované % z celkové hmotnosti odebraného vzorku		0,26%



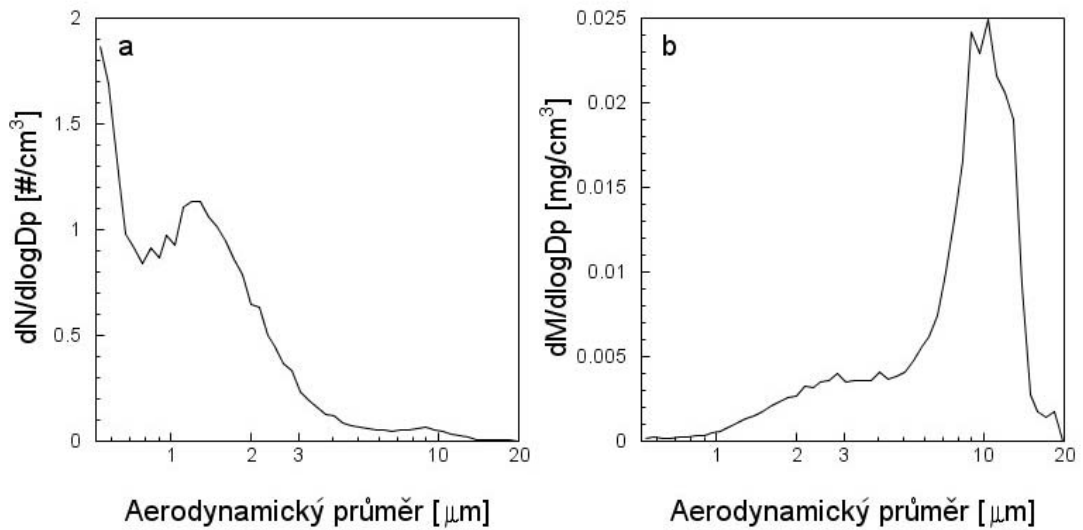
Obr. 32: Vzorek 8. Skládka sádrovce: a- velikostní distribuce počtu částic, b- velikostní distribuce hmoty částic.



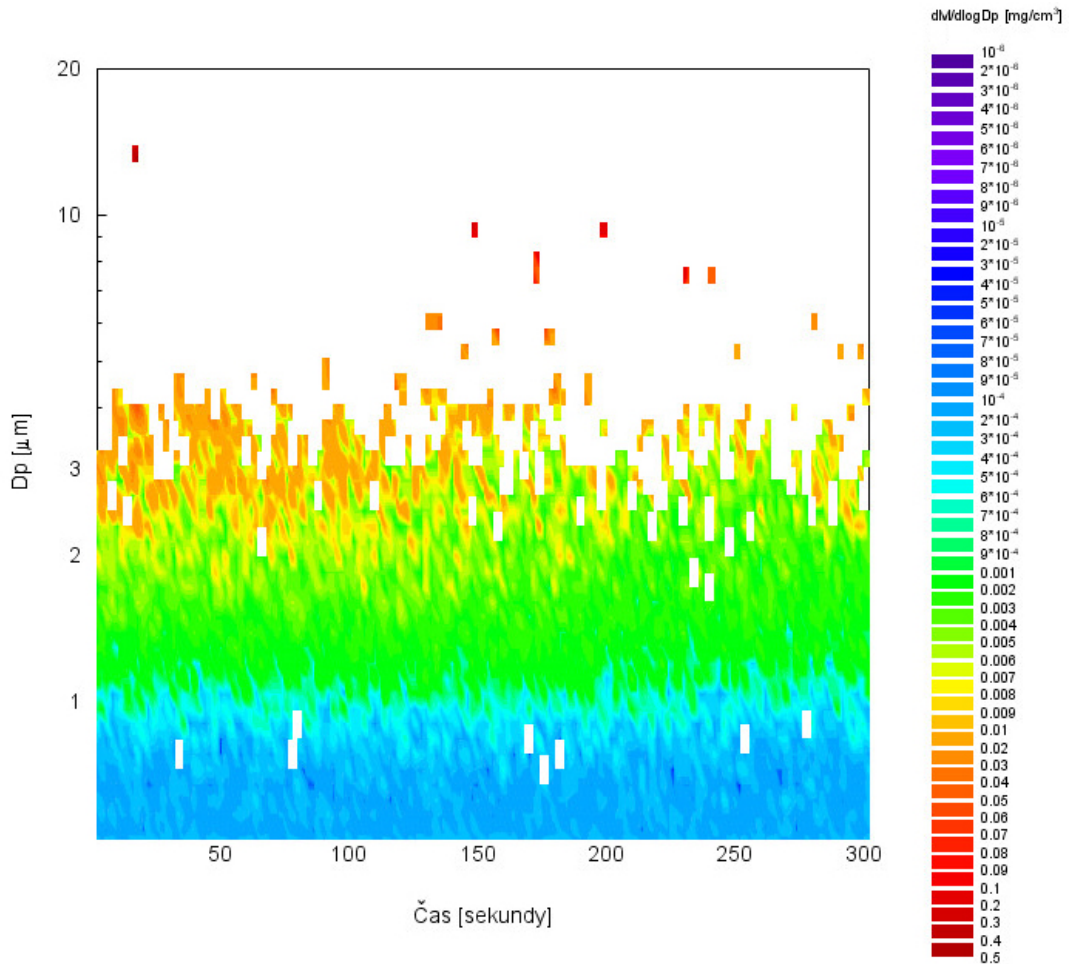
Obr. 33: Vzorek 8, Změna hmotnostní koncentrace po disperzi prachu ze skládky sádrovce.

Tabulka 13. Vzorek 8. Skládka sádrovce.

skládka sádrovce	početní koncentrace	hmotnostní koncentrace
průměr	31,19 [# /cm ³]	0,08 [mg/cm ³]
medián	30,98 [# /cm ³]	0,06 [mg/cm ³]
směrodatná odchylka	7,46 [# /cm ³]	0,07 [mg/cm ³]
průměr částic	3,05 μm (CMD)	1,84 μm (MMD)
průměrné velikosti částic	0,89 μm	3,05 μm
maximální dosažená koncentrace	45,42 [# /cm ³]	1,75 [mg/cm ³]
% hmotnosti vzorku po přesítování	3,28%	3,28%
suspendované % z celkové hmotnosti odebraného vzorku		0,01%



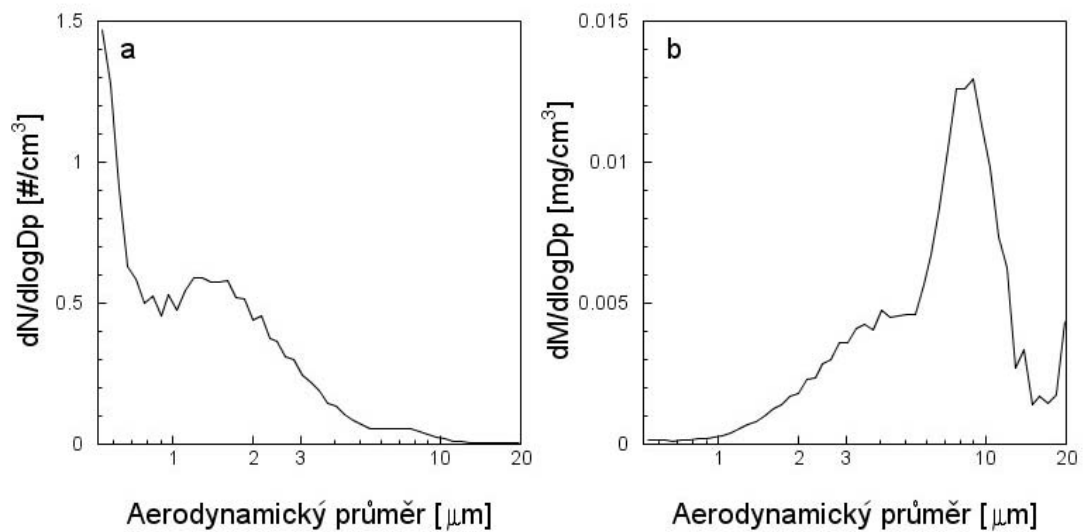
Obr. 34: Vzorek 9. Skládka popílku: a- velikostní distribuce počtu částic, b- velikostní distribuce hmoty částic.



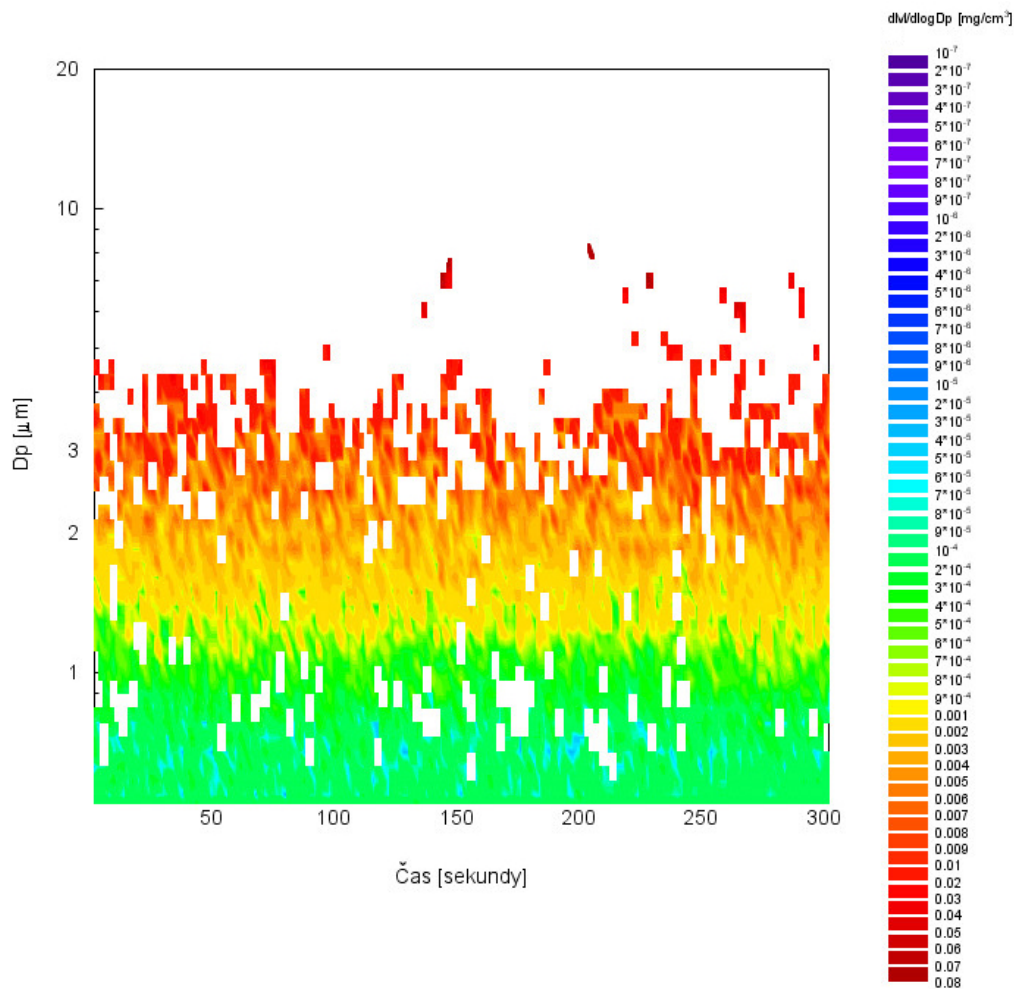
Obr. 35: Vzorek 9, Změna hmotnostní koncentrace po disperzi prachu ze skládky popílku.

Tabulka 14. Vzorek 9. Skládka popílku.

skládka popílku	početní koncentrace	hmotnostní koncentrace
průměr	37,69 [#/cm ³]	0,27 [mg/cm ³]
medián	37,98 [#/cm ³]	0,22 [mg/cm ³]
směrodatná odchylka	7,46 [#/cm ³]	0,2 [mg/cm ³]
průměr částic	3,05 μm (CMD)	2,64 μm (MMD)
průměrné velikosti částic	2,64 μm	2,46 μm
maximální dosažená koncentrace	107,14 [#/cm ³]	1,62 [mg/cm ³]
% hmotnosti vzorku po přesítování	16.32%	16.32%
suspendované % z celkové hmotnosti odebraného vzorku		0,19%



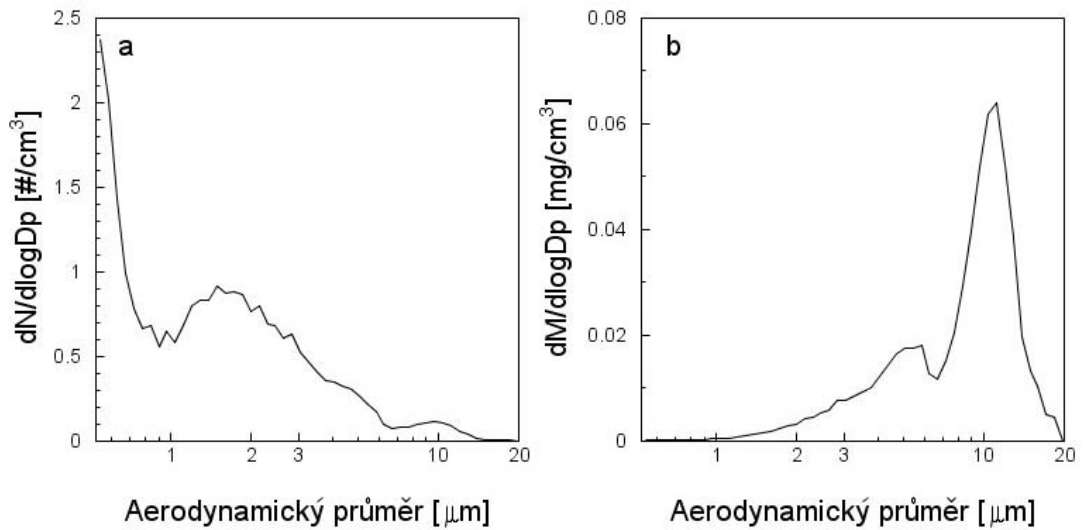
Obr. 36: Vzorek 10. Skrývková zemina: a- velikostní distribuce počtu částic, b- velikostní distribuce hmoty částic.



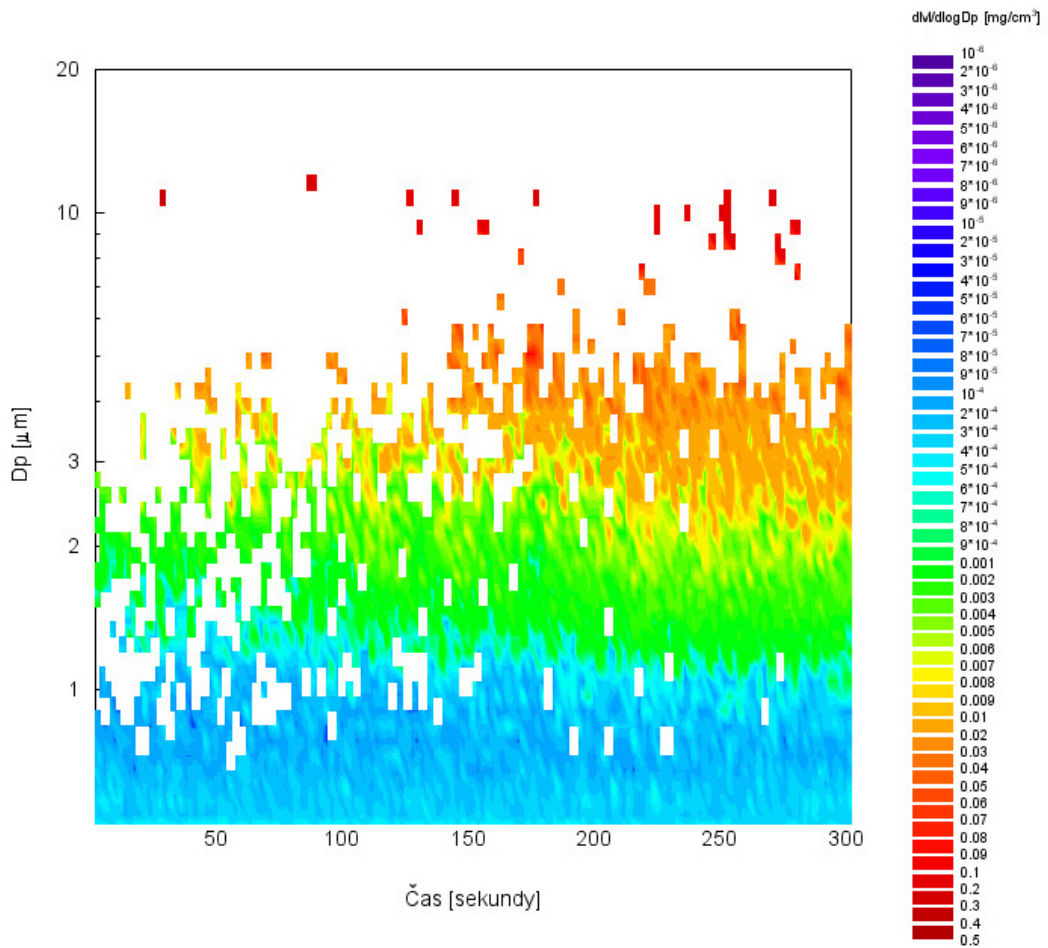
Obr. 37: Vzorek 10, Změna hmotnostní koncentrace po disperzi skrývkové zeminy.

