



SUPPLERENDE MÅLINGER TIL LUFTOVERVÅGNING UNDER NOVANA – BENZEN OG PAH

Teknisk rapport fra DCE – Nationalt Center for Miljø og Energi

nr. 3

2011



AARHUS
UNIVERSITET
DCE – NATIONALT CENTER
FOR MILJØ OG ENERGI

[Tom side]

SUPPLERENDE MÅLINGER TIL LUFTOVERVÅGNING UNDER NOVANA – BENZEN OG PAH

Teknisk rapport fra DCE – Nationalt Center for Miljø og Energi

nr. 3

2011

Thomas Ellermann
Jacob Klenø Nøjgaard
Rosanna Bossi

Aarhus Universitet, Institut for Miljøvidenskab



AARHUS
UNIVERSITET
DCE – NATIONALT CENTER
FOR MILJØ OG ENERGI

Datablad

Serietitel og nummer:	Teknisk rapport fra Nationalt Center for Miljø og Energi nr. 3
Titel:	Supplerende målinger til luftovervågning under NOVANA - benzen og PAH
Forfattere:	Thomas Ellermann, Jacob Klenø Nøjgaard & Rossana Bossi
Institution:	Institut for Miljøvidenskab
Udgiver:	Nationalt Center for Miljø og Energi © Aarhus Universitet
URL:	http://www.dmu.au.dk
Udgivelsesår:	31. oktober 2011
Faglig kommentering:	Helge Rørdam Olesen
Finansiell støtte:	Miljøstyrelsen
Bedes citeret:	Ellermann, T., Nøjgaard, J.K. & Bossi, R. 2011. Supplerende målinger til luftovervågning under NOVANA - benzen og PAH. Nationalt Center for Miljø og Energi, Aarhus Universitet. 42 s. - Videnskabelig rapport fra Nationalt Center for Miljø og Energi nr. 3. http://www2.dmu.dk/Pub/TR3.pdf
	Gengivelse tilladt med tydelig kildeangivelse
Sammenfatning:	Rapporten præsenterer resultater fra projekt, som AU har gennemført for Miljøstyrelsen. Formålet med projektet var at gennemføre en række målekampanjer for på den måde bedre at kunne vurdere overvågningsbehov for PAH og benzen i relation til EU's luftkvalitetsdirektiver. Resultaterne viste at middelkoncentrationerne af benzen ligger på omtrent samme niveau i Danmarks fire største byer og at koncentrationerne ligger såvel under grænseværdien ($5 \mu\text{g}/\text{m}^3$), som under den nedre vurderingstærskel ($2 \mu\text{g}/\text{m}^3$). Rapporten angiver en metode til objektiv estimering af benzenkoncentrationen ud fra målinger af CO. Metoden vil kunne anvendes til, at opfylde overvågningsbehov for benzen i de zoner, hvor der ikke foretages målinger af benzen. Målinger af PAH, navnlig benzo[a]pyren, er blevet foretaget gennem 12 måneder i perioden 2010-2011 i et brændeovnsområde i Jyllinge. Koncentrationerne af benzo[a]pyren i Jyllinge er næsten en faktor tre højere end på H.C. Andersens Boulevard. Koncentrationerne af benzo[a]pyren i Jyllinge ligger på $0,6 \text{ ng}/\text{m}^3$, hvilket svarer til den øvre vurderingstærskel ($0,6 \text{ ng}/\text{m}^3$) og ligger 40% under målværdien ($1 \text{ ng}/\text{m}^3$). Der er på basis af dette behov for at revurdere overvågningen af PAH i delprogram for luft under NOVANA. Målinger af PM_{10} viste at niveauerne i Jyllinge, Lille Valby/Risø og H.C. Ørsteds Instituttet alle ligger på et niveau omkring $20\text{-}22 \mu\text{g}/\text{m}^3$.
Emneord:	Luftkvalitet, overvågning, EU direktiver, PAH, benzo[a]pyren, benzen, PM_{10} , brændeovne, sæsonvariation.
Layout:	Majbritt Ulrich
Omslagsfoto:	Thomas Ellermann
ISBN:	978-87-92825-06-3
ISSN (elektronisk):	2244-999X
Sideantal:	42
Internetversion:	Rapporten er tilgængelig i elektronisk format (pdf) på Nationalt Center for Miljø og Energi, Aarhus Universitets hjemmeside. http://www2.dmu.dk/Pub/TR3.pdf

Indhold

Sammenfatning 5

Forord 7

1 Indledning 8

2 Krav til overvågning i EU direktiverne 10

3 Metoder 15

3.1 Benzen 15

3.2 PAH, benzo[a]pyren og PM₁₀ 21

4 Resultater 24

4.1 Benzen 24

4.2 Objektiv estimering for benzen 28

4.3 PAH og PM₁₀ 30

5 Konklusion 38

5.1 Benzen 38

5.2 PAH 39

5.3 PM₁₀ 40

6 Litteratur 41

Sammenfatning

Nærværende rapport præsenterer resultaterne fra et mindre projekt, som Aarhus Universitet (AU) i 2010-2011 har udført for Miljøstyrelsen. Målet med projekt var at gennemføre en række målekampanjer for på denne måde at etablere basis for en bedre vurdering af behov for måling af benzen og polycykliske aromatiske hydrocarboner (PAH) i relation til EU-direktiverne (2004/107/EF, 2008/50/EF).

Benzen

I perioden fra september-november 2010 er der gennemført en målekampagne på gademålestationerne i Aarhus, Odense og Aalborg med bestemmelse af luftkoncentrationer (ugemiddelværdier) af benzen, toluen, ethylbenzen og xylener (BTEX).

Resultaterne viser, at de estimerede årsmiddelværdier for benzen i 2010 ligger i intervallet fra 0,9-1,4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. I København, Odense og Aalborg ligger årsmiddelværdierne på samme niveau (1,3-1,4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$), mens koncentrationen af benzen i Aarhus (0,9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) ligger ca. 33 % under dette niveau. Benzen på gadeniveau stammer primært fra trafik. Årsagen til den lavere koncentration i Aarhus er derfor formentligt mindre trafikintensitet ved gademålestationen.

Årsmiddelværdierne for benzen lå i 2010 i alle fire byer under EU's (Luftkvalitetsdirektivet, 2008/50/EC) nedre vurderingstærskel på 2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. På basis af den målte udviklingstendens for benzen i København vurderes, at den nedre vurderingstærskel ikke har været overskredet mere end tre enkelte år ud af de seneste fem år. Det vurderes derfor, at den nedre vurderingstærskel ikke er overskredet. I henhold til EU-direktivet er det derfor tilstrækkeligt at anvende objektiv estimering af årsmiddelværdierne for benzen i alle tre luftkvalitetszoner i Danmark.

Baseret på en relativt god tidslig og geografisk korrelation mellem middelkoncentrationer af benzen og CO er der opstillet en simpel empirisk model til objektiv estimering af benzenkoncentrationen i Zone 2 (Aarhus) og 3 (Øvrige DK herunder Odense og Aalborg), hvor der måles CO og ikke benzen. Ved at kombinere målingerne af CO og benzen samt ved at anvende objektiv estimering vurderer AU, at der kan opnås en hensigtsmæssig opfyldelse af kravene i EU's luftkvalitetsdirektiv (2008/50/EF) i alle tre luftkvalitetszoner.

PAH

I perioden 26. april 2010 – 2. maj 2011 har der været opsamlet 24 timers filterprøver til bestemmelse af partikelbundne PAH i Nordmarken, Jyllinge. Lokaliteten er valgt ud fra en forventning om et mærkbart lokalt bidrag fra brændefyring. Målingerne blev sammenlignet med målinger fra en trafikeret gade, H.C. Andersens Boulevard (HCAB), København under Delprogram for luft under NOVANA (Ellermann et al., 2011).

Generelt blev der fundet mindre afvigelser mellem Jyllinge og HCAB uden for fyringssæsonen, mens markante forskelle var åbenlyse i fyringssæsonen, særligt fra oktober til februar, hvor der blev målt ben-

zo[a]pyren i koncentrationer op til 12,5 ng/m³ som døgnmiddel. På begge lokaliteter var koncentrationerne højest i fyringssæsonen. De øvrige seks PAH nævnt i direktivet (2004/107/EF) var, som for benzo[a]pyren, 2-3 gange forhøjet i Jyllinge ift. HCAB.

Årsmiddelkoncentrationerne af benzo[a]pyren i Jyllinge og HCAB blev målt til 0,61 og 0,21 ng/m³ i perioden 1. maj 2010 – 30. april 2011. Årsmiddelkoncentrationen i Jyllinge er derfor den samme som den nedre vurderingstærskel (0,6 ng/m³) og 40 % mindre end målværdien (1 ng/m³; 2004/107/EF).

På basis af målingerne fra Jyllinge vurderes det, at det er mest sandsynligt, at målværdien for benzo[a]pyren ikke overskrides i andre tilsvarende områder med store udledninger fra brændeovne.

Det er imidlertid vanskeligere at vurdere, om andre tilsvarende områder med store udledninger fra brændeovne vil ligge over eller under den øvre vurderingstærskel. Denne vurdering har betydning for det nødvendige omfang af overvågningen. Såfremt andre tilsvarende områder med store udledninger fra brændeovne ligger over koncentrationerne målt i Jyllinge vil den øvre vurderingstærskel overskrides, og der vil samlet set være behov for syv målestationer. Hvis koncentrationerne ligger under den øvre vurderingstærskel vil der være behov for fire målestationer. I det nuværende overvågningsprogram indgår kun en målestation.

Ovenstående vurdering af antal af målestationer er baseret på, at faste målinger benyttes som den eneste metode til at opfylde kravene til overvågningen. Direktivet (2004/107/EF) rummer imidlertid mulighed for også at anvende modeller og indikative metoder. Der er derfor mulighed for at foretage en vurdering af, i hvilket omfang det vil være muligt at udskifte en del af de omkostningstunge målinger med disse relativt set billigere metoder. Endvidere er der mulighed for at se på om målingerne ved nogle af de faste målestationer kan udføres med et mindre antal prøver for hermed at mindske omkostningerne. Endelig er det en mulighed at overveje om zoneinddelingen for benzo[a]pyren kan ændres.