Tabulka 15. Vzorek 10. Skrývková zemina.

skrývková zemina	početní koncentrace	hmotnostní koncentrace
průměr	27,98 [# /cm ³]	0,18 [mg/cm ³]
medián	27,73 [# /cm ³]	0,14 [mg/cm ³]
směrodatná odchylka	4,31 [# /cm ³]	0,15 [mg/cm ³]
průměr částic	3,05 μm (CMD)	12,86 μm (MMD)
průměrné velikosti částic	1,17	2,83 μm
maximální dosažená koncentrace	41,19 [# /cm ³]	1,44 [mg/cm ³]
% hmotnosti vzorku po přesítování	0,41%	0,41%
suspendované % z celkové hmotnosti odebraného vzorku		0,00%



Obr. 38: Vzorek 11. Popílek Tušimice: a- velikostní distribuce počtu částic, b- velikostní distribuce hmoty částic.



Obr. 39: Vzorek 11, Změna hmotnostní koncentrace po disperzi popílku z Tušimické tepelné elektrárny.

Tabulka 16. Vzorek 11. Popílek Tušimice.

popílek Tušimice	početní koncentrace	hmotnostní koncentrace
průměr	44,06 [# /cm ³]	0,62 [mg/cm ³]
medián	27,73 [# /cm ³]	0,53 [mg/cm ³]
směrodatná odchylka	14,11 [# /cm ³]	0,37 [mg/cm ³]
průměr částic	3,28 μm (CMD)	2,64 μm (MMD)
průměrné velikosti částic	0,89	4,07 μm
maximální dosažená koncentrace	80,39 [# /cm ³]	2,83 [mg/cm ³]
% hmotnosti vzorku po přesítování	6,77%	6,77%
suspendované % z celkové hmotnosti odebraného vzorku		0,18%

Z průměrných velikostních distribucí počtu a hmoty jednotlivých vzorků dispergovaných v resuspenzní komoře bylo zjištěno, že největších průměrných početních a hmotnostních koncentrací dosahuje elektrárenský popílek (vzorek číslo 7 a 11), určený k zahrabání do již vytěžených částí hnědouhelného dolu. Pokud by se přesítovaný vzorek (10 mg) dostal do vlnosu v komoře, dosáhla by hmotnostní koncentrace vzorku 22,88 mg·cm⁻³. U vzorků elektrárenského popílku dosahovala průměrná hmotnostní koncentrace 2,58 % u vzorku 7 a 2,71 % dispergované hmoty u vzorku 11. Z celkové hmotnosti suchých vzorků se účinně disperguje pouze 0,26 % hmoty u vzorku 7 a 0,19 % u vzorku 11. Hmotnostní koncentrace u ostatních vzorků dosahovala 0,34 % (vzorek 8- sádrovec) nebo 1,88 % (vzorek 4- povrch dolu) dispergované hmoty. Z celkové hmotnosti vzorku sádrovce se tak účinně dostává do vlnosu pouze 0,04 % hmoty, z povrchu dolu pak 0,32 % hmoty. U vzorku 7 dosahovala průměrná početní koncentrace hodnot až 70 částic na cm³. Velikostní distribuce obsahovala dva vrcholy, první kolem 0,5 μm a druhý kolem 1,3 μm. Průměrná hmotnostní koncentrace popílku dosahovala 0,59 mg·cm⁻³ a velikostní distribuce měla dva vrcholy- první u velikosti částic 4 μm a druhý u velikosti 10 μm. Popílek je pásovými dopravníky transportován přímo do vytěžených částí severočeského hnědouhelného dolu z Tušimické tepelné elektrárny. Po dosažení úložiště je volně sypán na skládku, kde by měl být následně zahrabán skryvkovou zemínou (obr. 40).



Obr. 40: Skládka elektrárenského popílku, vzorek 7.

Část 4.4 byla věnována studiu prvkového složení jednotlivých velikostních frakcí tohoto popílku. Velikostní frakce $PM_{2.5}$ μm obsahuje velké množství síry a je pravděpodobně tvořena polytypy sulfidů. Velikostní frakce 0.5-0.25 μm obsahuje pyrit. Popílek dosahuje po suspenzi největších početních a hmotnostních koncentrací a co se týče velikostní distribuce počtu částic, obsahuje velmi jemné částice menší než 1 μm . Tyto částice jsou největším potenciálním zdrojem aerosolových částic. Popílek je však skladován pouze na několika místech a je rychle překrýván skrývkovou zemínou. V konečném důsledku nepředstavuje tak velký zdroj aerosolových částic jako uhelný prach deponovaný na důlních komunikacích.

Průměrné početní koncentrace silničního uhelného prachu (vzorek 4) dosahovaly 60 částic na cm^3 s maximální početností kolem 1.6 μm a hmotnostní koncentrace 0,43 mg na cm^3 s dvěma vrcholy s velikostmi částic 3.3 a 10 μm . Po důlních komunikacích jezdí těžká nákladní technika a tak je těžené uhlí (vzorek 5- velikostní distribuce hmotnostní koncentrace) deponované na komunikacích rozmělnováno z částic velikosti 10 μm na menší částice velikosti kolem 3.3 μm (vzorek

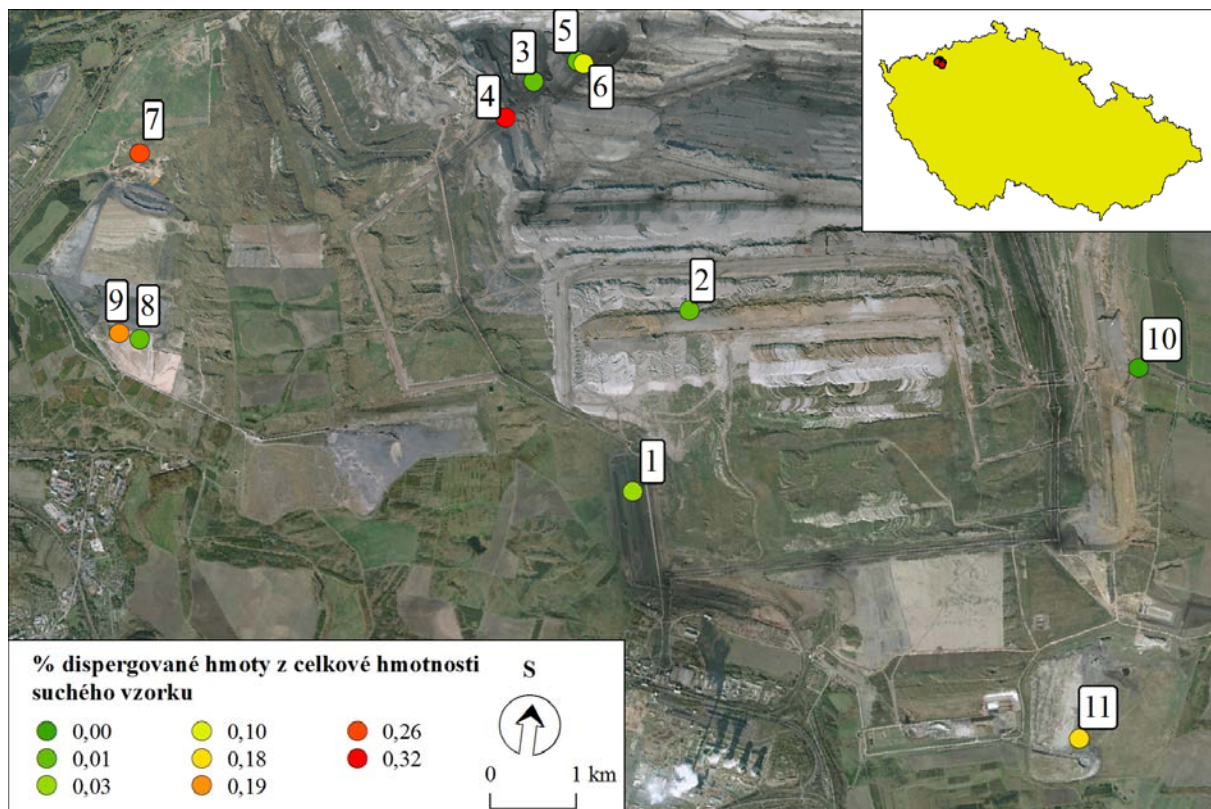
4- velikostní distribuce hmotnostní koncentrace) a v konečném důsledku tak pravděpodobně mnohem více ovlivňují celkovou hmotnostní koncentraci atmosférického aerosolu právě tyto částice z důlních komunikací (obr. 41), než částice ze samotného těženého dolu nebo částice ze skládek popílku.



Obr. 41: Komunikace na dně hnědouhelného dolu, vzorek 6.

Nejmenší průměrná hmotnostní koncentrace částic suspendovaných v resuspenzní komoře byla zjištěna u vzorku sádrovce z procesu odsiřování. Průměrná hmotnostní koncentrace zde dosahovala pouze $0,08 \text{ mg}\cdot\text{cm}^{-3}$ (0,34 % s celkové teoreticky možné navážky a pouze 0,01 % z celkové hmoty vzorku se disperguje), na celkovou hmotnostní koncentraci atmosférického aerosolu mají tak skládky sádrovce nejmenší vliv.

Obrázek 42 ukazuje mapku severočeského hnědouhelného dolu s místy, kde byly odebrány vzorky. Jednotlivá místa jsou zároveň barevně odlišena podle procentuálního množství dispergované hmoty z celkové hmotnosti suchého vzorku, které bylo zjištěno pomocí resuspenzní komory.



Obr. 42: Letecký snímek dolu Nástup s vyznačenými místy odebraných vzorků. 1- homogenizační skládka, 2- zakladač, 3- dno dolu, 4- deponovaný prach na komunikaci, 5- samotný důl, 6- deponovaný prach na komunikaci, 7- skládka popílku, 8- zahrabávka sádry, 9- popílek, 10- skrývka, 11- popílek Tušimice.

Analýza pomocí APS zjistila, že popílek dosahuje po suspenzi největších početních a hmotnostních koncentrací a co se týče velikostní distribuce počtu částic, obsahuje i částice kolem 1 μm a menší. Představuje tak v severočeském hnědouhelném dole největší potenciální zdroj aerosolových částic, i když je skladován pouze na několika málo místech. Pokud není včas překryt skrývkovou zeminou, představuje v konečném důsledku mohutný zdroj aerosolových částic. Dalším významným zdrojem je uhelný prach deponovaný na důlních komunikacích. V celkovém důsledku závisí mohutnost jednotlivých zdrojů na tom, jakou plochu zabírají z celkové plochy dolu. Z tohoto hlediska budou pravděpodobně největším zdrojem důlní komunikace.

5 ZÁVĚR

V rámci této doktorské práce a za podpory projektu Grantové agentury Univerzity Karlovy „Stanovení resuspendovatelné frakce ve vzorcích půd a pouličního prachu s využitím resuspenzní komory“, byla zkonstruovaná komora umožňující laboratorní disperzi pevných sypkých vzorků (pouliční prach, erodované zemědělské půdy, referenční materiály) ve vzduchu za podmínek řízené teploty a relativní vlhkosti. Vzniklý aerosol lze on-line sledovat pomocí APS nebo odebráním pomocí gravimetrických metod. Komora umožňuje studium velikostní distribuce atmosférického aerosolu a jeho separaci do volitelných velikostních frakcí, které lze poté podrobit chemické analýze.

Parametry disperze a sedimentační rychlosti byly nejdříve otestovány pomocí standardního křemenného prachu. Byla stanovena optimální navážka vzorku pro nejúčinnější disperzi, dále pak průměrná velikostní distribuce počtu a hmoty křemenných částic. Hodnoty CMD získané měřením z APS byly následně porovnány s výsledky měření pomocí zařízení Mastersizer. Hodnota CMD získaná pomocí APS se pohybovala v rámci přístrojového chybového rozpětí zařízení Mastersizer.

Byly zjišťovány hodnoty depozičních rychlostí křemenné částice při zapnutých respektive vypnutých ventilátorech za účelem zjištění limitního času vzorkování a ověření správné rychlosti sedimentace. Depoziční rychlost částic byla spočítána z úbytku částic v čase po disperzi. Hodnota aerodynamického průměru nejčtenější částice 1,04 μm za podmínek vypnutých ventilátorů byla následně použita do modelu sedimentace. Hodnoty depoziční rychlosti zjištěné pomocí APS se shodovaly s modelem koncové usazovací rychlosti.

Na třech hlavních vzorcích, odebraných v severočeském hnědouhelném dole, byla studována variabilita velikostních distribucí hmoty, která byla zobrazena pomocí grafu log-log rozptylu hodnot hmotnostních koncentrací velikostních distribucí jednotlivých vzorků během prvních pěti minut po suspenzi. Velikostní distribuce hmoty elektrárenského popílku dosahovaly nejvyšších hodnot hmotnostních koncentrací v porovnání s ostatními vzorky. Průměrná hmotnostní koncentrace dosahovala hodnoty 0,38 $\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$ a skoro 5x převyšovala průměrnou hmotnostní koncentraci hnědého uhlí. Průměrná velikost částic popílku se pohybovala kolem 10,9 μm .

Dále byl stanoven profil velikostní distribuce hmoty z gravimetrické analýzy hnědého uhlí a elektrárenského popílku za teplotních podmínek 20 °C a relativní vlhkosti 50 %. Analýza odhalila větší procentuální zastoupení jemnějších frakcí 2.5-1, 1-0.5 a 0.5-0.25 μm u elektrárenského popílku.

Deponované filtry s elektrárenským popílkem byly navíc podrobeny chemické analýze na elektronovém mikroskopu, která ukázala chemické odlišnosti ve sledovaných frakcích. V jednotlivých velikostních frakcích byly identifikovány dominantní látky- mullit, pyryty, polytypy sulfidu a sodné sklo.

V resuspenzní komoře byly následně dispergovány tři vzorky z různých částí severočeského hnědouhelného dolu při 20 °C a RH 50 % a následně podrobeny analýze pomocí APS s časovým rozlišením 2 s. Jednalo se o vzorky hnědého uhlí, elektrárenského popílku a sádrovce. Byly tak vytvořeny průměrné profily velikostních distribucí počtu a hmotnostní koncentrace jednotlivých vzorků. Z průměrných velikostních distribucí počtu a hmoty jednotlivých vzorků dispergovaných v resuspenzní komoře bylo zjištěno, že popílek dosahuje největší hmotnostních koncentrací po disperzi, až 2,71 % dispergované navážky vzorku, z celkové hmotnosti vzorku se pak do vznosu dostává 0,26 % celkové hmoty. Naopak sádrovec dosahuje nízkých hmotnostních koncentrací po disperzi v resuspenzní komoře, jen 0,34 % dispergované navážky (0,01 % dispergované hmoty z celkové hmotnosti suchého vzorku), skrývková zemina pak dosahuje úplně nejnižších hmotnostních koncentrací po suspenzi (jen 0,001 % dispergované hmoty z celkové hmotnosti suchého vzorku). Prachové částice z důlních komunikací a právě těžných lokalit se však budou pravděpodobně nejvíce podílet na celkové hmotnostní koncentraci atmosférického aerosolu v této oblasti, neboť hmotnostní koncentrace prachu dosahují až 1,88 % dispergované hmoty a z celkové rozlohy dolu zabírají největší plochu.

SEZNAM POUŽITÝCH SYMBOLŮ A ZKRATEK:

APS	spektrometr počítající částice o různém aerodynamickém průměru
C_{ext}	extinkce světla
CMD	median početnosti částic
C_{sca}	plocha částice, na které dochází k rozptylu světla
D_p	aerodynamický průměr částice
EDS	disperzní rentgenová spektrometrie
F	monochromatický světelný tok
HEPA	filtr s vysokou efektivitou záchytu částic
J	fotodisociační frekvence
L	intenzita monochromatického záření
m	index refrakce studovaných částic
MVA	mezní vrstva atmosféry
N	počet částic
N_0	počáteční počet částic
PM _x	soubor částic na filtru, kterému je předřazeno zařízení separující s 50 % účinností částic o aerodynamickém průměru $x \mu\text{m}$
PTFE	polytetrafluorethylen
RH	relativní vlhkost
S	povrch
t	čas
T	termodynamická teplota
TOMS	spektrometr na oběžné dráze Země mapující tloušťku ozónové vrstvy
TSP	celkový vzorek aerosolu bez velikostního rozlišení
UVSPEC	model průchodu slunečního záření atmosférou
V	objem
V_d	depoziční rychlost
z	výška nad mořem
β	konstanta depoziční rychlosti
β_{ext}	koeficient extinkce
θ	úhel měřený mezi nadhlavníkem a polohou Slunce nad horizontem
φ	úhel mezi linií pozorovatele a Slunce promítnutou na zem a linií od pozorovatele na jih

ϕ_i kvantový výtěžek
 σ_i absorpční průřez molekuly

LITERATURA:

- American Society for Testing and Materials (1984): Effectiveness of Dedusting Agents for Powdered Chemicals, *ASTM Designation D-D4331-84*, ASTM Committee D22.04 on Workplace Atmospheres, ASTM: West Conshohochken, PA, 448-452.
- AFGL Atmospheric Constituent Profiles (0120 km). AFGL-TR-86-0110, Air Force Geophysics Laboratory, Hanscom Force Base, MA, USA, 43 pp.
- Andreae, M.O., Lange, L., Roberts, G., Cafmeyer, J., Rajta, I., Maenhaut, W., Holben, B.N., Artaxo, P. a Lelieveld, J. (2001): Saharan dust in Brazil and Suriname during the Large-Scale Biosphere-Atmosphere Experiment in Amazonia (LBA) - Cooperative LBA Regional Experiment (CLAIRE) in March 1998, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 106 (D14), 14919-14934.
- Andreasen, A.H.M., Hofman-Bang, H., Rasmussen, N.H. (1939): On the ability to be dusty of materials, *Kolloid-Zeitschrift* 86, 70–77.
- Bernard, B., Carlson, P.M. a Steward, M. (1992): Fugitive PM10 emission estimates developed for EPA's Emission Trends Report, Transactions, PM10 Standards and Nontraditional Particulate Source Controls, *Journal of the Air & Waste Management Association*, 110-120.
- Bowker, D.E., Davis, R.E., Myrick, D.L., Stacy, K., Jones, W.T. (1985): Spectral reflectance of natural targets for use in remote sensing studies, *NASA Reference Publication*, 1139.
- Breum, N.O. (1999): The rotating drum dustiness tester: variability in dustiness in relation to sample mass, testing time, and surface adhesion, *Annual Occupational Hygiene* 43, 557–566.
- Busacca, A., Stetler, L., Horning, L., Barry, R., Wagoner, L., Saxton, K., Ashbaugh, L.L. (1997): Development of a PM10 'dustiness index' to assess wind erodibility of soils of the Columbia Plateau, Pacific Northwest, Wind Erosion International Symposium-Workshop, Manhattan, KS, 3–5 June 1997.
- California Air Resources Board (1990): Emission Inventory 1987. Technical Support Division, Emission Inventory Branch, California Air Resources Board, Sacramento, CA.
- Concessio, N. M., Jäger-Waldau, R, Hickey, A. J. (1997): Aerosol delivery from an active emission multi-single dose dry powder inhaler, *Particulate Science Technology*, 15, 51-63.

- Cowder, C. Jr. a Grelinger, M.A. (1992): The appropriateness of a dustiness test chamber for representation of natural suspension phenomena. PM10 Standards and Nontraditional Particulate Source Controls, *Journal of the Air & Waste Management Association*, 346-356.
- Dahmann, D., Hartfiel, K., Mocklinghoff, K. (1997): A procedure for the realistic determination of the dust-making inclination of waste, *Gefahr. Reinhalt. Der Luft*, 57, 503-507.
- Deichman, W.B., Dustshaker, A. (1944): *Journal of Industrial Toxicology* 26, 334–335.
- DeMore, W. B., Sander, S. P., Golden, D. M., Hampson, R. F., Kurylo, M. J., Howard, C. J., Ravishankara, A. R., Kolb, C. E. a Molina, M. J. (1997): Chemical Kinetics and Photochemical Data for Use in Stratospheric Modeling. *Jet Propulsion Laboratory*, 97-4.
- Dockery, D.W., Pope et al., C.A. III, Xu, X., Spengler, J.D., Ware, J.H, Fay, M.E., Ferris, B.G. and Speizer, F.E. (1993): An association between air pollution and mortality in six U.S. cities, *New England Journal of Medicine*, 329, 1753-1808.
- Eckhoff, R. K. (1997): Dust Explosions in the Process Industries, 2d ed., Butterworth-Heinemann, Oxford.
- Ellenbecker, M.J., Leith, D., Price, J.M. (1980): Impaction and Particle Bounce at High Stokes Numbers, *Journal of Air Pollution Control Association*, 30, 1224-1227.
- Fonda, M., Petach, M., Rogers, C. F. , Huntington, J., Stratton, D., Nishioka, K., Tipo, M. (1999): Resuspension of particles by aerodynamic deagglomeration, *Aerosol Science and Technology* 30. 509–529.
- Früh, B., Trautmann, T., Wendisch, M., Keil, A. (2000): Comparison of observed and simulated NO₂ photodissociation frequencies in a cloudless atmosphere and in continental boundary layer clouds. *Journal of Geophysical Research* 105, 9843-9857.
- Fryrear, D. (1992): Measured wind erosion of agricultural lands. Transactions, PM10 standards and Nontraditional Particulate Source Controls, *Journal of the Air & Waste Management Association*, 433-439.
- Gill, E.T., Zobeck, T.M, Stout, J.E. (2006): Technologies for laboratory generation of dust from geological materials, *Journal of Hazardous Materials*, 132, 1-13.
- Graham, J.A., Miller, F.J., Davies, D.W., Hiteshew, M.E., Walsh, L.C. (1985): Inhalation studies of Mt. St. Helens volcanic ash in animals. I., Introduction and exposure system, *Environmental Research* 37, 61–71.

- Heitbrink, W.A., Baron, P.A., Willeke, K. (1992): An investigation of dust generation by free falling powders, *American Industrial Hygiene Association Journal* 53, 617–624.
- Hindle, M., Byron, P. R. (1995): Size distribution control of raw materials for dry powder inhalers using the aerosizer with the aero-disperser, *Pharmaceutical Technology*, 19 (6), 64-78.
- Hirano, T., Kiyota, M., Aiga, I. (1995) : Physical effects of dust on leaf physiology of cucumber and kidney bean plants, *Environmental Pollution* 89, 255-261.
- Chen, Y. C., Barber, E. M., Zhang, Y., Besant, R. W., Sokhansanj, S. (1999): Methods to measure dust production and deposition rates in buildings, *Journal of Agriculture engineering Research* 72, 329-340.
- Cheng, L. (1973): Formation of respirable dust at belt conveyor transfer points, *American Industrial Hygiene Association Journal* 34, 540–546.
- Cheng, Y.S., Yeh, H.C. (1979): Particle Bounce in Cascade Impactors. *Environmental Science Technology*, 13, 1392-1396.
- Chow, J.C., Watson, J.G., Houck, J.E., Pritchett, L.C., Rogers, C.F., Fraizer, C.A., Egami, R. a Ball, M. (1994): A laboratory resuspension chamber to measure fugitive dust size distributions and chemical compositions. *Atmospheric Environment* 28, 3461-3481.
- Janssen, Y. M., Marsh, J. P., Absher, M. P., Hemenway, D., Vacek, P.M., Leslie, K. O., Borm, P. J., Mossman, B. T. (1992): Expression of antioxidant enzymes in rat lungs after inhalation of asbestos or silica, *Journal Biological Chemistry* 267, 10625-10630.
- Janssen, Y. M., Marsh, J. P., Absher, M. P., Hemenway, D., Vacek, P.M., Leslie, K. O., Borm, P. J., Mossman, B. T. (1992): Expression of antioxidant enzymes in rat lungs after inhalation of asbestos or silica, *Journal Biological Chemistry* 267, 10625-10630.
- John, W. (1995): Particle-Surface Interactions: Charge Transfer, Energy Loss, Resuspension, and Deagglomeration, *Aerosol Science and Technology*, **23**, 2-24.
- Junkermann, W. (1994): Measurements of the J_{O1D} actinic flux within and above stratiform clouds and above snow surfaces. *Geophysical Research Letters* 21, 793-796.

- Junkermann, W. (2005): The actinic UV-radiation budget during the ESCOMPTE campaign 2001: results of airborne measurements with the microlight research aircraft D-MIFU, *Atmospheric Environment* 74, 461-475.
- Lanning, J.S., Boundy, M.G., Leith, D. (1995): Validating a model for the prediction of dust generation, *Particulate Science Technology* 13, 105–116.
- Lewis, S. (1995): Solid particle penetration into enclosures, *Journal of Hazardous Materials* 43, 195-216.
- Li, X.W., Owen, J.A. (1996): A dust segregation rate test system, *Journal of Environmental Science and Health A* 31, 2533–2545.
- Morales, J. R., Dinator, M. I., Llona, F., Saavedra, J., Falabella, F. (1994): Sample preparation for archeological materials for PIXE analysis, *Journal of Radioanalytical Nuclear Chemistry Letters*, 187, 79-89.
- Muhle, H., Bellmann, B., Creutzenberg, O., Heinrich, U., Ketkar, M., Mermelstein, R. (1990): Dust overloading of lungs after exposure of rats to particles of low solubility: comparative studies, *Journal Aerosol Science* 21, 374-377.
- Newman, S. P. (2004): Dry powder inhalers for optimal drug delivery, *Expert Opinion in Biological Therapy*, 4, 23-34.
- Newman, S. P., Busse, W. W. (2002): Evolution of dry powder inhaler design, formulation and performance, *Respiration Medicine*, 96, 293-304.
- Patterson, Optical properties of Saharan mineral dust, (1977), *JGR*, 82, 21, 3153-3160.
- Podgorny, I.A., Li, F., Ramanathan, V. (2003): Large aerosol Radiative forcing due to the 1997 Indonesian Forest Fire. *Geophysical Research Letters* 30 (1), 1028.
- Pope, C.A. III, Thun, M.J., Namboodiri, M.M., Dockery et al., D.W., Evans, J.S., Spengler, F.E. and Haetch, C.W. (1995): Particulate air pollution as a predictor of mortality in a prospective study of U.S. adults., *American Journal of Respiratory and Critical Care Medicine*, 151, 669-674.
- SAE Handbook, 1943: 1943 Edition, Page 716.
- Shiotsuka R.N., Kutzman R.S., Firriolo J.M., Drew R.T., (1992) Use of fluidizing bed aerosol generators to establish a dust mixture of two substances at a fixed ratio for inhalation toxicology studies, *Journal of American Hygiene Association*, 53, 510–513.
- Schwartz, J., Dockery, D.W., Neas L.M.(1996): Is daily mortality associated specifically with fine particles? *Journal of the Air & Waste Management Association*, 46, 927-939.

- Schwartz, J., Dockery, D.W., Neas L.M.(1996): Is daily mortality associated specifically with fine particles? *Journal of the Air & Waste Management Association*, 46, 927-939.
- Sonkin, L.S., Lipton, M.A., Van Hoeson, D. (1946): An apparatus for dispersing finely divided dusts, *Journal of Industrial Hygiene and Toxicology* 28, 273–275.
- Stamnes, K., Tsay, S. C., Wiscombe, W., Jayaweera, K. (1988): Numerically stable algorithm for discrete-ordinate method radiative transfer in multiple scattering and emitting layered media, *Applied Optics*, 27, 2502.
- Sutter, S.L., Johnson, J.W., Mishima, J. (1982): Investigation of accident-generated aerosols: Releases from free-fall spills, *American Industrial Hygiene Association Journal* 43, 540–543.
- Timsina, M. P., Martin, G. P., Marriott, C., Ganderton, D., Yianneskis, M. (1994): Drug delivery to the respiratory tract using dry powder inhalers, *Int. Journal of Pharmaceutics*, 101, 1-13.
- VanHoosier, M. E. (1996): The Atlas-3 solar spectrum, dostupný přes anonymous ftp (<ftp://susim.nrl.navy.mil>).
- Wall, S., John, W., Wang, H.C., Goren, S. (1990): Measurement of Kinetic Energy Loss for Particles Impacting Surfaces, *Aerosol Science Technology*, 12, 926-946.
- Watson, J.G., Chow, J.C. a Mathai, C.V. (1989): Receptor models in air resources management- A summary of APCA International Specialty Conference, *JAPCA-The Journal of the Air & Waste Management Association*, 39, 419-426.
- Weare, B.C. (2000): Effects of cloud overlap on Radiative feedbacks. *Climate Dynamics* 17, 143-150.
- Wendisch, M., Mayer, B. (2003): Vertical distribution of spectral solar irradiance in the cloudless sky. A case study. *Geophysical Research Letters* 30, 1183.
- Wendisch, M., Mertes, S., Ruggaber, A., Nakajima, T. (1996): Vertical profiles of aerosol and radiation and the influence of a temperature inversion: measurements and radiative transfer calculations. *Journal of Applied Meteorology* 35, 1703-1715.
- Wright, B.M. (1950): A new dust-feed mechanism, *Journal of Scientific Instruments* 27, 12–15.
- Zimon, A.D. (1982): Adhesion of Dust and Powder, 2nd ed., Consultants Bureau, New York.