PM₁₀

Målingerne af PM₁₀ ved Jyllinge viste, at PM₁₀ lå på en årsmiddel på 20 µg/m³, hvilket er samme niveau som målt ved Lille Valby/Risø og på H.C. Ørstedts Instituttet (HCØ). Niveauet for PM₁₀ ligger langt under grænseværdierne. Det kan derfor konkluderes, at det i overvejende grad er langtransport af partikler, som bestemmer niveauet af PM₁₀ i en by som Jyllinge med stor anvendelse af brændeovne, og at PM₁₀-niveauet ikke påvirkes markant af bidraget fra brændeovne, hvilket er i overensstemmelse med resultaterne fra tidligere undersøgelser (Olesen et al., 2010).

Forord

Nærværende projekt er udført af Nationalt Center for Miljø og Energi, Aarhus Universitet i 2010 og 2011 for Miljøstyrelsen. En ændret organisationsstruktur ved Aarhus Universitet indebærer, at Nationalt Center for Miljø og Energi fra den 1. juli 2011 er trådt i stedet for det hidtidige Danmarks Miljøundersøgelser som indgangen for myndigheder, erhverv og offentligheden til Aarhus Universitets faglige miljøer inden for natur, miljø og energi.

Værebros Vandværk A. M. B. A., Jyllinge ved formand Leif Schmidt Petersen takkes for velvilligt at stille lokalitet til rådighed for udførelse af prøveopsamlingerne i forbindelse med målekampagnen for PAH.

1 Indledning

Benzen og polycykliske aromatiske hydrocarboner (PAH) er sundhedsskadelige luftforureningkomponenter, som udledes i forbindelse med forbrændingsprocesser. Navnlig trafik spiller en stor rolle for luftkvaliteten i relation til benzen, mens brændeovne er en af de væsentligste kilder til PAH.

På den baggrund er EU-medlemslandene via EU-direktiv 2008/50/EF og det 4. datterdirektiv 2004/107/EF forpligtet til at overvåge luftkvaliteten med hensyn til benzen og PAH i hele deres territorium. Nationalt Center for Miljø og Energi, Aarhus Universitet (AU) foretager den danske overvågning som en del af delprogram for luft under NOVANA. Her indgår kontinuerte målinger af luftkoncentrationen af benzen på to gademålestationer i København (Jagtvej og H.C. Andersens Boulevard). PAH måles på en gademålestation i København (H.C. Andersens Boulevard). For PAH måles i henhold til direktivet (EU 2004/107/EF) kun koncentrationerne af den partikulære fraktion. Målingerne af PAH omfatter seks udvalgte PAH, hvoraf benzo[a]pyren er den væsentligste, idet denne anvendes som markør for kræftisikoen fra PAH (EU 2004/107/EF).

Delprogrammet for luft under NOVANA blev revideret i løbet af 2009 og 2010. I den forbindelse blev de nationale behov for måling af benzen og PAH vurderet, herunder vurdering af de internationale forpligtelser til måling af benzen og PAH.

Via gennemgang af EU's luftkvalitetsdirektiv (2008/50/EF) og det 4. datterdirektiv (2004/107/EF) blev det klarlagt, at der i luftdelprogrammet gennemføres målinger der dækker Zone 1 (København), mens der ikke gennemføres målinger i de to øvrige overvågningszoner i Danmark (Figur 1.1) (se Kapitel 2 for flere detaljer om zonerne). Der er derfor behov for at undersøge, i hvor høj grad EU-direktiverne giver forpligtelse til at foretage målinger i Zone 2 (Aarhus) og Zone 3 (Øvrige Danmark).

Dette er baggrunden for nærværende projekt, som har følgende formål:

Benzen

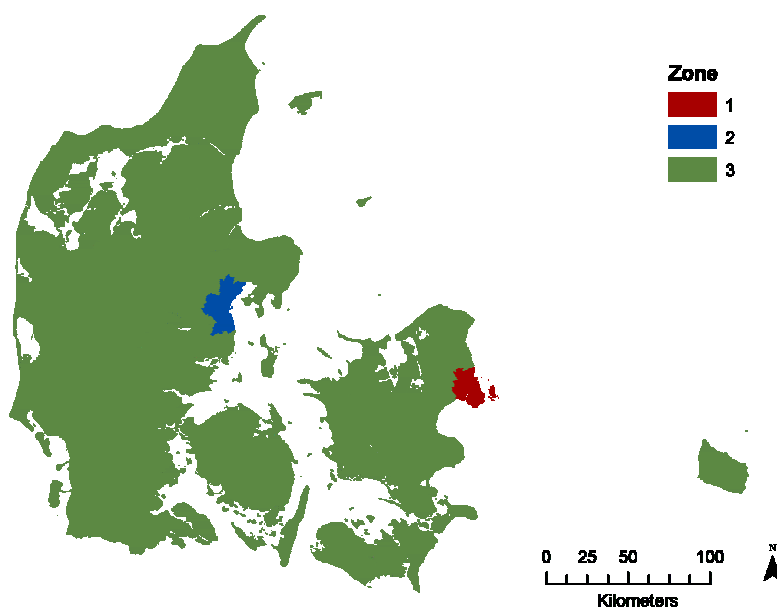
- At gennemføre en tre måneders målekampagne med supplerende målinger af benzen ved gademålestationerne i Aarhus (Zone 2) samt Odense og Aalborg (Zone 3)
- At estimere årsmiddelværdier for benzen for de tre byer på basis af en sammenligning af resultaterne fra de tre måneders målinger med resultater fra de rutinemæssige overvågningsmålinger i København.
- At vurdere overvågningsbehovet for benzen i Aarhus (Zone 2) samt Odense og Aalborg (Zone 3) på basis af bestemmelserne i EU-direktiv.

PAH

- At gennemføre et års kontinuerle målinger af PAH i et område med forventede høje udledninger af PAH fra ikke-trafik-kilder, dvs. et område med store udledninger fra brændeovne. Samtidigt hermed måles PM₁₀ (massen af partikler med diameter under 10 µm), for blandt andet at vurdere sammenhæng mellem forureningen med PAH og PM₁₀.
- At vurdere det samlede overvågningsbehov for PAH i hele Danmark.

Projektet, der er finansieret af Miljøstyrelsen (MST), blev begyndt i foråret 2010. Målekampagnen for benzen i Aarhus, Odense og Aalborg blev gennemført i september-oktober 2010 (uge 35-47). Målingerne af PAH og PM₁₀ blev gennemført fra den 26. april 2010 til den 2. maj 2011 i et brændeovns-område i Jyllinge.

Rapporten indledes med en kort gennemgang af luftkvalitetsdirektivernes regler for overvågning af benzen og PAH. Herefter præsenteres målestationernes placering samt opsamlings- og analysemetoder. Endelig præsenteres resultaterne, og der afsluttes med AU's vurdering af det fremtidige overvågningsbehov for benzen og PAH vurderet ud fra kravene i henholdsvis EU's luftkvalitetsdirektiv (2008/50/EF) og det 4. datterdirektiv (2004/107/EF).



Figur 1.1. Danmark er i henhold til EU's luftkvalitetsdirektiver inddelt i tre overvågningszoner. De tre danske luftkvalitetszoner er: Zone 1 - København, Zone 2 - Aarhus og Zone 3 - Det øvrige Danmark. København og Aarhus er defineret som agglomerationer.

2 Krav til overvågning i EU direktiverne

I henhold til EU's luftkvalitetsdirektiv 2008/50/EF og det 4. datterdirektiv 2004/107/EF skal medlemslandene inddele deres territorium i en række overvågningszoner. Der er opstillet en række kriterier herfor, hvoraf et af de vigtigste er at større byer (kaldet agglomerationer) skal have deres egen zone. MST har i samråd med AU inddelt Danmark i tre overvågningszoner (Figur 1.1):

	Befolkningstal
Zone 1: København + omkringliggende kommuner	950.000
Zone 2: Aarhus. Befolkningstal	300.000
Zone 3: Det øvrige Danmark	4.200.000

Medlemslandene skal vurdere luftkvaliteten for benzen og PAH i alle disse zoner ved hjælp af målinger og/eller modelberegninger.

Omfanget af overvågningen i de enkelte luftkvalitetszoner er fastlagt på basis af luftkvaliteten for den specifikke komponent, en øvre og nedre vurderingstærskel og befolkningsantal i zonerne. For benzen gælder følgende tærskler:

	Benzen
Grænseværdi gældende fra 1. januar 2010	5 µg/m ³
Øvre vurderingstærskel	3,5 µg/m ³
Nedre vurderingstærskel	2 µg/m ³

For PAH gælder følgende tærskler, idet benzo[a]pyren anvendes, som markør for kræfttrisikoen fra PAH:

	Benzo[a]pyren
Målværdi gældende fra 31. december 2012	1 ng/m ³
Øvre vurderingstærskel	0,6 ng/m ³
Nedre vurderingstærskel	0,4 ng/m ³

Grænse- og målværdi angiver et niveau, der er fastsat med henblik på at undgå, forhindre eller nedsætte de skadelige virkninger på menneskers sundhed og/eller miljøet som helhed. Grænseværdien skal nås indenfor den givne frist, som ikke må overskrides, når det er nået. Målværdien skal derimod blot nås så vidt muligt indenfor den givne frist.

I zoner, hvor årsmiddelværdien er over den øvre vurderingstærskel, skal der anvendes faste målinger for at vurdere luftkvaliteten. De faste målinger kan suppleres med modelberegninger og/eller indikative målinger.

I zoner, hvor årsmiddelværdien for benzen ligger under den øvre vurderingstærskel, kan der anvendes en kombination af faste målinger og modelberegninger og/eller indikative målinger.

I zoner, hvor årsmiddelværdien for benzen ligger under den nedre vurderingstærskel, er det tilstrækkeligt at anvende modelberegninger eller teknikker til objektiv estimering af luftkvaliteten.

Vurdering af luftkvaliteten i zonerne i relation til vurderingstærsklerne skal foretages på basis af de foregående fem års målinger. En vurderingstærskel anses for overskredet, hvis den er blevet overskredet mindst tre enkelte år ud af de forudgående fem år.