SEZNAM PUBLIKACÍ:

- **Atmosférický aerosol: přehled přístrojů k jeho měření a nové resuspenzní zařízení Přírodovědecké fakulty UK**
M. Civiš, D. Thimmaiah, J. Hovorka
Československý časopis pro fyziku, **59**, 133 (2009)
- **The resuspension chamber as a tool for complex characterization of quartz test aerosol**
M. Civiš
Journal of Safety Research and Application, **2**, (2010)
- **Characterization of dust samples from surface lignite mine using a resuspension chamber**
M. Civiš, J. Hovorka, D. Thimmaiah
Aerosol and Air Quality Research, posláno do redakce
- **Charakterizace prašných vzorků z povrchového hnědouhelného dolu s použitím resuspenzní komory**
M. Civiš, J. Hovorka, D. Thimmaiah
Zpravodaj hnědé uhlí, přijato k tisku
- **Elemental and organic carbon in atmospheric aerosols at downtown and suburban sites in Prague**
J. Schwarz, X. Chi, W. Maenhaut, M. Civiš, J. Hovorka, J. Smolík
Atmospheric Research, **90**, 287-302 (2008)
- **Source Apportionment of Sub-Micron Prague Aerosol from Combined Particle Number Size Distribution and Gaseous Composition Data by Bilinear Positive Matrix Factorization**
D. Thimmaiah, J. Hovorka, M. Civiš, P. Hopke
Acta Universitatis Carolinae-Environmentalica, 22:81-110 (2008)

PREZENTACE NA KONFERENCÍCH:

- European Geosciences Union General Assembly, Vídeň, Rakousko, 13-18.4. 2008
M. Civis, W. Junkermann
Poster: Optical properties of vertical aerosol column (OPAC)
- American Association for Aerosol Research: 29th Annual Conference, Orlando, USA, 20-24.10. 2008
M. Civis, J. Hovorka, D. Thimmaiah
Poster: Temperature and humidity controlled resuspension chamber as a tool for measuring size distribution of fugitive dust
- SPREAD workshop, Kundratice, ČR, 20.10.2009
M. Civiš, J. Hovorka
Přednáška: Sledování dynamiky koncentrací aerosolu PM_{2.5} s využitím fotometrů DustTrak v síťovém uspořádání

PŘÍLOHA A

STUDIUM ATMOSFÉRICKÝCH AEROSOLŮ S VYUŽITÍM LETECKÉ PLATFORMY, JEJICH VLIV NA PRŮCHOD SLUNEČNÍHO ZÁŘENÍ ATMOSFÉROU

1 Výchozí stav

Optické vlastnosti atmosférického aerosolu výrazným způsobem ovlivňují radiační bilanci krátkovlnného záření. Prostorová a časová variabilita atmosférického aerosolu tak velkou měrou řídí kvantitativní tok krátkovlnného záření v regionálním či dokonce globálním měřítku. Opticky aktivní aerosoly buď z pouštního prachu, sopek nebo z hořící biomasy, jsou často transportovány na značně velké vzdálenosti ve středních výškách troposféry a jsou těžko měřitelné z pozemních stanic. Důkazem může být nedávná erupce islandské sopky Eyjafjallajökull, která na několik dní zcela ochromila leteckou dopravu v Evropě. Využití letadel nebo satelitů je v současné době jediné možné řešení k detailní charakterizaci dopadu aerosolu na radiační bilanci MVA, letecká měření zde slouží buď k validaci satelitních dat nebo ke studiu radiačních procesů probíhajících na aerosolových částicích. Důležité přístrojové vybavení pro takovéto měření zahrnuje přístroje pro charakterizaci velikostní distribuce aerosolu, spektrální absorpci a rozptyl světla na částicích.

Přístroje na měření koeficientu absorpce a rozptylu jsou komerčně dostupné, avšak svými rozměry a váhou nevyhovují požadavkům přístrojového vybavení pro měření pomocí malých letounů. Většina přístrojů je založena na principu nasávání aerosolu do těla stroje, kde je umístěna černá komora. Zde je aerosol ozářen a rozptýlené světlo je detegováno pod několika úhly. Optické vlastnosti aerosolu jsou silně závislé na vrstvě vody sorbované na povrchu aerosolových částic. Částice, které jsou nasáty do měřicí komory, velmi rychle ztrácejí svoji vlhkost a mění své rozptylové parametry. Nedávno byl postaven komerčně dostupný přístroj NGN-3a (Optec), který umožňuje měření v otevřeném prostoru a zamezuje tak všem negativním faktorům spojeným se ztrátou vlhkosti v měřeném objemu vzduchu. Tento přístroj je zkonstruován pro pozemní měření a není vhodný pro letecké platformy. Z těchto důvodů jsme zkonstruovali nový, kompaktní nephelometr, který ve své konstrukci využívá předlohy optického systému komerčního stroje, ale je použitelný na palubě malého letadla.

Rozptylové a absorpční vlastnosti atmosférického aerosolu jsou jedním z hlavních řídicích prvků distribuce sluneční energie, která je důležitá k řízení fotochemických reakcí v mezní vrstvě atmosféry (MVA). V MVA probíhají

fotodisociační procesy molekul zářením o delší vlnové délce než 290 nm, neboť krátkovlnné záření je kompletně absorbováno stratosférickým ozónem a molekulárním kyslíkem. Disociace molekul je limitována energií fotonů, která je schopná rozbít molekulární vazby. Většina fotodisociačních reakcí probíhá v ultrafialové části spektra mezi 290 – 420 nm. Nejdůležitějšími fotodisociačními procesy v MVA jsou fotolýza ozónu (< 340 nm), formaldehydu (< 360 nm), peroxidu vodíku (< 400 nm) a oxidu dusičitého (< 420 nm). Všechny tyto reakce produkují hydroxylový radikál (OH). OH radikál zajišťuje samočisticí schopnost atmosféry a fotochemický vznik troposférického ozónu (Levy, 1974; Fischman et al, 1978; Logan et al, 1981; Enhalt, 1999; Hofzumahaus, 2002). Ve velmi znečištěných vzdušných hmotách je značná část krátkovlnného záření absorbována již v horních vrstvách MVA a záření dopadající na zemský povrch je značně zeslabováno v závislosti na vlnové délce. Modelové kalkulace vertikální distribuce radiačních parametrů MVA většinou lépe korelují s experimentálními měřeními než modelové kalkulace pro nižší nadmořské výšky nad kontinentálními povrchy (Früh *et al*, 2000; Wendisch a Mayer, 2003) nebo nad oceánem (Hofzumahaus *et al*, 2002).

V současné době existuje jen velice málo experimentálních dat pro MVA, neboť k jejich získání je třeba použít letadla s odpovídajícím přístrojovým vybavením a létat do maximální výšky 500 m nad terénem se spodní základnou maximálně 20 m. Krátkovlnné radiační záření je silně přetvářeno během průchodu MVA hlavně rozptylem a absorpcí. Na těchto procesech se nejvíce podílejí aerosoly a oblačnost. Rozptyl záření vede ke zvětšování optické dráhy fotonů v MVA a ke zvyšování fotodisociačních frekvencí, zatímco absorpce vede ke ztrátám fotonů. Relativní podíl rozptylu a absorpce závisí na velikostní distribuci a chemickém složení aerosolu a zároveň zeslabuje silný vliv vlhkosti. Ztráta krátkovlnného záření v závislosti na nadmořské výšce je také kritickým prvkem u klimatických modelů. Vertikální distribuce aerosolu a oblaků ovlivňuje vertikální výměnu tepla a bilanci vody v atmosféře (Weare, 2000; Podgorny et al., 2003. Měření aerosolu ve zvrstvené oblačnosti je pak jen v malé míře k dispozici pouze pro vysoké solární zenitové úhly zejména v jižnějších oblastech (Junkermann, 1994; Früh et al., 2000; Wendisch a Keil, 1999; Wendisch et al., 1996).

2 Experiment

V rámci naší studie jsme provedli měření fotodisociačních frekvencí $J(\text{NO}_2)$, $J(\text{O}^1\text{D})$, ozónu, teploty, tlaku, vlhkosti, koeficientu rozptylu částic a velikostní distribuce částic prováděním vertikálních měřících letů a charakterizováním mikrofyzikálních vlastností aerosolových částic nad různými oblastmi s antropogenním nebo pozadřový charakterem v rámci projektu zabývajícího se vznikem srážkové oblačnosti „Convective and Orographically-Induced Precipitation Study“ (COPS) v létě roku 2007 v údolí řeky Rýn, v jihovýchodním Německu. Naměřená data byla následně použita k porovnání naměřených fotodisociačních frekvencí $J(\text{NO}_2)$ a $J(\text{O}^1\text{D})$ s modelovými hodnotami spočítanými pomocí souřadnicové metody průchodu záření-discrete ordinate radiative transfer method (DISORT) (Stammes et al., 1988). Pro tento experiment byl zkonstruován malý přenosný nephelometr s nízkou hmotností.

2.1 Vybavení letadla

Ultralehké letadlo (motorové rogalo) bylo vybaveno přístroji pro sledování intenzity průchodu světelného záření, nephelometrem vlastní konstrukce, meteorologickými přístroji a GPS (Global Positioning System) (obr. 11).



Obr. 11: Ultralehký letoun Enduro IMK-MIFU, letiště Baden-Baden, Německo 2007.

Vlastnosti tohoto letadla jako nízká rychlost ($80 \text{ km}\cdot\text{h}^{-1}$) a rychlé stoupání ($5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$) umožnily získat unikátních dat. Během dvou měřicích dnů (20.6. a 24.6.2007) bylo provedeno několik letů, během nichž byly charakterizovány fyzikální a optické vlastnosti aerosolového sloupce MVA v oblastech Achern, Offenburg (Porýní) a Haselbach (Černý les). Kampaň byla zaměřená na získání dat, která ovlivňují průchod slunečního záření atmosférou, a která jsou důležitá pro získání vstupních parametrů do matematického modelu UVSPEC-DISORT. Byly monitorovány velikostní distribuce aerosolových částic, koncentrace ozónu a standardní meteorologické parametry (tlak, relativní vlhkost a teplota), dále pak fotodisociační frekvence pomocí detektorů $J(\text{NO}_2)$, $J(\text{O}^1\text{D})$, extinkční koeficient, výška nad terénem a zeměpisná poloha. Přístrojové vybavení použité během projektu OPAC je uvedené v tabulce 2.

Tabulka 2. Přístrojové vybavení letounu Enduro pro projekt OPAC.

Parametr	Přístroj	Časové rozlišení	Přesnost
Ozón	UV-Fotometr (PSI, CH)	2 s	± 2 ppb
Fot. Dis. 300 nm $J(\text{O}^1\text{D})$	2 Filtrové radiometry ↑↓	1 s	
Fot. Dis. 380 nm $J(\text{NO}_2)$	2 Filtrové radiometry ↑↓	1 s	
Teplota	Pt 100 (Meteolab, CH)	1 s	± 0.1 °C
Vlhkost	Dew point mirror (Meteolab)	1 s	± 0.1 °C
Tlak	Data Instruments, Mod. XT	1 s	± 0.1 hPa
Pozice	GPS (Garmin 12 LX)	2 s	± 15 m
Aerosol	GRIMM 1.108, 15 kanálů	6 s	0.3-20 μm
Radiovýškoměr		1 s	± 0.3 m
Koeficient rozptylu	Nephelometr	0.1 s	0.01-7 km ⁻¹

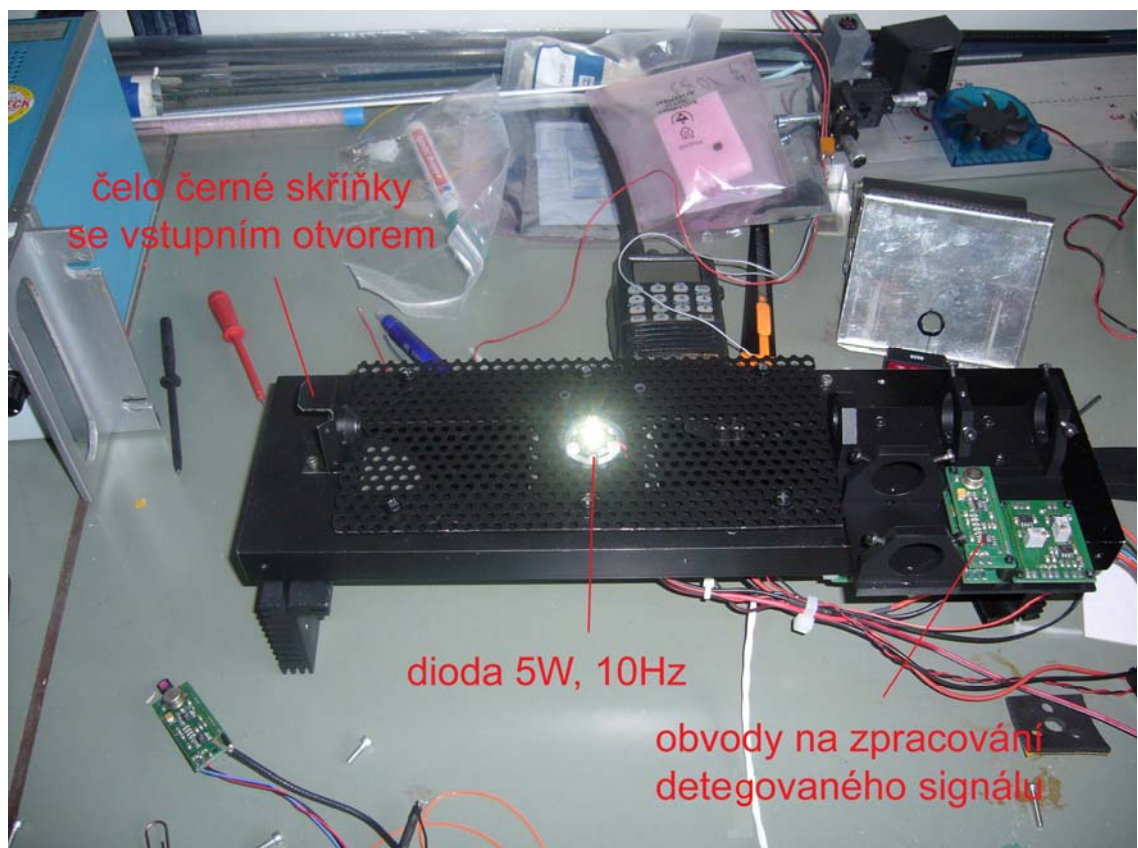
Ze všech bloků měření byly použity čtyři vzorové soubory dat (1 profil pro oba detektory $J(\text{NO}_2)$ a $J(\text{O}^1\text{D})$ během měřeného dne) vertikálních aerosolových sloupců naměřených 20.6. a 24.6. Během těchto měření převládalo slunečné bezoblačné počasí.

2.2 Konstrukce nephelometru pro letecké platformy

Nephelometr je zařízení umožňující přesné měření rozptylového koeficientu plynů nebo částic. Použitím konverzních faktorů může být hodnota rozptylového koeficientu použita k výpočtu hodnoty inverzního kilometru a hmotnostní koncentrace. Veškeré práce spojené s konstrukcí zařízení byly provedeny v dílně IMK-IFU (Institute for Meteorology and Climate Research) tak, aby bylo zařízení co nejlehčí a s co nejmenším aerodynamickým odporem, aby mohlo být umístěno na závěsu vzpěry podvozkového kola ultralehkého letounu.

Nosnou konstrukcí zařízení je hliníková deska, nad jejímž povrchem dochází k osvětlování molekul vzduchu a aerosolových částic bílým světelným zářením z 5W diody. Objem analyzovaného vzduchu je osvětlen diodou. Analyzovaný svazek rozptýleného světla je na jedné straně kompletně pohlcen černou skříňkou obsahující černé zrcadlo, které po průchodu světla vstupním otvorem odráží paprsky do vnitřní části komory, v níž je světlo následně absorbováno na stěnách. Na druhé straně analyzovaného světelného svazku je rozptýlené světlo vedeno optickou soustavou k dvěma fotodetektorům. K desce jsou připojeny ostatní elektronické komponenty- elektronické obvody na zpracování signálu z fotodetektorů, mikropočítač na ovládání intenzity a frekvence záblesků diody a teplotní čidla. Vnitřek přístroje je černý. Jako

zdroj světla byla použita 5 W dioda s Lambertovým radiačním profilem. Dioda byla umístěna do střední části přístroje, kde vyzařuje bílé světlo s frekvencí 10 Hz do 2π steradiánu (180°) a osvětluje tak 70 % měřeného objemu komory, do které je přiváděn aerosol, avšak přímo neosvětluje analyzovanou detekční optickou soustavu. Do optické soustavy přichází pouze světlo rozptýlené na molekulách plynu a na aerosolových částicích. Do výšky 1 cm nad desku byla umístěna síťovaná deska s průměrem ok 0.5 cm a s otvorem uprostřed pro volný průchod světelných paprsků z diody. Okolo otvoru byly umístěny tři plošné světelné clony- dvě boční a jedna přímá clona, které zamezují dopadu odraženého světla a přímého dopadu světla ze zdroje světelného záření do optického detekčního systému. Frekvence záření diody, příkon proudu a teplotní stabilizace je prováděna mikropočítačem, který je zabudován do spodní části základní desky a je napájen externí 12V baterií nebo stabilizovaným zdrojem. Obrázek 6 zobrazuje vnitřní konstrukci nephelometru.



Obr. 6: Snímek vnitřní konstrukce nephelometru obsahuje základní desku přístroje s 5W bílou diodou s modulovanou frekvencí záření 10 Hz, vlevo čelo černé skříňky (pohlcovač světla na jedné straně optické dráhy), vpravo optický systém s elektronickými destičkami na zpracování detegovaného signálu (na druhé straně optické dráhy). Pod síťovou deskou je vidět malý obdélníkový prostor, pod kterým je umístěn malý ventilátor (outlet).

6 cm nad diodou kolmo proti světelnému záření je umístěn fotodetektor (Hamamatsu S1087), který pouze sleduje frekvenci a intenzitu světelné diody. Signál slouží k správnému načasování měření detektorů v optické detekční soustavě (signál je zpracován pomocí externího počítače programem LabView). Mikro počítač zároveň řídí dva teplotní senzory (LM35), první z nich je připevněn k chladiči (Peltier) světelné diody, druhý je upevněn ve spodní části měřicí komory, v blízkosti optické měřicí soustavy.

Osvětlením plynu dochází k rozptylu světla na molekulách plynu nebo částicích. Vzorkovaný objem vzduchu má tvar zhruba 20 cm dlouhého úzkého válce s průměrem 8 mm. Optický detekční systém se skládá ze skleněného vstupního okénka, dichroitického filtru a dvou teleskopů, přičemž za každým z nich je v ohnisku umístěn jeden fotodetektor.

Rozptýlené světlo prochází skleněným otvorem a dichroitickým filtrem (FF495-Di02) s velice ostrou cut-off křivkou na vlnové délce 500 nm. Filtr je umístěn ve směru dopadajícího svazku světla pod úhlem 45°.

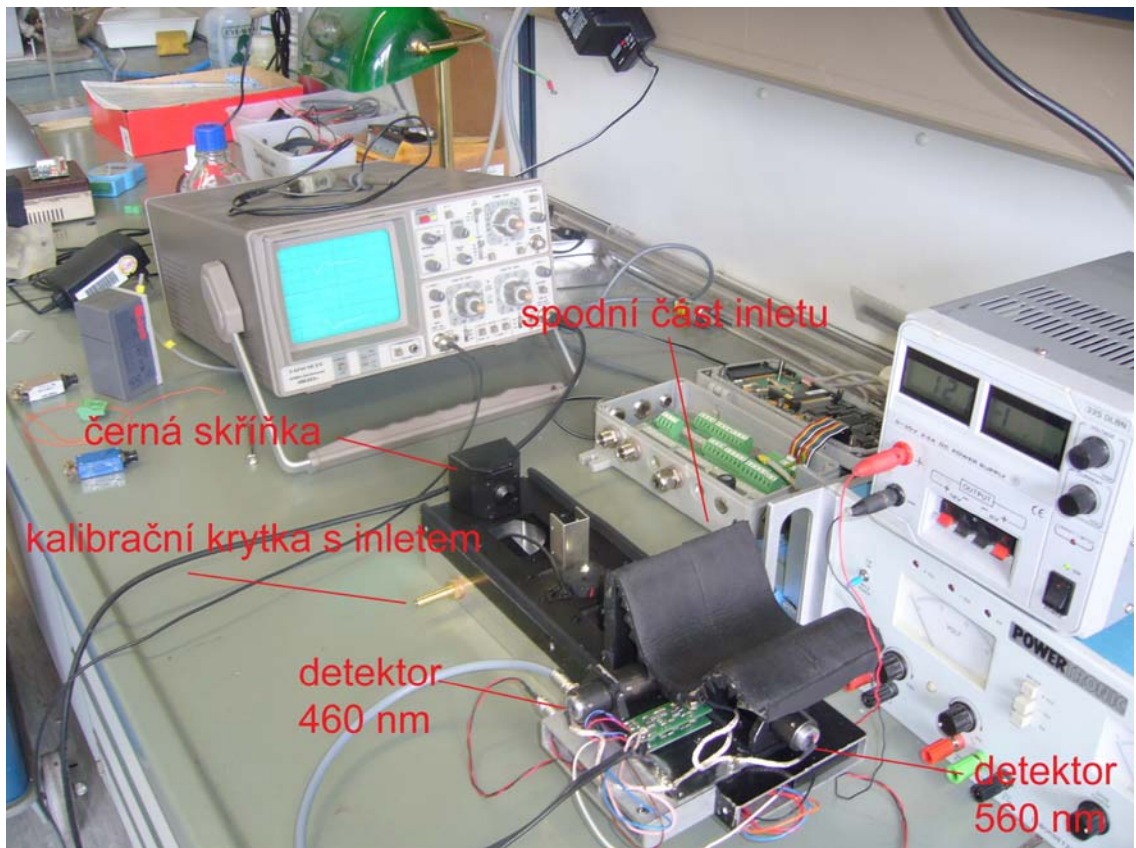
Záření s vlnovou délkou delší než 500 nm prochází přímo filtrem do teleskopu, kde je pomocí čočky fokusováno (vzdálenost ohniska 12 mm) na aktivní plochu fotodiody (Hamamatsu S1080) s maximální citlivostí kolem 560 nm.

Záření s kratší vlnovou délkou než 500 nm je odraženo dichroitickým filtrem do druhého teleskopu. kde je na konci své optické dráhy fokusováno čočkou na fotodiodu (Hamamatsu S6428-01) s maximální citlivostí kolem 460 nm.

Signály z obou fotodetektorů mají tvar vlny a jsou filtrovány tak, aby byl minimalizován šum. Proud přicházející z obou fotodetektorů je konvertován na napětí a zesílen pomocí nízkoproudového zesilovače (LT1008).

Vstupní otvor pro sání analyzovaného vzduchu se nachází nad optickou sekcí a je tvořen 0.5 mm silným plechem. Inlet má tvar sinusoidy o délce 15.4 cm, vstupní otvor je obdélníkového tvaru o rozměrech 9.5x2 cm. Vnitřní část je pokryta černou plastickou pěnou. Inlet je navržen podle staršího modelu laboratorního nephelometru. Při letových rychlostech ($20-50 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$) tak účinně zachytává částice větší než 20 μm . Nasměrování toku aerosolu přímo do centrální části stroje je zajištěno pomocí usměrňovací plošky, která je umístěna za inletem. Vzduch je přiveden přímo nad světelnou diodu, dále proudí do spodní části přístroje, kudy vychází ven. Větráček

udržuje průtok zařízením při pozemních měřeních, zatímco během letu je průtok udržován pomocí dynamického tlaku způsobeného pohybem letounu ($20\text{-}50\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$).



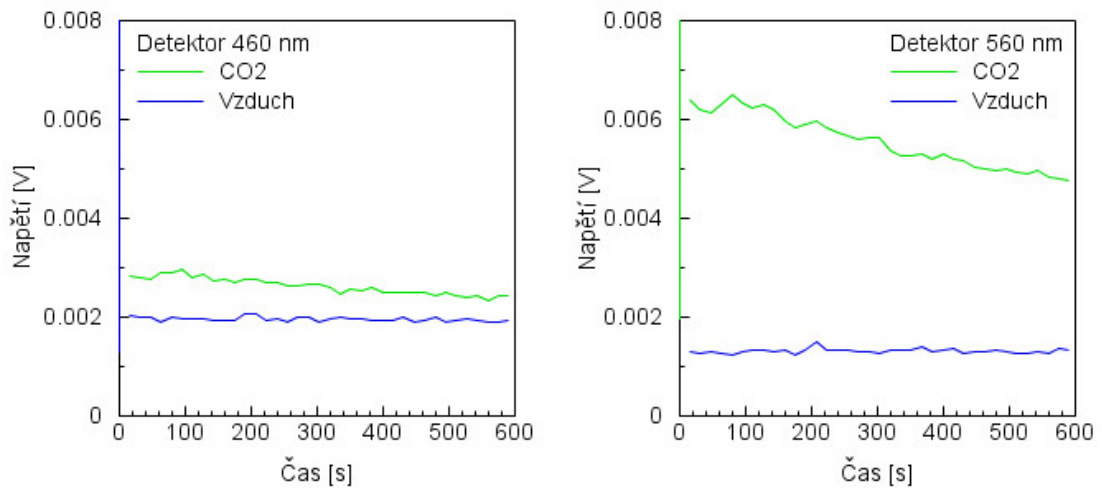
Obr. 7: Vnitřní konstrukce nephelometru, černá skříňka, optický systém složený ze dvou teleskopů se zabudovanými fotodetektory. Nad optickou částí je vidět spodní část vstupní části sinusového tvaru.

Přístroj je kalibrován pomocí oxidu uhličitého (může být kalibrován i Freonem 22 (CHClF_2)).

Řízení systému a vyhodnocování aktuálních dat bylo zajištěno pomocí softwaru LabView. Tento software pracuje pomocí externího počítače, který zpracovává signály z optického systému. Program umožňuje nastavení libovolné integrační doby signálu a řád filtrace signálu. Data jsou ukládána v podobě textového souboru, který obsahuje časový údaj podle nastavené integrační doby a údaje integrované hodnoty signálu ve voltech pro oba fotodetektory (460 a 560 nm).

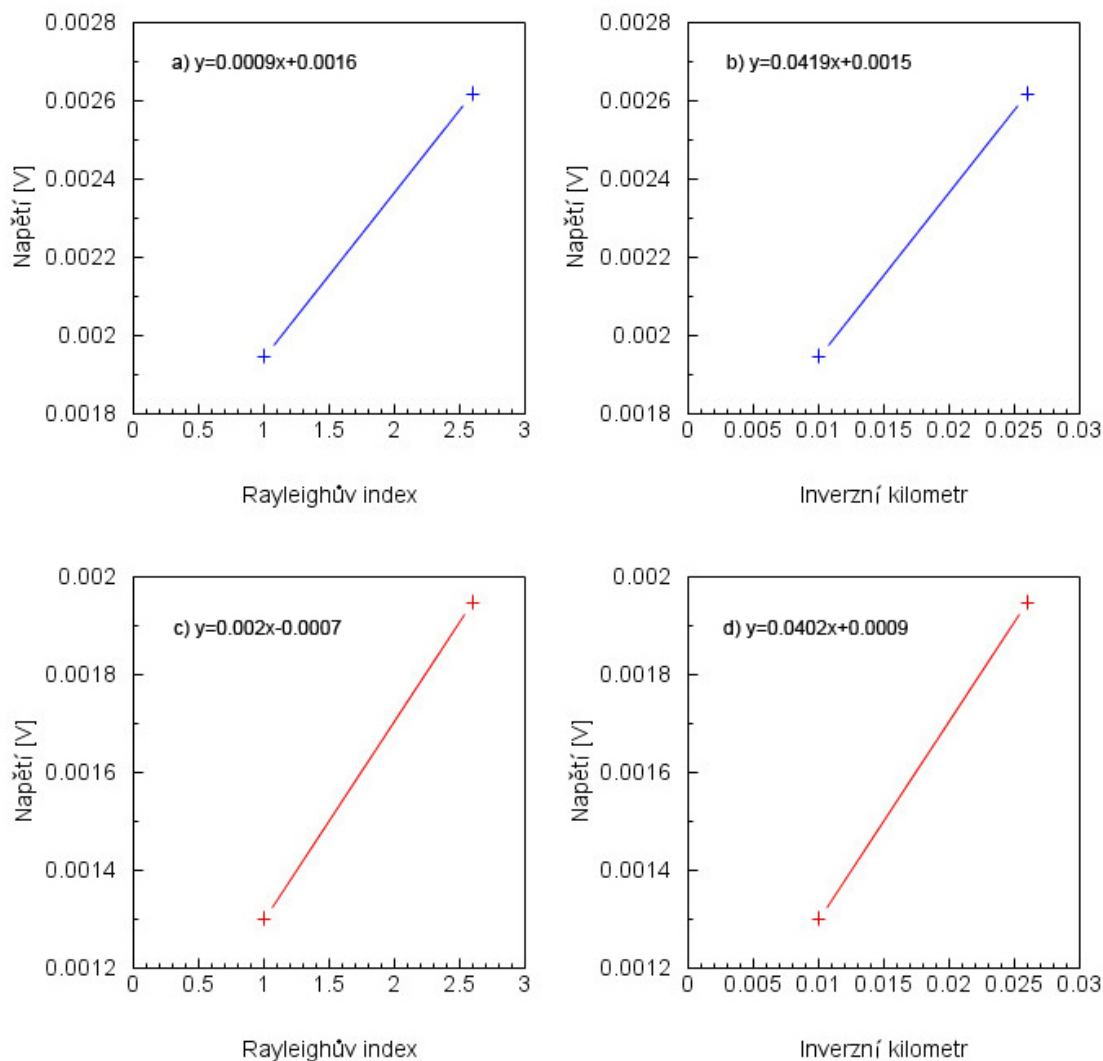
Hodnota rozptylového indexu čistého vzduchu je ekvivalentní jedné jednotce Rayleighova rozptylu nebo hodnotě inverzního kilometru 0.01. Koeficient rozptylu kalibračního plynu CO_2 je ekvivalentní 2.6 jednotkám Rayleighova rozptylu. Pokud známe tyto dvě hodnoty a hodnoty integrovaného signálu, je možné pomocí lineární

regrese generovat hodnoty rozptylového koeficientu plynu nebo aerosolových částic. Pro kalibraci systému je používán vzduch ze stlačené láhve, který je ještě navíc filtrován pomocí hepafiltru. Napouštění čistým vzduchem trvá asi 5 minut. Následuje desetiminutové integrační měření (viz obr. 8). Obdobně probíhá i kalibrace pomocí CO₂ (viz obr. 8).



Obr. 8: Grafy časových změn signálu napětí ve voltech s 16s integrační periodou při kalibraci obou detektorů nephelometru pomocí čistého vzduchu a CO₂. Celková délka kalibrace 10 minut.

Průměrná hodnota napětí pro jednotlivé kalibrační plyny během kalibrace je vstupní hodnotou pro tvorbu kalibrační křivky, sloužící pro výpočet Rayleighova indexu nebo hodnoty inverzního kilometru. Získané křivky pro jednotlivé detektory jsou zobrazeny na obrázku 9.



Obr. 9: Grafy změny napětí při kalibraci: a) detektor 460 nm s rovnicí pro výpočet Rayleighova indexu, b) detektor 460 nm s rovnicí pro výpočet inverzního kilometru, c) detektor 560 nm s rovnicí pro výpočet Rayleighova indexu, d) detektor 560 nm s rovnicí pro výpočet inverzního kilometru.

Pro účely monitorování optických vlastností aerosolu byl nephelometr umístěn pod pravou podvozkovou vzpěrou na ultralehkého letounu IMK-IFU (viz obr. 10).



Obr. 10: Uchycení nephelometru na vzpěře pravého kola hlavního podvozku ultralehkého letounu IMK-MIFU.