Hvis der ikke eksisterer et så omfattende datagrundlag, kan medlemslandene kombinere målekampagner af kortere varighed i den periode af året og på de steder, der er mest typiske for de højeste forureningsniveauer, med de resultater, der er opnået med oplysninger fra emissionsfortegnelser og modelberegninger.

I de tilfælde, hvor faste målinger er den eneste kilde til vurdering af luftkvaliteten fastlægges antallet af målesteder på basis af befolkningsantallet samt vurdering af luftkvaliteten i relation til vurderingstærsklerne. Antallet af målesteder er angivet i Tabel 2.1 og 2.2 for henholdsvis benzen og benzo[a]pyren.

Tabel 2.1. Mindste antal af målesteder for benzen er i EU's luftkvalitetsdirektiv (2008/50/EF) fastlagt ud fra befolkningsantallet i de enkelte zoner samt luftkvaliteten i relation til vurderingstærsklerne.

Befolkningen i det bymæssige område eller zonen (i tusinder)	Minimum antal målesteder, hvis de maksimale koncentrationer overskrider den øvre vurderingstærskel	Minimum antal målesteder, hvis de maksimale koncentrationer ligger mellem den øvre og nedre vurderingstærskel
0 - 249	1	1
250-499	2	1
500 - 749	2	1
750 - 999	3	1
1.000 - 1.499	4	2
1.500 - 1.999	5	2
2.000 - 2.749	6	3
2.750 - 3.749	7	3
3.750 - 4.749	8	3
4.750 - 5.999	9	4
≥ 6.000	10	4

Tabel 2.2. Mindste antal af målesteder for benzo[a]pyren er i EU's luftkvalitetsdirektiv (2008/50/EF) fastlagt ud fra befolkningsantallet i de enkelte zoner samt luftkvaliteten i relation til vurderingstærsklerne.

Befolkningen i det bymæssige område eller zonen (i tusinder)	Minimum antal målesteder, hvis de maksimale koncentrationer overskrider den øvre vurderingstærskel ¹	Minimum antal målesteder, hvis de maksimale koncentrationer ligger mellem den øvre og nedre vurderingstærskel
0 - 749	1	1
750 - 1.999	2	1
2.000 - 3.749	3	1
3.750 - 4.749	4	2
4.750 - 5.999	5	2
≥ 6.000	5	2

¹ Skal omfatte mindst en baggrundsstation i byer og for benz[a]pyren også en trafikorienteret station, forudsat at antallet af prøvetagningssteder ikke derved forøges.

Det mindste antal faste målesteder angivet i Tabel 2.2 gælder specifikt for måling af benzo[a]pyren. Ifølge det 4. datterdirektiv (2004/107EF) skal der udover disse faste målinger foretages overvågning af andre relevante PAH på et mindre antal målesteder med henblik på at vurdere bidraget i luften fra benzo[a]pyren. Disse forbindelser skal mindst omfatte benzo[a]anthracen, benzo[b]fluoranthren, benzo[j]fluoranthren, ben-

zo[k]fluoranthren, indeno[1,2,3-cd]pyren og dibenzo[a,h]anthracen. Overvågningsstederne for disse skal placeres sammen med prøveudtagningsstederne for benzo[a]pyren og skal vælges således, at det er muligt at påvise geografiske variationer og langtidstendenser.

Det 4. datterdirektiv angiver endvidere at der bør foretages indikativ måling af indholdet af PAH på dampform samt deposition af PAH på mindst et målested per 100.000 km². Dog mindst et per medlemsstat. Denne opgave kan eventuelt opfyldes via samarbejde med medlemsstater, der støder op til hinanden.

I de tilfælde, hvor der anvendes supplerende modelberegninger og/eller indikative målinger til vurdering af luftkvaliteten, kan antallet af faste målinger reduceres. For benzen angives at antallet kan reduceres til 50 %, mens der ikke angives tilsvarende for benzo[a]pyren. For begge stoffer er det en forudsætning, at medlemslandene kan dokumentere, at der på trods af reduktionen i antallet af faste målesteder kan opnås en bestemmelse af luftkvaliteten, der opfylder datakvalitetsmålsætningerne. Disse er angivet i Tabel 2.3 og 2.4.

Udover de faste målinger angivet i Tabel 2.1 og 2.2 stiller direktiverne krav om, at der skal foretages målinger af benzen og PAH med henblik på vurdering af forurening i nærheden af større punktkilder. For punktkilder fastlægges antallet af faste målinger under hensyntagen til emissionstætheder, de sandsynlige spredningsmønstre og befolkningens potentielle udsættelse. Der er ikke foretaget revurdering af dette overvågningsbehov for benzen og benzo[a]pyren i forbindelse med dette projekt.

Tabel 2.3. Datakvalitetsmålsætninger angivet i EU's luftkvalitetsdirektiv (2008/50/EF).

	Benzen
<i>Faste målinger</i> ¹	
Usikkerhed	25 %
Mindste dataregistrering	90 %
Mindste tidsdækning:	
- bybaggrund og trafikerede områder	35 % ²
- industriområder	90 %
<i>Indikative målinger</i>	
Usikkerhed	30 %
Mindste dataregistrering	90 %
Mindste tidsdækning:	14 % ³
<i>Modelberegningusikkerhed</i>	
Årligt gennemsnit	50 %
<i>Objektiv estimering</i>	
Usikkerhed	100 %

¹ Medlemsstaterne kan gøre brug af stikprøvemåling i stedet for kontinuerlige målinger, hvis de over for Kommissionen kan godtgøre, at usikkerheden, inklusive den usikkerhed, der skyldes stikprøvemålingsmetoden, opfylder kvalitetsmålet på 25 %, og at tidsdækningen er større end mindstetidsdækningen for vejledende målinger. Prøvetagninger, der foretages i form af stikprøver, skal være jævnt fordelt over hele året for at undgå skævvridninger af resultaterne.
Den usikkerhed, der skyldes stikprøvemåling kan bestemmes ved hjælp af proceduren i ISO11222 (2002) "Air Quality – Determination of the uncertainty of the Time Average of Air Quality Measurements".

² Fordelt over året for at være repræsentativt for forskellige klima- og trafikforhold.

³ Måling en vilkårlig dag om ugen jævnt fordelt over et år, eller 8 uger jævnt fordelt over et år.

Tabel 2.4. Datakvalitetsmålsætninger angivet i EU's luftkvalitetsdirektiv (2004/107/EF). Datakvalitetsmålsætningerne er i direktivet angivet som vejledning til kvalitetssikringen.

	Benzo[a]pyren	Andre polycykliske kulbrinter end benzo[a]pyren	Samlet deposition
<i>Usikkerhed:</i>			
- Faste og indikative målinger	50 %	50 %	70 %
- Modellering	60 %	60 %	60 %
<i>Mindste dataregistrering</i>	90 %	90 %	90 %
<i>Mindste tidsdækning:</i>			
- Faste målinger	33 %		
- Indikative målinger ¹	14%	14 %	33 %

I forbindelse med datakvalitetsmålsætningerne angives endvidere følgende:

- Kravene til mindste dataregistrering og tidsdækning omfatter ikke datatab, der skyldes regelmæssig kalibrering eller normal vedligeholdelse af apparaturet. Dette gælder generelt for alle overvågede komponenter.
- Til måling af benzo[a]pyren og andre polycykliske aromatiske kulbrinter kræves der prøveudtagning over et helt døgn. Individuelle prøver, der er udtaget over en periode på op til en måned kan med omhu kombineres og analyseres, som en sammensat prøve, hvis metoden sikrer, at prøverne er stabile for den pågældende periode.
- De tre congener benzo[b]fluoranthren, benzo[j]fluoranthren og benzo[k]fluoranthren kan være vanskelige at opløse analytisk og kan derfor indberettes samlet.

I direktiverne er angivet retningslinjer for, hvordan usikkerhederne skal beregnes.

EU's luftkvalitetsdirektiv 2008/50/EF angiver, at prøvetagning og analyser for benzen skal foretages med metoden beskrevet i EN 144662:2005 (del 1, 2, og 3) eller en metode der er i overensstemmelse hermed.

EU's luftkvalitetsdirektiv 2004/107/EF angiver, at referencemetoden for måling af koncentrationer af benzo[a]pyren er under standardisering i CEN. Metoden vil blive baseret på manuel PM₁₀-prøvetagning svarende til EN12341. Indtil standard foreligger, kan medlemsstaterne benytte nationale standardmetoder eller ISO-metoder (fx ISO-standard 12884). Medlemsstaterne kan også benytte andre metoder, som de kan påvise giver resultater, som svarer til ovenfor nævnte.

Direktiverne angiver ingen retningslinjer for, hvilke metoder der kan anvendes til modelberegninger og objektiv estimering. Luftkvalitetsdirektivet (2008/50/EF) uddyber dog, hvordan usikkerheden for modelberegninger og den objektive estimering skal forstås:

Usikkerheden i forbindelse med modelberegning defineres som de målte og beregnede koncentrationsniveauer maksimale afvigelse for de 90 % af de individuelle overvågningspunkter i den pågældende periode i forhold til grænseværdien (eller målværdien ved ozon) uden hensyn til tidsforløb. Usikkerheden i for-

bindelse med modelberegning fortolkes som gældende i forbindelse med den relevante grænseværdi (eller målværdi ved ozon). De faste målinger, der skal vælges til sammenligning med resultaterne af modelberegningen, skal være repræsentative for den målestok, der anvendes ved modelberegningen.

Usikkerheden i forbindelse med objektiv estimering defineres som de målte og beregnede koncentrationsniveaues maksimale afvigelse i den pågældende periode i forhold til grænseværdien (eller målværdien ved ozon) uden hensyn til tidsforløb (EU 2008/50/EF).