2.3 Charakteristika letových dnů a záznam letových tratí

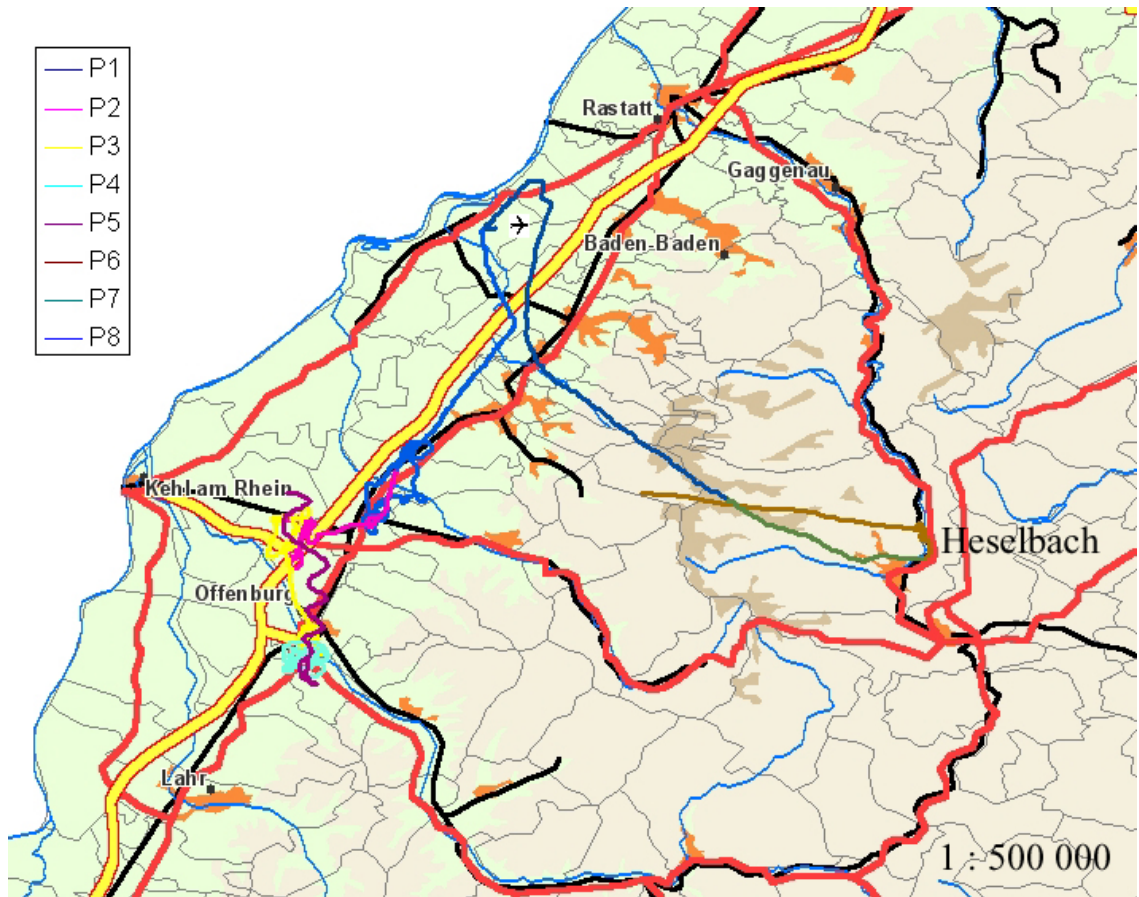
Optimální letové a měřicí podmínky byly 20.6. a 24.6.2007. Tyto dny se vyznačovaly mezní vrstvou atmosféry značně znečištěnou převážně ozónem a aerosolovými částicemi. Koncentrace ozónu dosahovala hodnot až 500 ppb. Letoun startoval z letiště Baden-Baden v jihovýchodním Německu. První vyhodnocovaný let (20.6.) byl proveden za jasného počasí a skončil za polojasného počasí s pokrytím oblohy 4/8 oblačností typu stratokumulus. Porovnávaný profil však byl naměřen za bezoblačných podmínek. Obrázek 37 ukazuje záznam trasy letu. Celý let byl rozdělen do 7 individuálních vertikálních profilů (P1-P7). Profil P7 byl později využit k porovnání s modelem. Profil P1 byl měřen stoupáním v prostoru umístěného asi 5 km severozápadně od města Achern v Porýní, v místě značného aerosolového znečištění

pocházejícího z průmyslové aglomerace v blízkosti řeky Rýn. Profil P3 byl získán sestupným letem v prostoru vesnice Haselbach (Černý les) v oblasti, kde se vyskytuje převážně pozad'ový aerosol a není v blízkosti žádný zdroj znečištění. Profil P7 byl získán sestupným letem v prostoru 10 km severozápadně od města Achern v blízkosti řeky Rýn.



Obr. 37: Záznam letové tratě z 20.6.2007. Jednotlivé úseky letu (P1-P7). Profil P7 byl použit k porovnání naměřených hodnot s modelem.

Druhý vyhodnocovaný let byl uskutečněn 24.6.2007 za podmínek bezoblačného počasí na vylétaných místech v Porýní (Obrázek 38). Celý let byl rozdělen do 8 samostatných letových profilů (P1-P8), mezi P5 a P6 chybí část záznamu, neboť zde došlo ke ztrátě signálu GPS. Data naměřená během P4 profilu byla později použita k porovnání s modelem. Profil P1 byl získán stoupavým letem v prostoru asi 15 km jihovýchodně od Achern, zatímco profily P3 a P4 byly získány stoupavým letem respektive klesavým letem v prostoru 5 km jižně od města Offenburg.



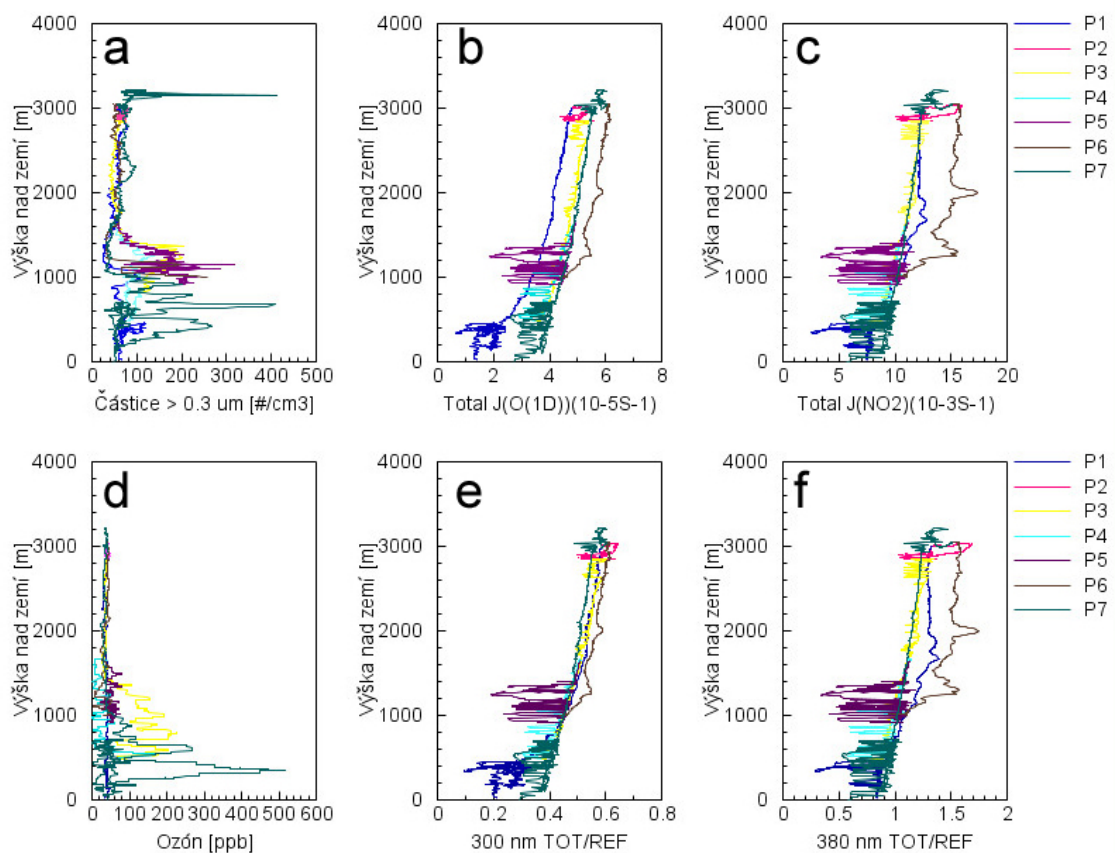
Obr. 38: Záznam letové cesty z 24.6.2007. Jednotlivé úseky letu (P1-P8). Profil P4 byl použit k porovnání naměřených hodnot s modelem.

3 Výsledky a diskuse

3.1 Naměřené hodnoty fyzikálních parametrů

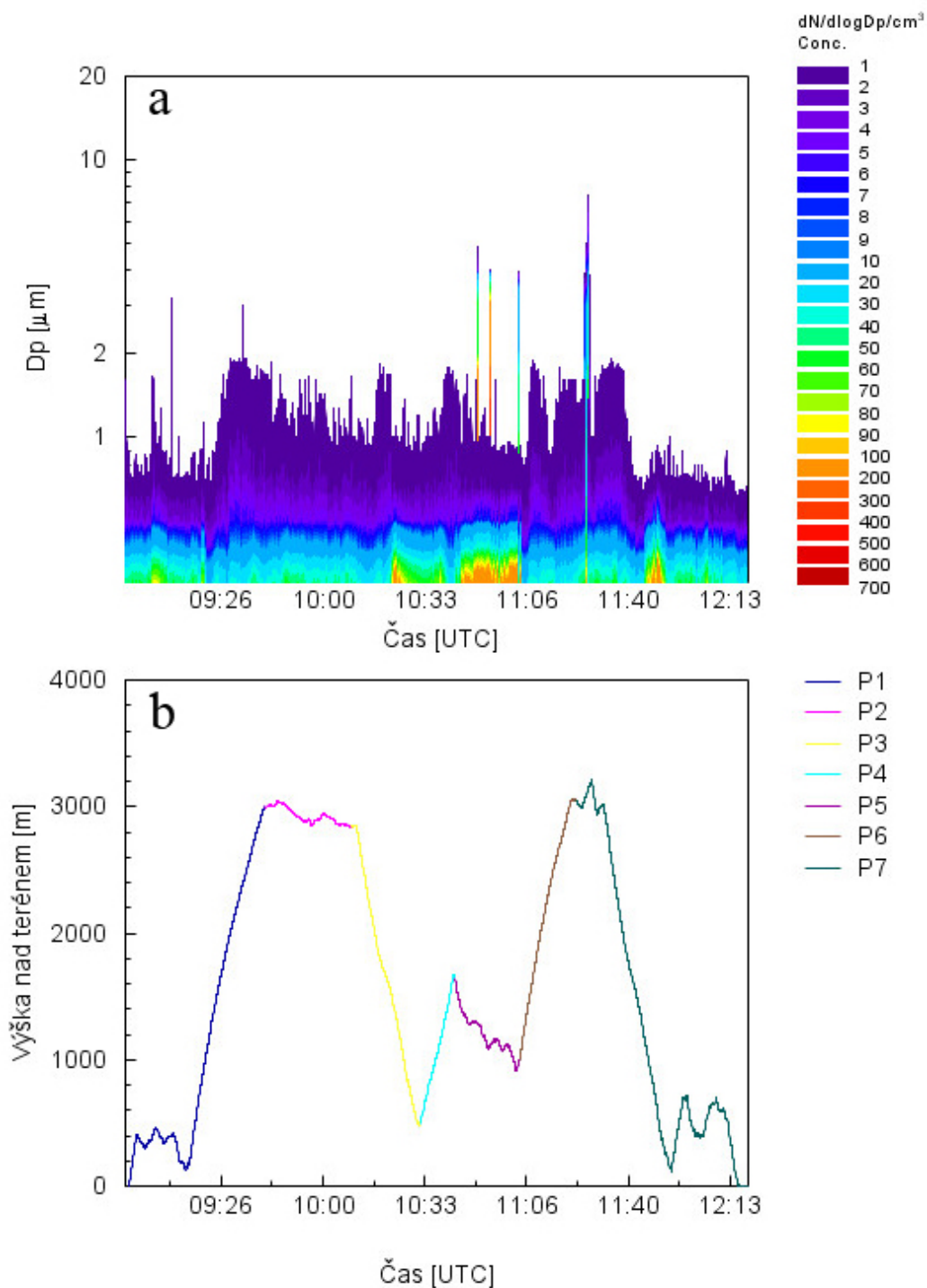
Naměřené hodnoty senzorů 300 nm, 380 nm, koncentrace aerosolu $> 0.3 \mu\text{m}$ a koncentrace ozónu pro jednotlivé části letu jsou zachyceny v obrázcích 37 (20.6.) a 38 (24.6.). Radiační data naměřená během jednotlivých letů se v důsledku denní doby v určitých profilech liší změnou intenzity dopadu radiačního toku na horní vrstvu atmosféry. U 300 nm senzoru jsou naměřené hodnoty závislé ještě na koncentraci ozónu. Normalizace radiačních toků byla provedena tak, že každá naměřená hodnota v daném výškovém profilu byla vyjádřena jako podíl dané hodnoty a hodnoty

radiačního toku v nejvyšším bodě daného profilu nad MVA. Tímto způsobem byl získán jednotkový poměr k referenční výšce, který lze použít k srovnání jednotlivých radiačních profilů s různými solárními zenitovými úhly mezi sebou. Nevýhodou normalizovaných radiačních toků je ztráta absolutní kalibrace. Měření provedené 20.6.2007 (obr. 39) ukázala homogenní stratifikaci aerosolu v celé studované oblasti s výjimkou posledního profilu P7, měřeného 15 km severozápadně od města Achern, kde měřené koncentrace aerosolu dosahovaly maximálních hodnot (400 částic v cm^3). V ostatních měřených profilech nebyla zjištěna žádná výrazná variabilita aerosolu. Denní změna aerosolových koncentrací je naopak patrná v nejnižších vrstvách MVA v blízkosti řeky Rýn.



Obr. 39: Letecké měření 20.6.2007 s profily P1-P7: a) vertikální distribuce aerosolu, b) radiační tok 300 nm, c) radiační tok 380 nm, d) koncentrace ozónu, e) normalizované radiační profily pro 300 nm, f) normalizované radiační profily pro 380 nm.

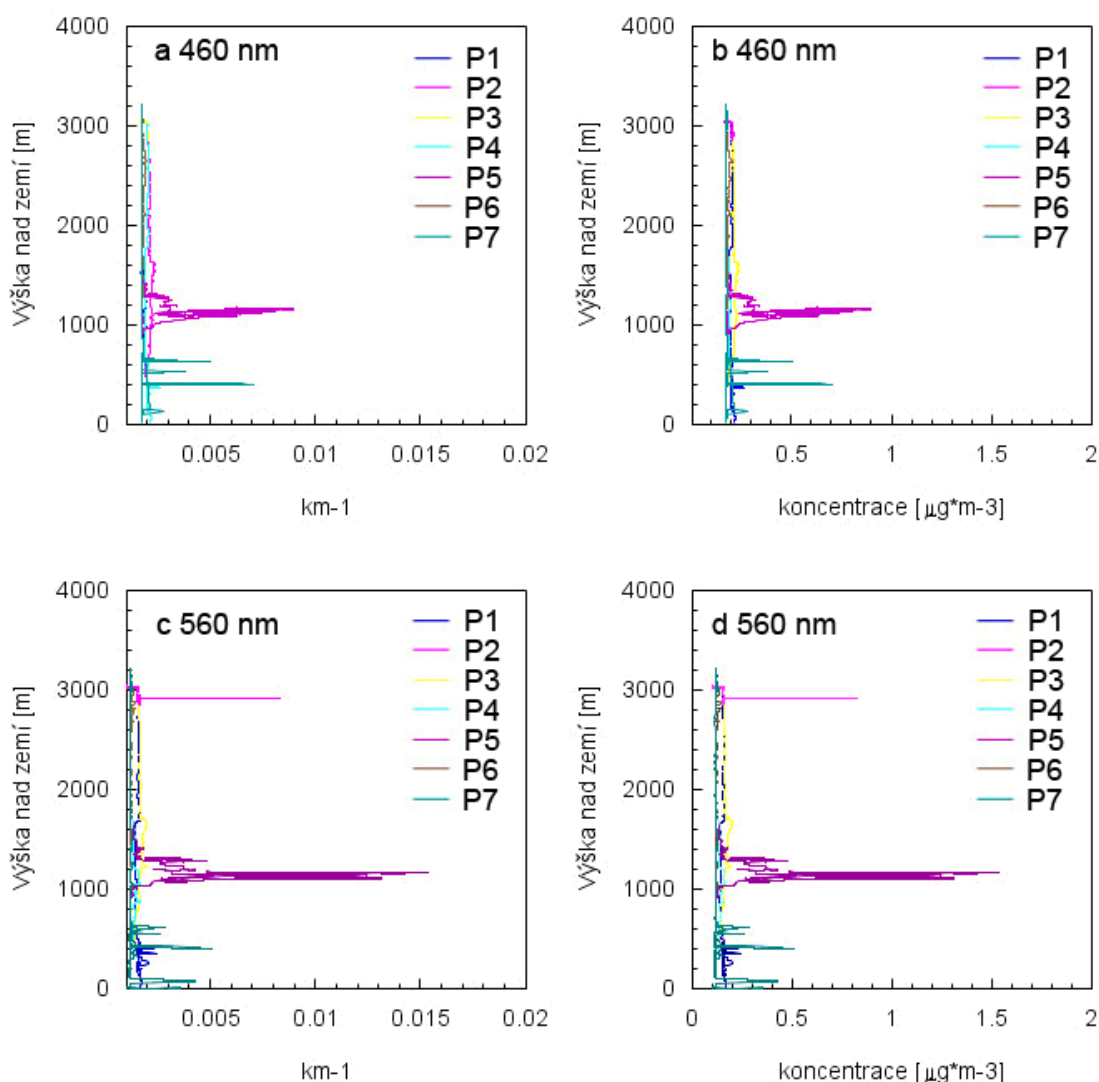
Koncentrace částic aerosolu kopírují denní změny přirozených a antropogenních emisí aerosolu v blízkosti země. Vertikální profil ozónu vykazuje obdobné charakteristiky. Koncentrace ozónu se výrazně zvyšuje v nejspodnější vrstvě MVA do 1200 m nad zemí, pravděpodobně díky jeho chemické produkci.



Obr. 40: Letecké měření 20.6.2007. a) velikostní distribuce počtu částic aerosolu vyjádřené jako $dN/d\log D_p$ [počet částic na cm^3] během měřícího letu, b) profil letu vyjádřený jako výška nad terénem v metrech.

Nejvyšší početní koncentrace částic aerosolu byla během letu nalezena 800-1200 metrů nad terénem při sestupném profilovém přeletu z oblasti Heselbach do oblasti asi 15 km východně od města Aachern. Největší množství bylo často zaznamenáno pro velikostní frakce 0.3-0.5 μm (až 200 částic v cm^3), dále byly zjištěny zvýšené koncentrace hrubší

frakce částic v rozmezí 1-5 μm (až 300 částic v cm^3) a částic až do velikosti 10 μm (až 40 částic na cm^3) nacházející se v nejvyšším bodě měření (3100 m) (Obr. 40). Spodní vrstvy aerosolu jsou s největší pravděpodobností antropogenního původu. Koncentrace částic rostla se silícími termickými proudy během dopoledních letů. Odpoledne byla ve volné atmosféře zjištěna vrstva aerosolu, která pravděpodobně vznikla dálkovým transportem částic a v průběhu dne se nasunula nad studovanou oblast (Profil P7) a byla identifikována měřením posledního profilu P7. Vysoké koncentrace ozónu, vyšší než při zemi, indikují antropogenně znečištěné ovzduší. Vertikální distribuce radiačního toku vykazuje konstantní ztrátu fotonů během průchodu atmosférou nad studovaným územím do výšky přibližně 1200 m nad terénem u všech měřených profilů. Konstantní ztráta fotonů při průchodu atmosférou až na zemský povrch byla zjištěna pouze u profilu P1. Nerovnoměrná ztráta radiačního toku s klesající výškou v MVA je způsobená rozptylem a absorpcí fotonů na vrstvách aerosolu. Nerovnoměrná ztráta radiačního toku byla zjištěna u obou detektorů pod 1200 m, u profilů P4, P5 a P7 byla tato způsobena zvýšenou oblačností. Hodnoty inverzního kilometru a hmotnostních koncentrací naměřených nephelometrem jsou zobrazeny na obrázku č. 41.

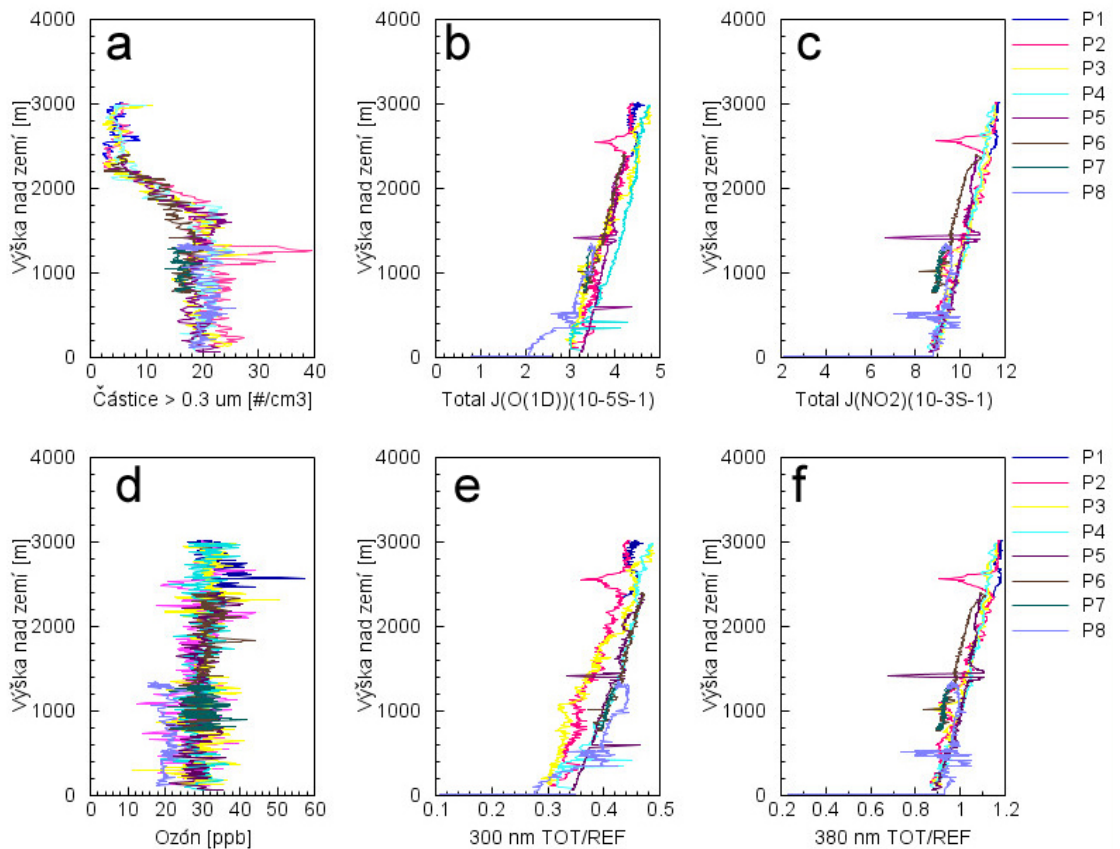


Obr. 41: Letecké měření nephelometru 20.6.2007. a) hodnoty inverzního kilometru naměřené detektorem pro vlnovou délku 460 nm, b) hodnoty hmotnostní koncentrace částic naměřené senzorem pro vlnovou délku 460 nm, c) hodnoty inverzního kilometru naměřené senzorem pro vlnovou délku 560 nm, d) hodnoty hmotnostní koncentrace naměřené pomocí senzoru pro vlnovou délku 560 nm.

Obrázek 41 ukazuje první letové testy nephelometru. Naměřené hodnoty inverzního kilometru a hmotnostní koncentrace aerosolu mohou mít ve skutečnosti mírně odlišnou hodnotu díky optickým vlastnostem jednotlivých vrstev aerosolu. Hodnoty detegovaného signálu byly převedeny na jednotky inverzní kilometr a hmotnostní koncentrace pomocí kalibračních rovnic (CO_2 (kapitola 4)).

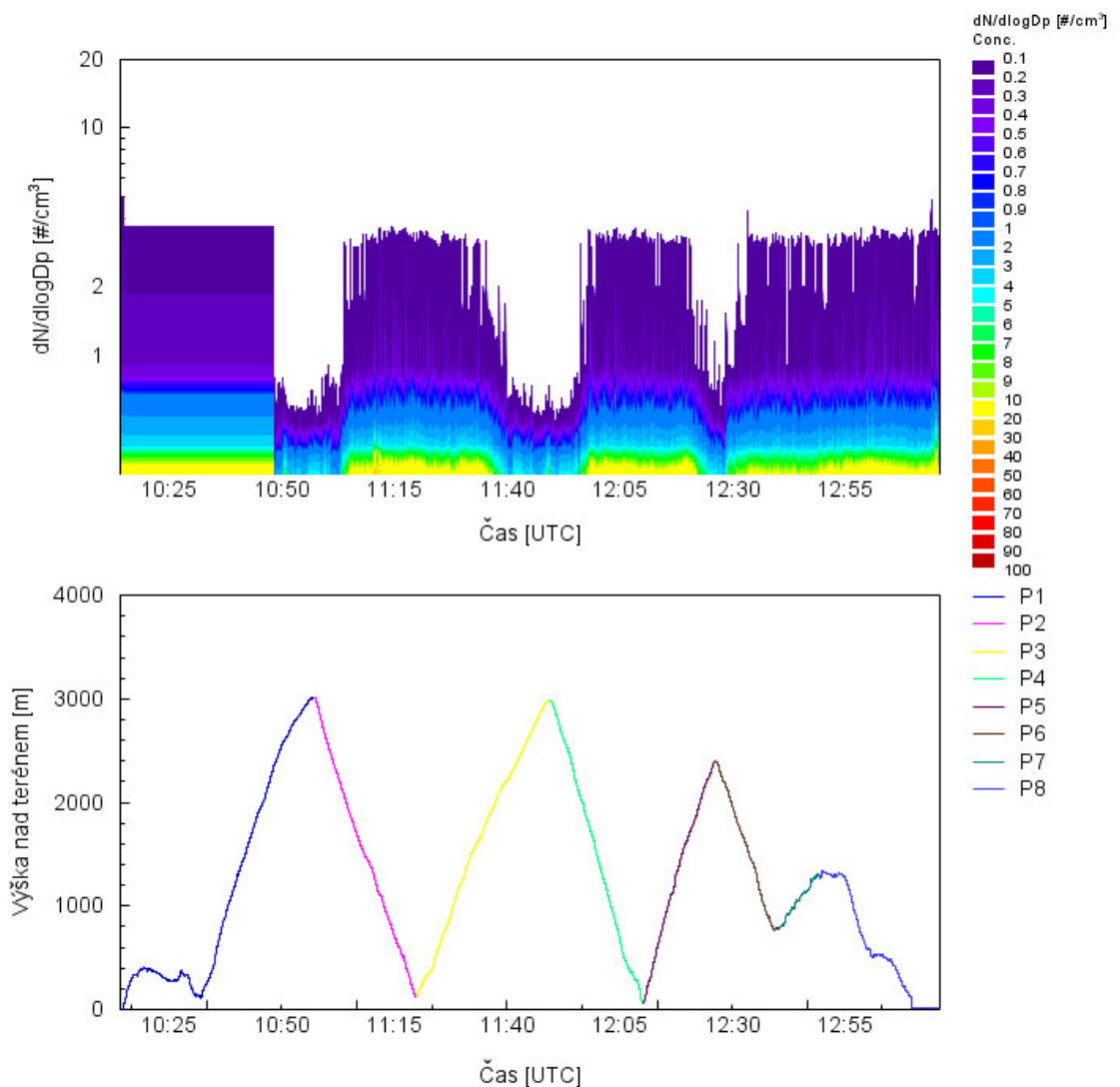
Během letového měření provedeného (24.6.2007 – obrázek 42) byla zjištěna homogenní koncentrace částic aerosolu ve všech studovaných profilech, tentokrát i v nižších vrstvách MVA. Celkově vykazovala naměřená koncentrace částic velice

nízkých hodnot, dosahujících maximálně 40 částic v cm^3 v oblasti průmyslového Offenburgu, jinak se pohybovala průměrně okolo 20 částic v cm^3 . Naměřená koncentrace ozónu byla velice nízká (maximálně 60 ppb) v porovnání s měřením 20.6. (kdy dosahovala až 500 ppb) a homogenně distribuovaná na celém studovaném území i ve spodních vrstvách MVA v průběhu celého dne. Ztráta fotonů během radiačního toku byla během tohoto letu konstantní v celém vertikálním sloupci na celém území. V meziprofilovém porovnání byla větší ztráta radiačního toku 300 nm u profilů P2 a P3, kde bylo prováděno vertikální sondování v oblasti západně, respektive východně od města Offenburg. Tato oblast se nachází opět v průmyslové části Porýní a studovaným prostorem navíc prochází dálnice s vysokou hustotou automobilového provozu i o víkendech a státních svátcích. Početní koncentrace částic zde dosahovaly nejvyšších hodnot z celé studované oblasti- u profilu P2 až 40 částic na cm^3 . U vlnové délky 380 nm nebyly pozorovány výrazné rozdíly ve ztrátě fotonů z radiačního toku mezi jednotlivými profily na celém území.



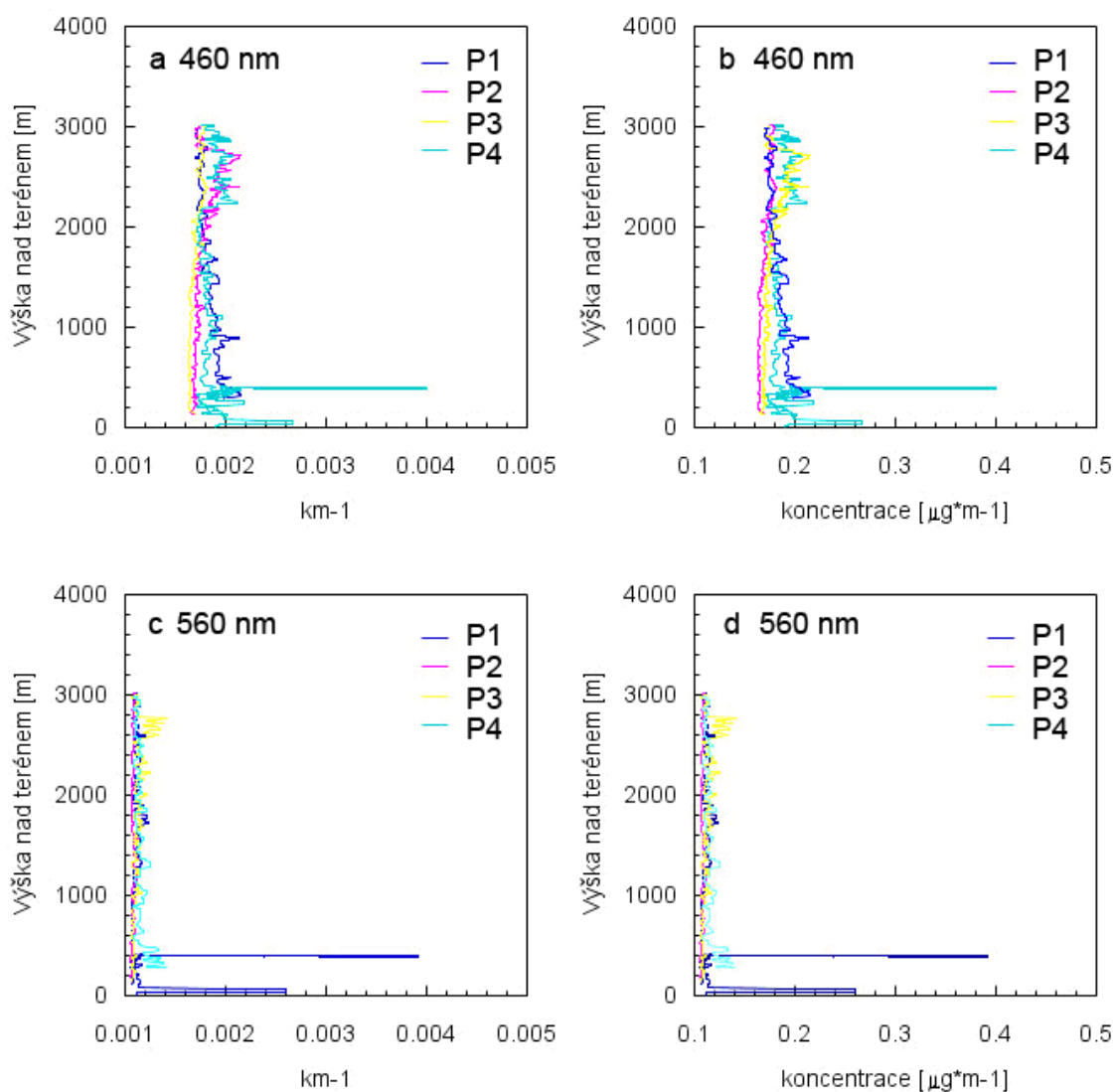
Obr. 42: Letecké měření 24.6.2007 s profily P1-P8: a) vertikální distribuce aerosolu, b) radiační tok 300 nm- suma signálu odraženého od povrchu země a signálu z atmosféry, c) radiační tok 380 nm- suma signálu odraženého od povrchu země a signálu z atmosféry, d) koncentrace ozónu, e) normalizované radiační profily pro 300 nm, f) normalizované radiační profily pro 380 nm.