3 Metoder

3.1 Benzen

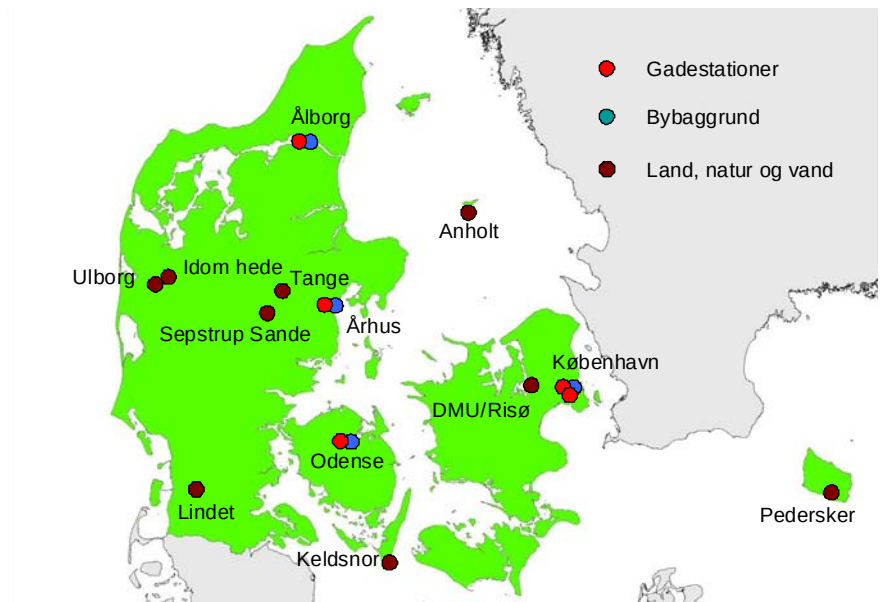
3.1.1 Målestationerne

Opsamling af benzen er i dette projekt blev foretaget i september-november 2010 (uge 35 – uge 47). Opsamlingerne blev foretaget ved de tre gade målestationer i Aarhus (Banegårdsgade), Odense (Albanigade) og Aalborg (Vesterbro). Parallelt hermed blev der i forbindelse med luftkvalitetsovervågningen under NOVANA udført rutinemålinger af benzen ved gademålestationerne i København (H.C. Andersens Boulevard, Jagtvej) (Ellermann et al., 2011) med samme metode. Målestationernes placering er vist på Figur 3.1 til 3.6.

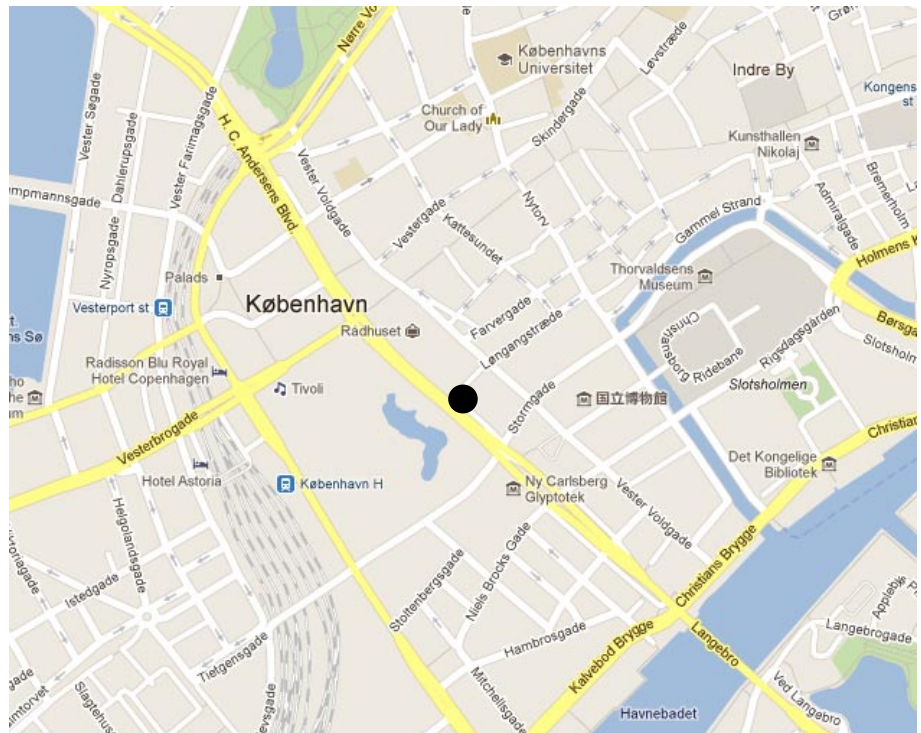
Trafik er den væsentligste kilde til benzen i gaderum. Trafikken ved gademålestationerne er angivet i Tabel 3.1. Udover trafikken, så spiller de fysiske forhold for gaden (bredde, bebyggelse, orientering) også en vigtig rolle for sammenhæng mellem emissionen og den resulterende luftkoncentration. Endvidere er det ikke kun trafikintensiteten i selve den gade, hvor målestationer er placeret, som spiller en rolle. Det gør sig navnlig gældende i Aarhus, hvor Banegårdsgade er en gade med relativt lav trafikintensitet. Banegårdsgade ligger imidlertid kun 70 m fra Frederiksberg Allé, hvor trafikintensiteten er høj.

Tabel 3.1. Trafikintensitet ved gademålestationerne. Data er fra trafiktællinger udført af de pågældende kommuner og repræsenterer de bedste data AU har for 2010.

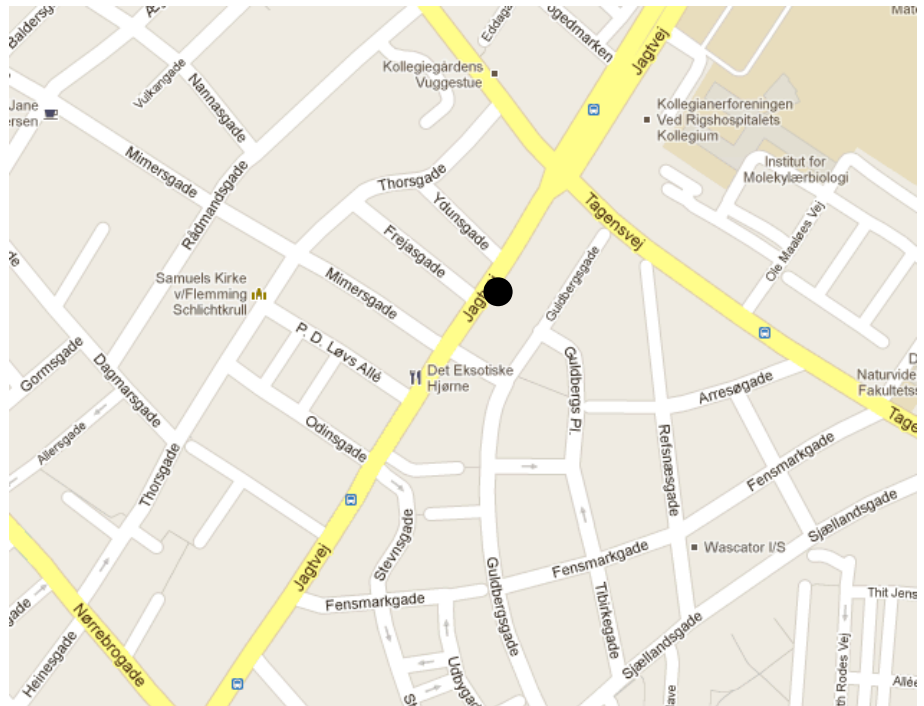
Målestation	Trafikintensitet
	Antal køretøjer per dag
København, H.C. Andersens Boulevard	60.000
København, Jagtvej	29.000
Aarhus, Banegårdsgade	6.600
Odense, Albanigade	21.000
Aalborg, Vesterbro	28.000



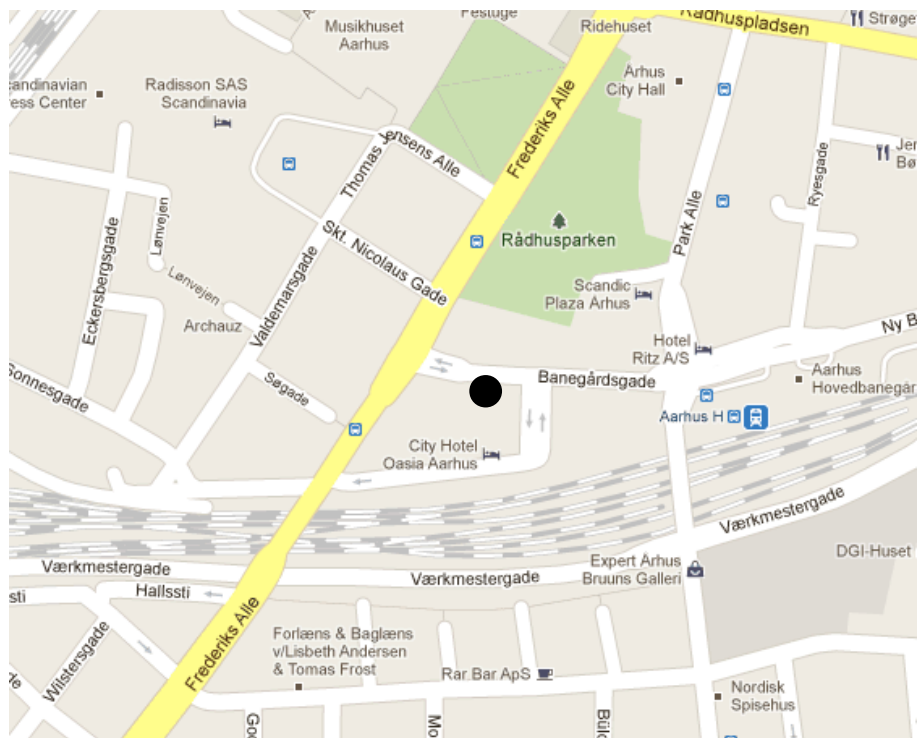
Figur 3.1. Målestationer i delprogram for luft under NOVANA. BTEX måles på gadestationerne i København, Odense, Aarhus og Aalborg.