Průběh velikostní distribuce částic během celého letu je zaznamenán na obrázku 43 a) a b). Největší početní zastoupení částic aerosolu bylo u částic o velikosti menší než 0.4 μm , jejichž koncentrace byla konstantně zastoupena až do 1800 m nad terénem, poté lineárně klesala do výšky 2100 m, kde se následně ustálila na hodnotě méně než 4 částice v cm^3 .



Obr. 43: Letecké měření 24.6.2007. a- velikostní distribuce početnosti částic aerosolu vyjádřené jako $dN/d\log D_p$ [# / cm^3] během měřícího letu, b- profil letu vyjádřený jako výška nad terénem v metrech.

Letový záznam hodnot inverzního kilometru a hmotnostní koncentrace částic pořízený pomocí zkonstruovaného nephelometru je zachycen na obrázku 44. Během letu bohužel došlo k výpadku zdroje elektrické energie a tak byly zaznamenány pouze první 4 profily. Ze záznamu je patrné, že všechny vertikální profily mají konstantní průběh až na poslední profil P4, ve kterém byly zjištěny výrazně vyšší koncentrace částic dosahující až 40 částic v cm^3 ve výšce přibližně 200 m nad terénem u obou detektorů.



Obr. 44: Letecké měření nephelometru 24.6.2007. a) hodnoty inverzního kilometru naměřené detektorem pro vlnovou délku 460 nm, b) hodnoty hmotnostní koncentrace částic naměřené senzorem pro vlnovou délku 460 nm, c) hodnoty inverzního kilometru naměřené senzorem pro vlnovou délku 560 nm, d) hodnoty hmotnostní koncentrace naměřené pomocí senzoru pro vlnovou délku 560 nm.

3.2 Vliv aerosolu na průchod záření atmosférou, matematický model

3.3 Fotodisociace molekul- model

K vytvoření modelu vertikálních změn fotodisociačních frekvencí $J(\text{O}^1\text{D})$ a $J(\text{NO}_2)$ v MVA byl použit volně dostupný software Libradtran obsahující model transferu slunečního záření UVSPEC. Do tohoto modelu byly vloženy fyzikální parametry z vertikálního letového měření (tabulka 4). Střední hodnoty fyzikálních parametrů pro každých 100 m výšky tvořily gridové pole od nejnižšího možného bodu sestupu letounu až po konec MVA. Nad MVA (mimo dosah letového měření) byla zvolena standardní atmosféra: „middle altitude summer atmosphere“ (Anderson et al. 1986), která popisuje stav letní atmosféry v našich zeměpisných šířkách do výšky 60 km. Data týkající se ozónové vrstvy byla získána ze spektrometru TOMS (Total Ozone Mapping Spectrometer) přímo pro měřenou letovou oblast. Optické vlastnosti zemského povrchu byly charakterizovány stanoveným albedem pro danou oblast (podle Bowker et al. 1985) ve spektrálním rozsahu od 295 - 385 nm. Mieho teorie byla použita k získání hodnot ploch částic (cross sections) pravděpodobného rozptylu $C_{\text{sca}}(m, r, \lambda)$ a extinkce $C_{\text{ext}}(m, r, \lambda)$ světla spolu s parametrem asymetrie fázové funkce. Koeficient rozptylu byl získán z měření pomocí 460 nm senzoru nephelometru. Výsledné hodnoty koeficientu extinkce byly vypočteny z rovnice:

$$\beta_{\text{ext/sca}}(\lambda) = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{dN}{d \log r} C_{\text{ext/sca}}(m, r, \lambda) d \log r,$$

kde $dN/d \log r$ je velikostní distribuce částic (N - počet částic, r - poloměr částic), m je index refrakce minerálního prachu (Paterson *et al.* 1977). Rozptylový koeficient, koeficient extinkce a solární spektrum (VanHoosier *et al.* 1996) byly následně použity v modelu UVSPEC, který pomocí algoritmu DISORT (discrete-ordinate method) (Stammes *et al.* 1988) umožnil vypočítat intenzity 300 a 380 nm záření při průchodu MVA. Řešením rovnice průchodu monochromatického záření atmosférou byly získány intenzity záření $L(\lambda, z, \mu, \varphi)$ v jednotkách $\text{W m}^{-2}\text{sr}^{-1}\text{nm}^{-1}$, závislé nadmořské výšce z ,

cosinu zenitárního úhlu μ a azimutu úhlu φ . Monochromatický světelný tok F v jednotkách $\text{W m}^{-2}\text{nm}^{-1}$ byl výsledkem integrace L přes kulovou plochu:

$$F(\lambda, z) = \int_0^1 \int_{-1}^{2\pi+1} L(\lambda, z, \mu, \varphi) d\mu d\varphi$$

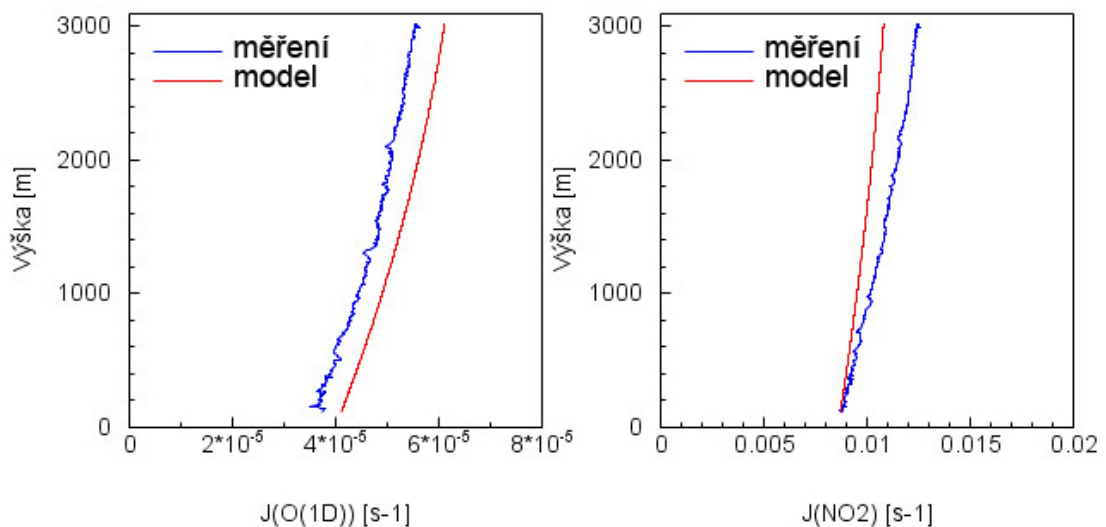
Výsledný světelný tok je radiometrickou kvantitou dopadající energie. Konverze výsledného světelného toku na disociační frekvenci J (fotony $\text{cm}^{-2}\text{nm}^{-1}\text{s}^{-1}$) byla spočítána jako:

$$J_i(z) = \int_0^{\infty} \sigma_i(\lambda, T(z)) \Phi_i(\lambda, T(z)) F(\lambda, z) d\lambda,$$

kde σ_i absorpční průřez molekuly ($\text{O } ^1\text{D}$ nebo NO_2) (absorption cross section) v cm^2 , Φ_i kvantový výtěžek (quantum yield) a T absolutní teplota okolního vzduchu. Hodnoty absorpčního průřezu molekuly a kvantového výtěžku pro fotodisociační frekvence $J(\text{O } ^1\text{D})$ a $J(\text{NO}_2)$ pocházely z dat publikovaných v DeMore *et al.* 1997.

Modelové hodnoty fotodisociačních frekvencí $J(\text{O } ^1\text{D})$ a $J(\text{NO}_2)$ byly následně porovnány se změřenými vertikálními radiačními profily.

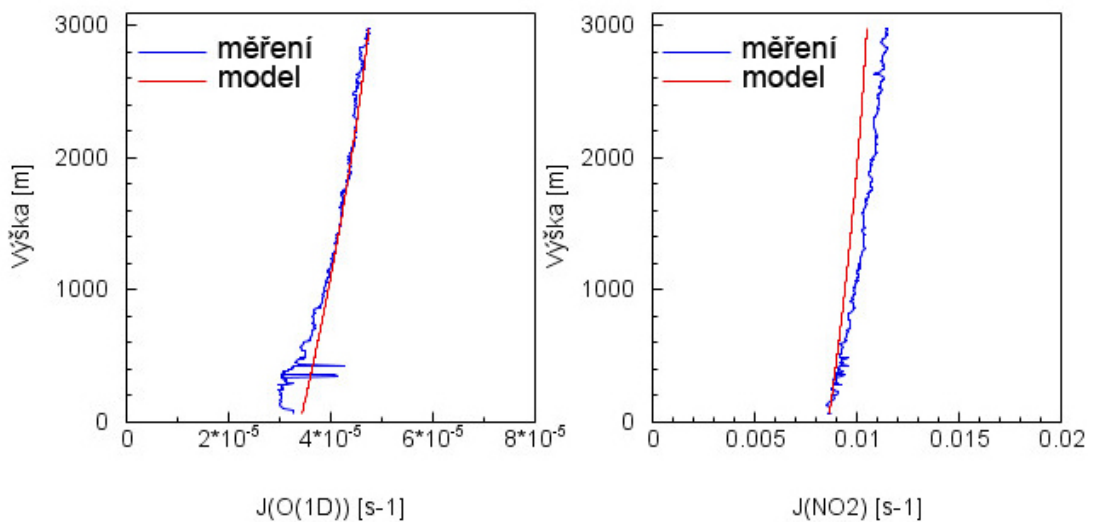
Prvním porovnávaným radiačním profilem byla data fotodisociačních frekvencí $J(\text{O } ^1\text{D})$ a $J(\text{NO}_2)$ naměřená 20.6.2007 sestupným letem 10 km severozápadně od města Achem (P7) za podmínek zvýšené koncentrace aerosolu a troposférického ozónu. Obrázek 45 ukazuje srovnání naměřené a namodelované disociační frekvence $J(\text{O } ^1\text{D})$ a $J(\text{NO}_2)$.



Obr. 45: Srovnání letového měření fotodisociačních frekvencí $J(\text{O } ^1\text{D})$ a $J(\text{NO}_2)$ naměřených 20.6.2007 během sestupného letu (P7) 10 km severozápadně od města Achem v Porýní s modelem UVSPEC-DISORT.

Fotodisociační frekvence molekul $J(\text{O}^1\text{D})$ a $J(\text{NO}_2)$ přesahují naměřené hodnoty o 10 % v celém měřeném profilu (viz obr. 31). Rozdíl mezi modelem a experimentem lze vysvětlit rozdílným indexem lomu aerosolu a použitého v modelu. Naměřené hodnoty fotodisociační frekvence $J(\text{NO}_2)$ se významně shodují pro nejnižší vrstvy MVA. Křivka modelu se však odklání od experimentu pro vyšší vrstvy MVA. Vysoké koncentrace aerosolu v nejnižších vrstvách MVA (do 1200m nad zemí) byly pravděpodobně antropogenního původu, tedy částice více absorbující sluneční záření v oblasti delších vlnových délek, proto nebyl tento trend pozorován u $J(\text{O}^1\text{D})$.

Druhým porovnávaným radiačním profilem byla data fotodisociačních frekvencí naměřená 24.6.2007 rovnoměrným sestupem oblasti Haselbach, reprezentující čistou pozadřovou MVA, měřenou za nízkých koncentrací částic aerosolu a troposférického ozónu. Obrázek 46 ukazuje srovnání naměřené a namodelované disociační frekvence $J(\text{O}^1\text{D})$ a $J(\text{NO}_2)$ pro tuto oblast.



Obr. 46: Srovnání letového měření fotodisociačních frekvencí $J(\text{O}^1\text{D})$ a $J(\text{NO}_2)$ naměřených během sestupného letu (P4) v pozadřové oblasti Haselbach s modelem UVSPEC-DISORT.

Naměřené hodnoty $J(\text{O}^1\text{D})$ jsou téměř identické s namodelovanými hodnotami od začátku sestupného letu až do výšky kolem 600 m nad zemí. MVA obsahuje velice málo aerosolu. Nejistota týkající se přesnosti určení indexu lomu aerosolu je velice malá, proto jsou oba profily téměř totožné. Ve vrstvě MVA pod 600 m jsou měřené hodnoty nižší o 15% než u modelu. V této nejnižší vrstvě se vyskytl aerosol ze západní (průmyslové) části Porýní. Aerosolové částice byly opět antropogenního původu

s větším indexem lomu a větším absorpčním koeficientem, než lze očekávat v referenčních (pozařových) lokalitách. Naměřené disociační frekvence $J(\text{NO}_2)$ jsou téměř identické v nejnižších vrstvách měřeného profilu do 600 m, křivka modelu se odklání od experimentu a v nejvyšších výškách MVA (3000 m) poskytuje pak o 10 % nižší hodnotu fotodisociační frekvence než byla hodnota zjištěná měřením. Tento trend je způsoben pravděpodobně opět mírně odlišným indexem lomu částic použitých v modelu.

5 Závěr

Během letecké kampaně v roce 2007 byly měřeny vertikální profily fotodisociačních frekvencí O ¹D a NO₂ včetně většiny fyzikálních parametrů (teplota, tlak, velikostní distribuce částic aerosolu, relativní vlhkost, zeměpisné souřadnice, výška nad mořem, výška nad terénem a koeficient rozptylu) nad průmyslovou i pozařovou (zemědělskou) krajinou. Naměřené fyzikální parametry byly následně využity modelem radiačního transferu „UVSPEC“, kde byl pomocí algoritmu DISORT vypočítán světelný tok ve vertikálním atmosférickém profilu, který byl následně integrován přes absorpční průměr a kvantový výtěžek jednotlivých molekul. Výsledné hodnoty namodelovaných fotodisociačních frekvencí O v atomární konfiguraci ¹D a NO₂ byly porovnány s dvěma vybranými vertikálními profily naměřených fotodisociačních frekvencí- prvním naměřeným za bezoblačných podmínek se zvýšenou koncentrací atmosférického aerosolu a troposférického ozónu, druhým za bezoblačných podmínek s velice nízkou koncentrací aerosolu a troposférického ozónu. Naměřené a namodelované hodnoty se lišily v obou případech maximálně o 15 %.

V rámci této práce a evropského projektu INTROP byl zkonstruován optický přístroj- Nephelometr na měření rozptylového koeficientu aerosolových částic na dvou vlnových délkách 460 a 560 nm. Přístroj byl zkonstruován s co možná nejmenší hmotností tak, aby mohl být kontinuálně využíván k leteckému monitorování pomocí ultralehkého letounu. První letová měření s tímto zařízením byla provedena během letní monitorovací kampaně v roce 2007 v německém Porýní, zaměřené na komplexní

charakterizaci vertikálního aerosolového sloupce. Hodnoty rozptylového koeficientu byly použity v modelu fotodisociačních frekvencí O v atomární konfiguraci ^1D a NO_2 .