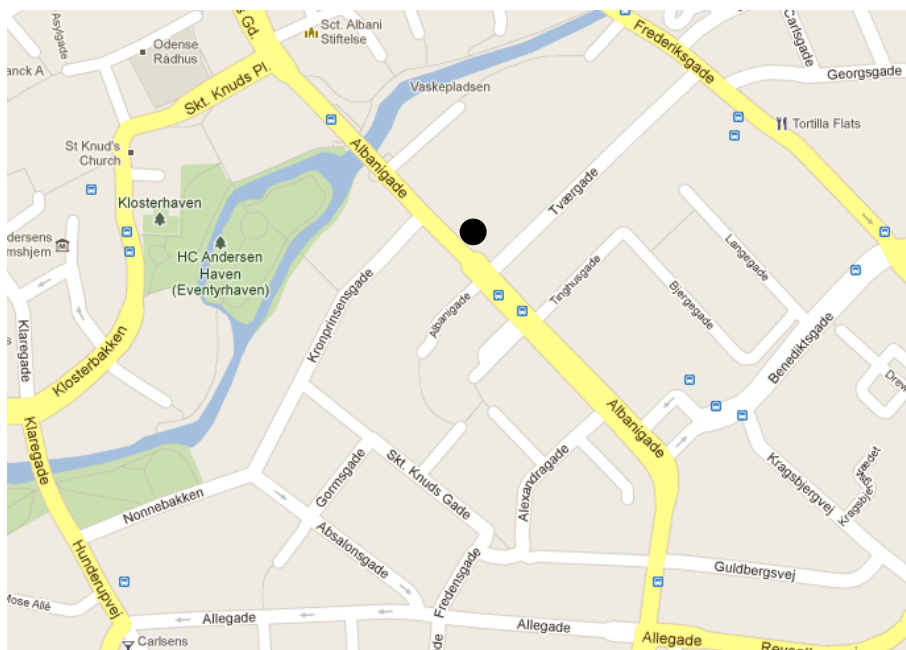
Figur 3.2. Den sorte plet angiver placeringen af målestationen på H.C. Andersens Boulevard, København. Kort Google Maps.



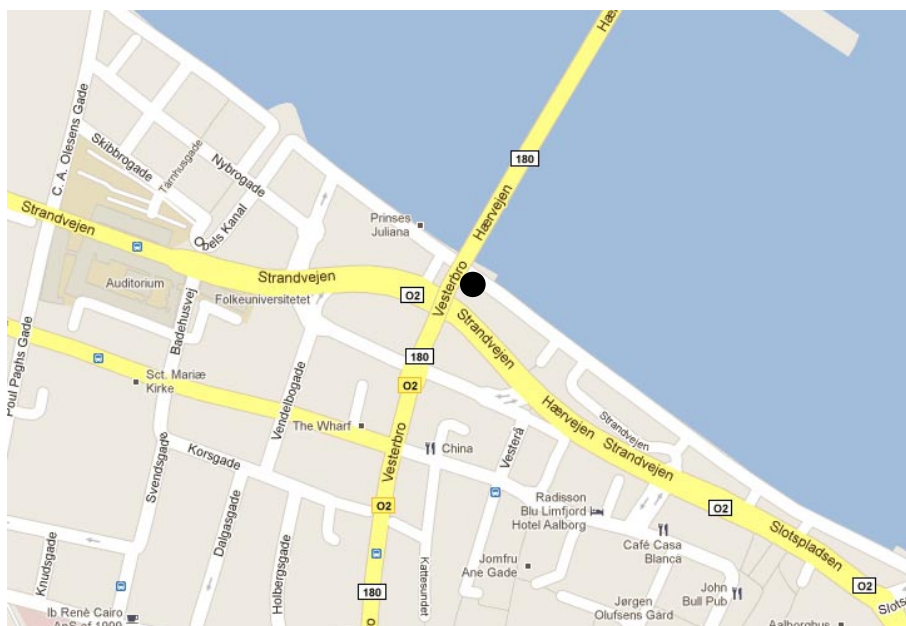
Figur 3.3. Den sorte plet angiver placeringen af målestationen på Jagtvej, København. Kort Google Maps.



Figur 3.4. Den sorte plet angiver placeringen af målestationen på Banegårdsgade, Aarhus. Kort Google Maps.



Figur 3.5. Den sorte plet angiver placeringen af målestationen på Albanigade, Odense. Kort Google Maps.



Figur 3.6. Den sorte plet angiver placeringen af målestationen på Vesterbro, Aalborg. Kort Google Maps.

3.1.2 Opsamlingsmetode

Opsamling af benzen og andre flygtige aromatiske forbindelser blev foretaget med passiv opsamling på Radiellorør (Skov et al., 2001a og referencer heri). For at sikre en god reproducerbarhed på prøveopsamlingen blev der opsamlet parallelt på tre Radiellorør per lokalitet per opsamlingsperiode. I alt 13 opsamlinger af en uges varighed blev gennemført på hver af de tre målestationer.

De tre Radiellorør blev opsat ved hjælp af et ca. 1,5 m. højt jernstativ monteret med en omvendt hvid spand foroven (Figur 3.7). Jernstativet var placeret direkte ovenpå taget af de tre målestationer. De tre Radiello-

rør var monteret med skruebeslag inde under den omvendte spand (Figur 3.8). Den omvendte spand sikrede, at rørene var beskyttet mod regn og kraftig vind samtidig med, at rørene var frit eksponeret for den omgivende luft.

Prøveopsamlingerne foretaget i forbindelse med delprogram for luft under NOVANA blev foretaget på tilsvarende vis. Dog blev der anvendt et andet stativ til montering af opsamlingsrørene, hvilket ikke påvirker selve opsamlingsresultatet.



Figur 3.7. Stativ til montering af passive opsamlere (Radiellorør) til måling af luftens indhold af BTEX. Stativet er placeret på taget af målestationerne. Her vist for Vesterbro i Aalborg.



Figur 3.8. De tre passive opsamlere (Radiellorør) er placeret inde under bunden af den hvide plastikspand. De er derfor beskyttet mod regn og kraftig vind samtidigt med, at de er frit eksponeret for den omgivende luft.

3.1.3 Analysemetode

Flygtige organiske stoffer, herunder benzen og andre aromatiske forbindelser, opsamles passivt på Radiellorør over 7 dage. Efterfølgende desorberes de med karbondisulfid (CS_2) indeholdende en intern standard (2-fluorotoluen). Ekstrakterne analyseres med gaskromatografi-massespektrometri (GC-MS) under anvendelse af en 50 m 0,32 mm (ID) $\times$ 1,32 μm CP-sil 5B GC-kolonne med et 35 min temperaturprogram fra 40-285°C. BTEX kvantificeres på basis af kalibrerede responsfaktorer for benzen, toluen, ethylbenzen samt orto-, meta- og paraxylene. For hvert stof analyseres kontrolprøver med kendt koncentration (QC kontroller).

3.1.4 Usikkerheder

For passiv opsamling af BTEX med Radiellorør er opgivet en detektionsgrænse på 2 $\mu\text{g m}^{-3}$ for 8 timers opsamling og 0,2 $\mu\text{g m}^{-3}$ for 5 dages opsamling (Skov et al., 2001b). I analysedelen accepteres op til 10 % afvigelse mellem nominel og analyseret koncentration for QC kontrollerne.

Prøver og kontroller beregnes ud fra responsfaktorer baseret på de tilhørende standarder under anvendelse af intern standard. Blindprøver af det rene solvent, kalibreringskurvernes udseende og korrelationskoefficient ($R^2 > 0.98$) kontrolleres. Afslutningsvist udføres endelig kvalitetskontrol, herunder sammenligning af gentagne bestemmelser og de absolutte niveauer.

Præcisionen for benzenkoncentrationen er for det enkelte Radiellorør bestemt med en usikkerhed mindre end $\pm 16\%$ (2s). Middelværdien for tre parallelt opsamlede Radiellorør har tilsvarende usikkerhed på mindre end $\pm 8\%$ (2s). Den samlede usikkerhed (inklusive nøjagtighed) på bestemmelsen af benzen vurderes til at være mindre end $\pm 25\%$ (2s).

3.2 PAH, benzo[a]pyren og PM₁₀

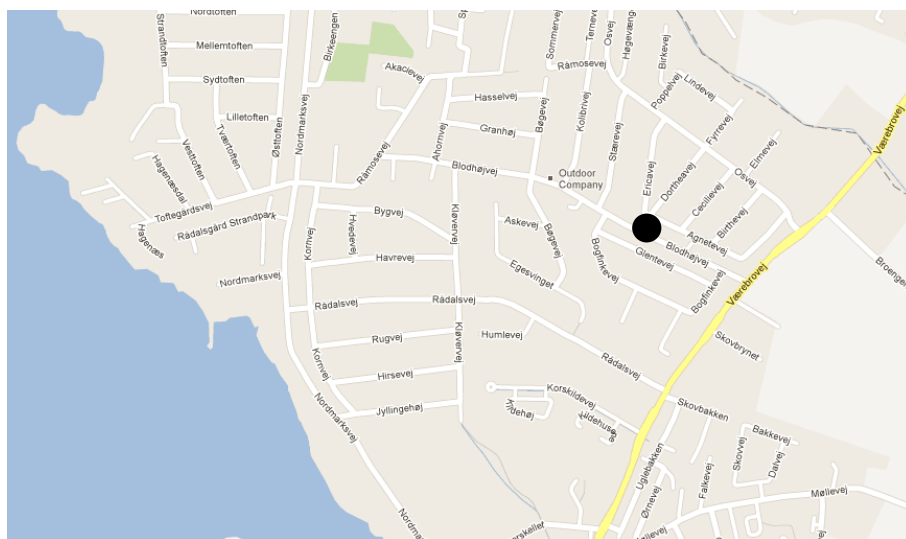
3.2.1 Målestation

Opsamling af PAH er i dette projekt foretaget i 13 måneder i perioden fra den 26. marts 2010 til den 2. maj 2011. Opsamlingerne blev foretaget i Jyllinge, fordi det var forventet, at der i Jyllinge kunne findes hot spots, hvor koncentrationen af PAH ville være høj, som følge af store lokale udledninger af PAH fra anvendelse af brændeovne.

Den endelige placering af målestedet faldt på Værebros Vandværk (Agnetevej 41) i Nordmarken, 4040 Jyllinge. Den geografiske placering af målestedet kan ses af Figur 3.9 og selve målestedet kan ses i Figur 3.10. Baggrunden for dette valg var følgende:

- Værebros Vandværk ligger i et område med stor anvendelse af brændeovne til boligopvarmning.
- Værebros Vandværk ligger i den østlige del af Nordmarken uden dog at ligge i udkanten. Opsamlere vil derfor være placeret nedstrøms for store dele af Nordmarken ved vestlige vindretninger, som er de hyppigste vindretninger i Danmark.
- Der var en god mulighed for at placere high volume sampleren ugeneret.
- Der var mulighed for at få den nødvendige el til drift af måleren.
- Værebros Vandværk gav os velvilligt tilladelse til placering af opsamlere på deres grund.

Der er ikke foretaget en egentlig kortlægning af den lokale anvendelse af brændeovne til opvarmning, men information fra den lokale skorstensfejer og inspektion af lokalområdet bekræftede, at der i stort omfang anvendes brændeovne til boligopvarmning.



Figur 3.9. Den sorte plet angiver placering af målestedet ved Værebros Vandværk i Nordmarken, Jyllinge. Kort Google Maps.

3.2.2 Opsamlingsmetode

Opsamling af den partikulære fraktion af PAH foretages med en Digital DHA-80 high volume sampler (HVS) fra Rieme Messtechnik (Hausen,

Tyskland) (Figur 3.10), som opfylder kravene til opsamling af PM_{10} i henhold til det 4. datterdirektiv (2004/107/EF). Prøverne blev opsamlet på døgnbasis, hvilket med et luftflow på $0,5 \text{ m}^3/\text{min}$ giver et samlet opsamlingsvolumen på 720 m^3 per døgn. Der indgik én blindprøve pr. uge. Partiklerne blev opsamlet på et 15 cm (diameter) kvarts partikelfilter fra Advantec QR-100 (Dublin, CA, USA) som inden opsamlingen var blevet udbagt ved 450°C .



Figur 3.10. High volume samleren på målestedet ved Værebros Vandværk i Nordmarken, Jyllinge.

3.2.3 Analysemetode

Inden prøveopsamlingen konditioneres filtrene mindst 2 døgn i vejerum med 50 % luftfugtighed og 20°C . Herefter vejes filtrene. Efter prøveopsamlingen konditioneres filtrene igen på tilsvarende vis og vejes derefter. Filtrene opbevares mørkt i forbindelse med konditioneringen. Baseret på forskellen i filtrenes vægt før og efter eksponering bestemmes massen af den opsamlede partikelmasse. Ved at dividere partikelmassen med opsamlingsvolumet bestemmes PM_{10} . Procedure for vejning af partikelmassen følger procedurerne i referencemetoden til gravimetrisk bestemmelse af PM_{10} , bortset fra at prøverne var stabile nok, så der ikke blev foretaget dobbelt vejninger. Målingerne af PM_{10} ved Lille Valby/Risø, $HC\text{O}$ og $HCAB$ i forbindelse med Delprogram for luft under NOVANA foretaget med SM200-monitører, som er baseret på måling af PM_{10} på basis af β -metoden, hvor β -stråling anvendes til at bestemme partikelmassen. SM200-monitørerne anvender derfor et andet princip end ved den gravimetriske metode anvendt i forbindelse med PAH-opsamlingerne i dette projekt. SM200-monitørerne måler i overensstemmelse med referencemetoden.

Efter vejningen opbevares filtrene mørkt og i frossen tilstand indtil analyserne. En fjerdedel af filtret klippes ud og ekstraheres med dichlormethan med efterfølgende oprensning på silica. Før ekstraktionen tilsættes deuteriummærket PAH til prøverne af hensyn til kvalitetssikringen.

Af hensyn til ressourcerne i projektet blev de opsamlede døgnprøver poollet til ugeprøver for hovedparten af måleperioden. I to perioder fra 26.03.2010 til 22.05.2010 og 14.12.2010 til 17.01.2011 blev prøverne imidlertid analyseret som døgnprøver for at få mere detaljeret information om variationer fra døgn til døgn.

Analyserne af ekstrakterne blev foretaget med gaskromatografi koblet med massespektrometri (GC-MS). Der er anvendt ^{13}C mærkede standar-

der, og koncentrationerne for de enkelte PAH i prøven korrigeres for genfindning af de deuteriummærkede PAH-standarder. Der er anvendt en 30 m 250 μ m 0,25 μ m HB-5 kolonne (J&W, Folsom, CA, USA). Injektortemperaturen var 290 °C og temperaturprogrammet 90-300 °C i 38 min. I alt analyseres for 10 PAH'er med analysemetoden, herunder de syv PAH, som er nævnt i det 4. datterdirektiv (2004/107/EF). Metoden er nærmere beskrevet i Glasius et al. (2008).

Analyserne i forbindelse med de rutinemæssige prøveopsamlinger på HCAB foretages med samme fremgangsmåde, som for målingerne ved Jyllinge. Dog laves analyserne for hvert enkelt døgn.

3.2.4 Usikkerheder

Usikkerheden på prøveopsamlingen kan vurderes som den flowafvigelse, der kan opstå som følge af usikkerheden ved opsamlerens bestemmelse af tryk og temperatur, der generelt er bedre end 2 %. Analyseusikkerheden på benzo[a]pyren er målt ved gentagne bestemmelser (n=3) af et referencemateriale fra NIST (NIST 2975, dieselpartikelmateriale). Standardafvigelsen blev fundet til 0,0024 mg/kg med en middelværdi på 0,067 mg/kg. Det vurderes, at den samlede tilfældige fejl, inklusiv dag til dag variation på ekstraktion og analyse samlet udgør mindre end ± 15 % (dækningsfaktor 2).

Under bestemmelsen af referencematerialet er der fundet en systematisk fejl ved analysen på +28 %, som resultaterne er korrigeret for.

Vejning af filtrene foretages på mikrovægt, som regelmæssigt kontrolleres og kalibreres af Mettler Toledo med referencelodder. Resultaterne viser at der ikke er nogen systematisk fejl på vejningerne. Baseret på gentagelse af vejninger af filtre vurderes den samlede tilfældige usikkerhed på bestemmelse af PM₁₀ til at være mindre end ± 15 % (dækningsfaktor 2).

4 Resultater

4.1 Benzen

I september-november 2010 (uge 35-47) blev der målt benzen, toluen, ethylbenzen og o-, m/ p-xylene (BTEX) som ugemiddel på gadestationerne i Aarhus, Odense og Aalborg. I forbindelse med delprogram for luft under NOVANA blev der foretaget tilsvarende målinger i København (H.C. Andersens Boulevard og Jagtvej) gennem hele 2010.

Resultaterne fra måling af benzen er vist i Tabel 4.1 og Figur 4.1, der viser den ugentlige variation i benzenkoncentrationen. Ugemiddelværdierne varierer mellem 0,5 og 2,5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ med middelværdier for hele målekampagnen på 0,9-1,4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. I målekampagnen ligger middelværdien af benzenkoncentrationen i Odense og Aalborg på niveau med (indenfor 10 %) H.C. Andersens Boulevard og Jagtvej i København. Benzenkoncentrationen i Aarhus ligger derimod ca. 33 % under gennemsnittet for de to målestationer i København. Årsagen til den betydeligt lavere benzenkoncentration i Aarhus er formentligt den lavere trafikintensitet ved målestationen (Tabel 4.1).

For CO, der normalt anses for en god tracer for luftforurening fra benzindrevet trafik (Wählin 2008), ses tilsvarende at koncentrationen af CO i Aarhus ligger ca. 37 % under niveauet for de tre andre byer og at niveauet for de tre andre byer er nogenlunde ens (Tabel 4.2).

NO_x (NO+NO₂) målt på gadeniveau kommer ligeledes hovedsageligt fra trafik. NO_x stammer dog hovedsageligt fra dieseltrafik og i mindre grad fra benzintrafik (Wählin 2008). For NO_x ses et lidt andet billede end for benzen og CO (Tabel 4.2). For NO_x er der i perioden med målekampagnen tydeligt større variation i koncentrationerne med højeste koncentrationer på HCAB og laveste koncentration i Odense. De meget høje koncentrationer på HCAB formodes delvis at skyldes omfattende byggeri og vejarbejde omkring målestationen på HCAB (Ellermann et al., 2011). Koncentrationen ved gademålestationen i Aarhus ligger relativt set højt vurderet ud fra trafikmængden. Årsagen til dette formodes at være udledninger af NO_x fra togtrafik ved Aarhus Hovedbanegård og rangerteræn, der ligger tæt på målestationen.

Benzen stammer hovedsageligt fra benzindreven trafik ligesom CO, hvilket er årsag til den gode korrelation mellem CO og benzen. NO_x stammer til gengæld hovedsageligt fra dieseldrevet trafik, hvilket sammen med bidrag fra ikke-trafikrelaterede kilder er årsag til den manglende korrelation mellem benzen og NO_x.

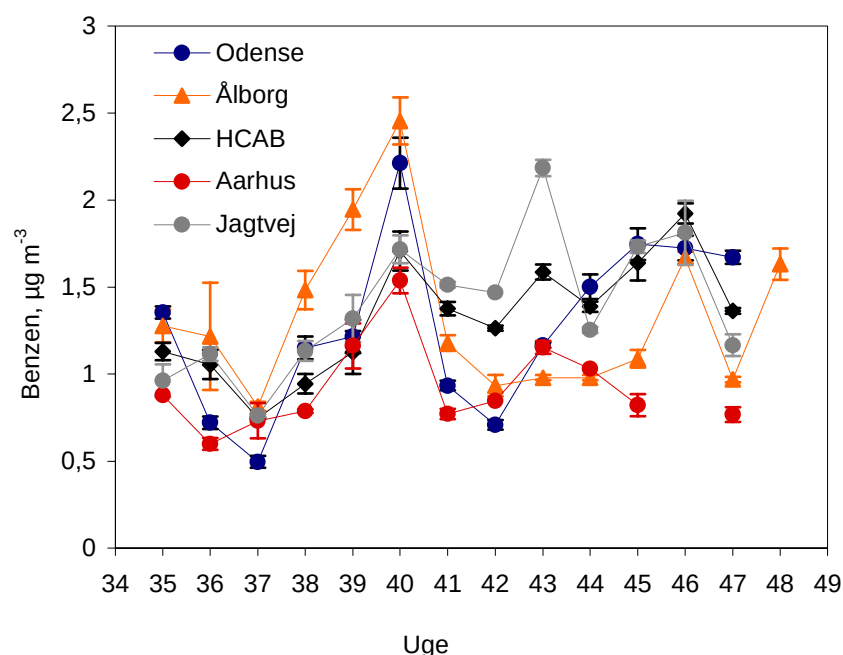
Tabel 4.1. Middelkoncentration i målekampagnen (uge 35-47) af benzen og toluen ved gademålestationerne. Endvidere angives den estimerede opskalerede årsmiddelkoncentration for 2010 for gademålestationerne i Aarhus, Odense og Aalborg og de målte årsmiddelkoncentrationer for gademålestationerne i København. Enhed: $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

By	Benzen	Toluen	Benzen Årsmiddel 2010 (opskaleret)	Toluen Årsmiddel 2010 (opskaleret)
Odense	1,28	4,98	1,22	3,64
Aarhus	0,92	2,88	0,89	2,11
Ålborg	1,33	4,33	1,27	3,17
			Årsmiddel 2010 (målt)	
HCAB	1,33	4,07	1,28	2,94
Jagtvej	1,40	4,37	1,33	3,24

Tabel 4.2. Middelkoncentration i målekampagnen af benzen, CO og NO_x på gademålestationerne i København (HCAB; Jagtvej), Odense, Aarhus og Aalborg. Målingerne af CO og NO_x er foretaget i forbindelse med delprogram for luft under NOVANA (Ellermann et al., 2011).

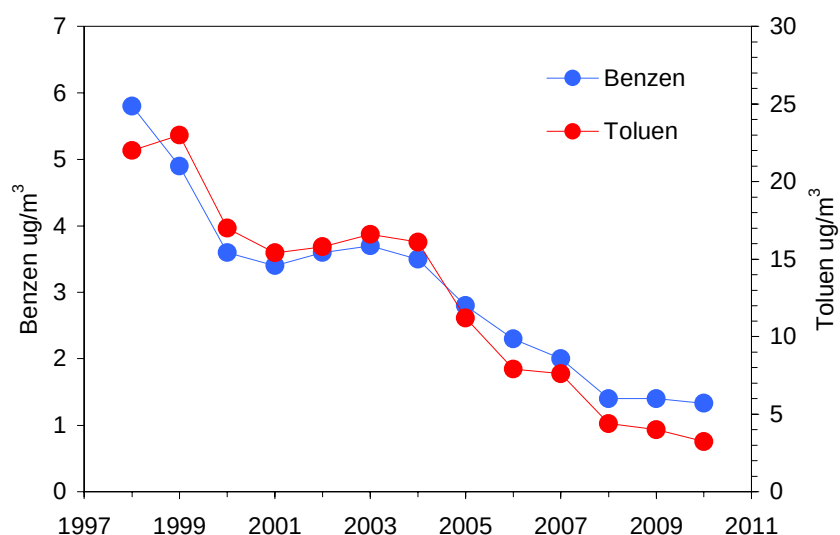
	Benzen $\mu\text{g}/\text{m}^3$	CO $\mu\text{g}/\text{m}^3$	NO _x (beregnet som NO ₂) $\mu\text{g}/\text{m}^3$
HCAB	1,33	501	163
Jagtvej	1,40	439	100
Odense	1,28	421	82
Aarhus	0,92	292	90
Aalborg	1,33	483	116

Årsmiddelkoncentrationen for gademålestationerne i Aarhus, Odense og Aalborg kan estimeres ud fra målingerne ved gademålestationerne i København. I 2010 lå årsmiddelkoncentrationen målt for benzen hhv. 4,0 % (HCAB) og 4,8 % (Jagtvej) lavere end målt i målekampagnen i uge 35-47 (Tabel 4.1). På basis heraf estimeres det, at årsmiddelkoncentrationerne for gademålestationerne i Aarhus, Odense og Aalborg er omkring 4,4 % lavere end målt i målekampagnen. Estimaterne og målingerne (Tabel 4.2) viser, at årsmiddelkoncentrationerne i 2010 i alle fire byer ligger under EU's nedre vurderingstærskel for benzen ($2 \mu\text{g}/\text{m}^3$).



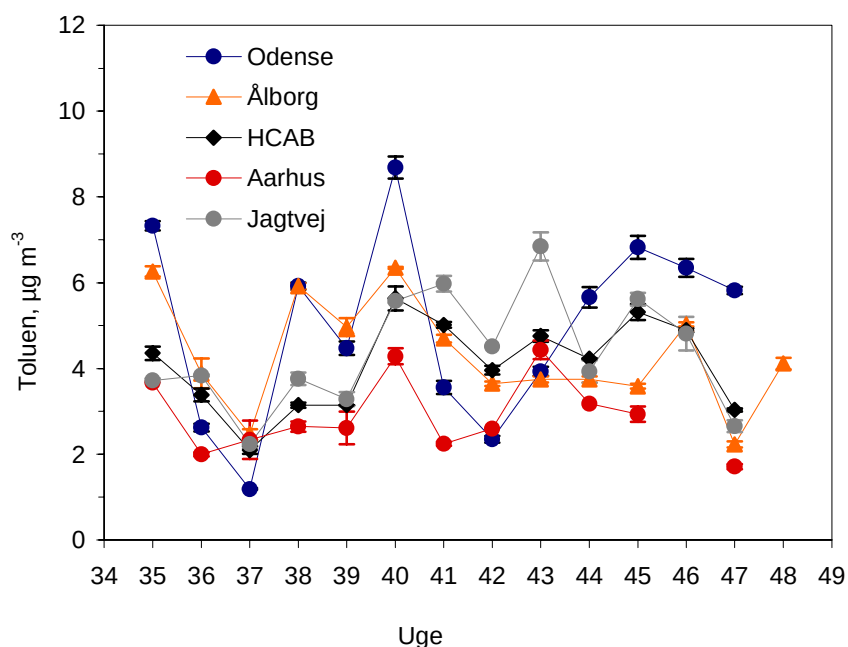
Figur 4.1. Benzen ved gademålestationer i Aarhus, Odense, Aalborg og København i september-november, 2010. Error bars angiver standardafvigelsen på de tre parallelsamlinger.

Vurdering af årsmiddelværdierne i relation til vurderingstærsklerne skal i henhold til EU's luftkvalitetsdirektiv (2008/50/EF) foretages på baggrund af målinger fra de forudgående fem år. Når årsmiddelværdierne i tre enkelte af disse fem år ligger over vurderingstærsklen regnes vurderingstærsklen for overskredet. Figur 4.2 viser udviklingstendensen for benzen målt ved Jagtvej, København. Siden 1999 har koncentrationen ligget under grænseværdien på 5 µg/m³ og inden for de seneste fem år har den nedre vurderingstærskel kun været overskredet to gange. Da hovedkilden til benzen på gadeniveau er trafik vurderes udviklingstendensen i Aarhus, Odense og Aalborg til at være meget lig udviklingstendensen i København. Det vurderes derfor, at benzen ligger under den nedre vurderingstærskel i alle fire byer. I henhold til EU's luftkvalitetsdirektiv er det derfor tilstrækkeligt at bestemme benzenkoncentrationen med objektiv estimering. Denne estimering skal foretages for alle tre luftkvalitetszoner.



Figur 4.2. Udviklingstendens for benzen og toluen på Jagtvej, København. Målingerne er foretaget i forbindelse med delprogram for luft under NOVANA (Ellermann et al., 2011).

I Figur 4.3 ses den ugentlige variation for toluen gennem målekampagnen målt i de fire byer. Ved at sammenholde Figurene 4.1 og 4.3 ses en udtalt kovariation mellem benzen og toluen de enkelte målestationer imellem. Benzen og toluen har derfor overvejende de samme kilder, hvilket også gælder for o-, m- og p-xylen samt ethylbenzen. Dog ses et større bidrag til toluen fra andre kilder i ugerne 35 og 38 i Aalborg. Resultaterne for de øvrige aromatiske forbindelser er angivet i Tabel 4.3.



Figur 4.3. Toluene ved gademålestationerne i Aarhus, Odense, Aalborg og København i september-november, 2010. Error bars angiver standardafvigelsen på de tre parallelsamlinger.

Tabel 4.3. Middelkoncentration af øvrige aromatiske forbindelser i målekampagnen fra september-november 2010 sammenholdt med målinger for gadestationer i København. Enhed ($\mu\text{g m}^{-3}$).

By	m/p-xylen	o-xylen	Ethylbenzen
Odense	2,68	0.99	0.92
Aarhus	1,59	0.65	0.58
Ålborg	2,72	1.03	0.89
HCAB	2,31	0.89	0.83
Jagtvej	2,42	0.93	0.87

Koncentrationen af benzen er i niveau med ethylbenzen og de enkelte xylen-isomerer. Forholdet mellem toluen og benzen er 2,9-3,3 i København, Ålborg og Aarhus og 3,9 i Odense. For de antropogene aromatiske forbindelser gælder, at de største kilder er emissioner fra trafik, tankstationer og industri, hvor førstnævnte vurderes at være den vigtigste i industrialiserede lande. Jensen et al. (2011) vurderede i forbindelse med evaluering af miljøzonerne, at trafikken er kilde til omkring 50 % af benzenkoncentrationerne på HCAB i 2010. De fundne forhold mellem toluen og benzen i de fire danske byer svarer til det, der er fundet for trafikdominerede forhold i en række europæiske studier (Bruno et al., 2008).

4.2 Objektiv estimering for benzen

Måleresultaterne for de fire byer viser, at det i henhold til luftkvalitetsdirektivet (2008/50/EF) er tilstrækkeligt at bestemme årsmiddelværdien for benzen på basis af objektiv estimering, hvilket betyder at årsmiddelværdierne kan estimeres på basis af simple metoder fx et begrænset antal målinger med simpelt udstyr eller via simple empiriske metoder. Den simple empiriske metode kunne være baseret på sammenligning mellem benzen og andre luftforureningskomponenter, som er relateret til den samme kildetype.

Sammenligning mellem koncentrationerne af benzen og CO (Tabel 4.2) viser, at der er god korrelation mellem koncentrationerne af disse ved de fem forskellige gademålestationer. De samme tal er præsenteret grafisk i Figur 4.4. I Figur 4.5 sammenlignes årsmiddelkoncentrationerne for benzen og CO målt på Jagtvej i perioden fra 1998 til 2010. Her ses ligeledes en god korrelation. De to figurer viser derfor at der god korrelation mellem benzen og CO både med hensyn til tidslige og geografiske variationer.

Det vurderes derfor, at korrelationen mellem benzen og CO kan anvendes til objektiv estimering af årsmiddelkoncentrationen af benzen ved de målestationer, hvor der måles CO og ikke benzen. Den simple empiriske model bag den objektive estimering er følgende:

$$\text{Benzen} = 0,0044 \cdot \text{CO} - 0,37$$

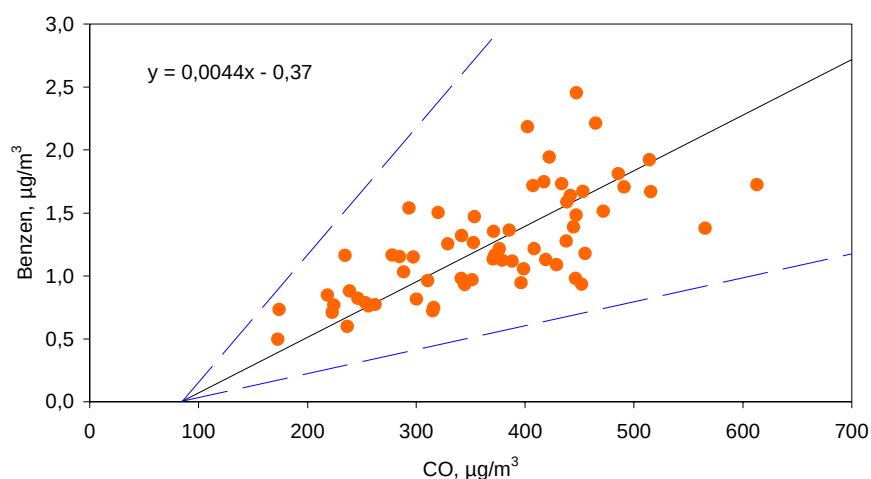
hvor benzen og CO angives i $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Den simple empiriske model er baseret på korrelationen mellem benzen og CO fra målekampagnen udført i 2010, hvor der indgår måledata fra alle de implicerede byer.

På basis af sammenhængen mellem benzen og CO vurderes, at den objektive estimering overholder krav om en usikkerhed på mindre end 100 % for den objektive estimering (jævnfør Tabel 2.3). Usikkerheden er

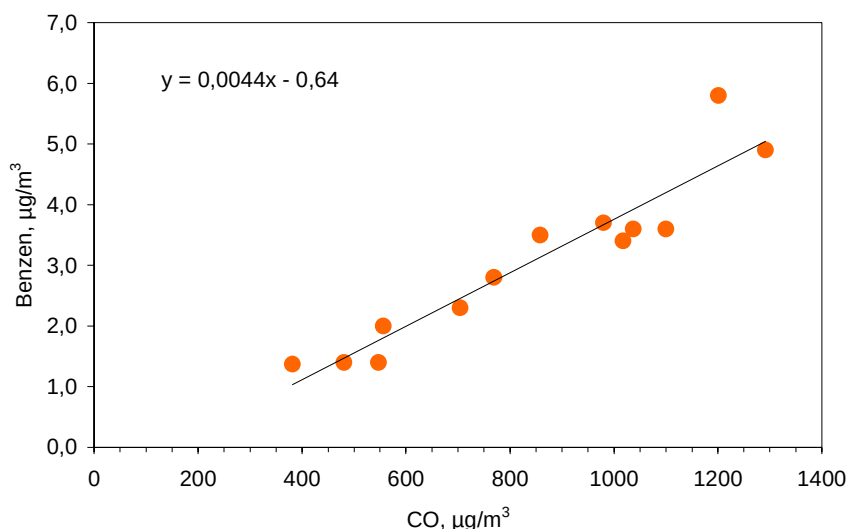
vurderet på basis af, at alle målepunkter i Figur 4.4 afviger mindre en $\pm 100\%$ fra regressionslinjen (Figur 4.4).

I det nuværende Delprogram for luft under NOVANA måles CO ved gademålestationerne i Zone 2 (Aarhus) og Zone 3 (Odense og Aalborg). Målingerne af CO vil derfor kunne anvendes til indikativ bestemmelse af benzenkoncentrationerne i de to zoner, hvor der ikke foretages benzenmålinger.

I Zone 1 (København) måles såvel CO som benzen på de to gademålestationer. Disse målinger vil kunne anvendes til at dokumentere, at den simple empiriske model stadigvæk også vil være gældende i de kommende år. Ændrede emissionsforhold for CO og/eller benzen mellem industri, trafik, boligopvarmning (fx større andel af brændeovne) vil kunne ændre på forholdet mellem CO og benzen.



Figur 4.4. Sammenhæng mellem ugemiddeltkoncentrationer af CO og benzen i målekampagnen på gademålestationerne i København, Odense, Aarhus og Aalborg. De stiplede linjer angiver $+100\%$ og -50% . Målinger af CO er foretaget i delprogram for luft under NOVANA (Ellermann et al., 2011).



Figur 4.5. Sammenhæng mellem årsmiddelmålinger af CO og benzen målt på Jagtvej i København i perioden 1998-2010. Data fra delprogram for luft under NOVANA (Ellermann et al., 2011).

4.3 PAH og PM₁₀

4.3.1 Benzo[a]pyren på gademålestationer

I forbindelse med luftkvalitetsovervågningen under NOVANA er der siden 2008 foretaget kontinuerlige døgnopsamlinger og analyser af de partikulært bundne PAH i PM₁₀-fraktionen ved gademålestationen HCAB, København. Dette er de eneste længerevarende målinger, som er foretaget i Danmark.

Fokus har væsentligst været på årsmiddelmålingerne for benzo[a]pyren, der anvendes som markør for de øvrige partikulært bundne PAH. Årsmiddelmålingerne for benzo[a]pyren har ligget på 0,40, 0,25 og 0,34 ng/m³ i henholdsvis 2008, 2009 og 2010. I alle tre år ligger årsmiddelmålingen af benzo[a]pyren betydeligt under EU's målværdi på 1 ng/m³.

En vurdering af koncentrationsniveauet i forhold til den øvre og nedre vurderingstærskel kræver i princippet fem års målinger, fordi en vurderingstærskel skal regnes for overskredet når årsmiddelmålingerne har overskredet vurderingstærsklen i mindst tre kalenderår ud af de foregående fem kalenderår. I tilfældet med benzo[a]pyren har årsmiddelmålingen imidlertid ikke overskredet den nedre vurderingstærskel på 0,40 ng/m³ i de sidste tre år. På trods af de få målinger kan det derfor fastlægges, at koncentrationsniveauet på HCAB ligger under den nedre vurderingstærskel.

HCAB er en af de mest trafikerede gadestækninger i Danmark og på basis af blandt andet resultater fra luftkvalitetsovervågningen under NOVANA (Ellermann et al., 2011) vides det, at det er en af de gader med den største luftforurening i Danmark. På basis heraf vurderes det, at koncentrationsniveauerne for benzo[a]pyren på andre stærkt trafikerede gadestækninger ligeledes ligger under eller på niveau med den nedre vurderingstærskel og dermed betydeligt under EU's målværdi.

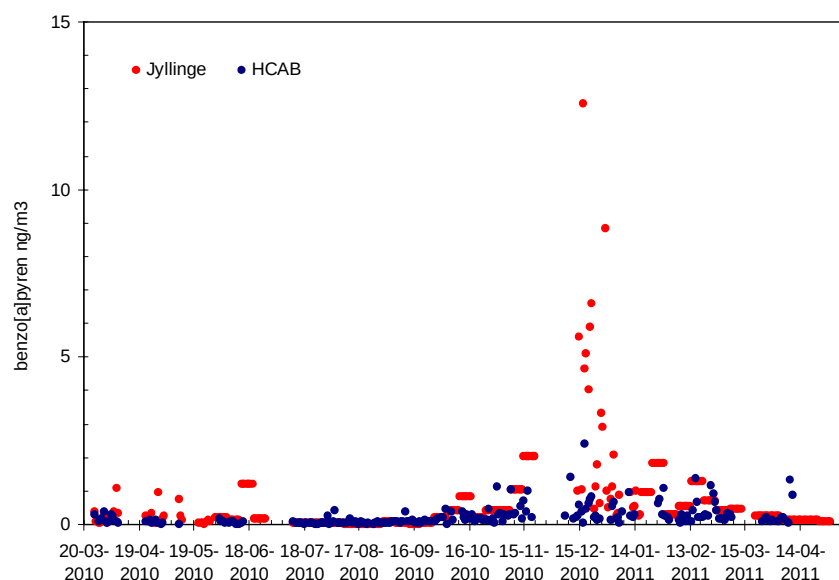
4.3.2 Benzo[a]pyren i brændeovnsområde i Jyllinge

Figur 4.6 og 4.7 viser resultaterne fra måling af benzo[a]pyren i brændeovnsområde i Jyllinge i perioden fra den 26. marts 2010 til den 2. maj 2011. Til sammenligning vises også resultaterne fra målingerne på HCAB. I Tabel 4.4 angives middelkoncentrationerne for Jyllinge og HCAB i perioden fra 1. maj 2010 til og med 30. april 2011. Det ses, at koncentrationerne i Jyllinge ligger omtrent en faktor tre højere i Jyllinge end på HCAB. Middelværdien i Jyllinge svarer til den øvre vurderingstærskel (0,6 ng/m³), mens HCAB ligger under den nedre vurderingstærskel (0,4 ng/m³) (EU direktiv 2008/50/EF).

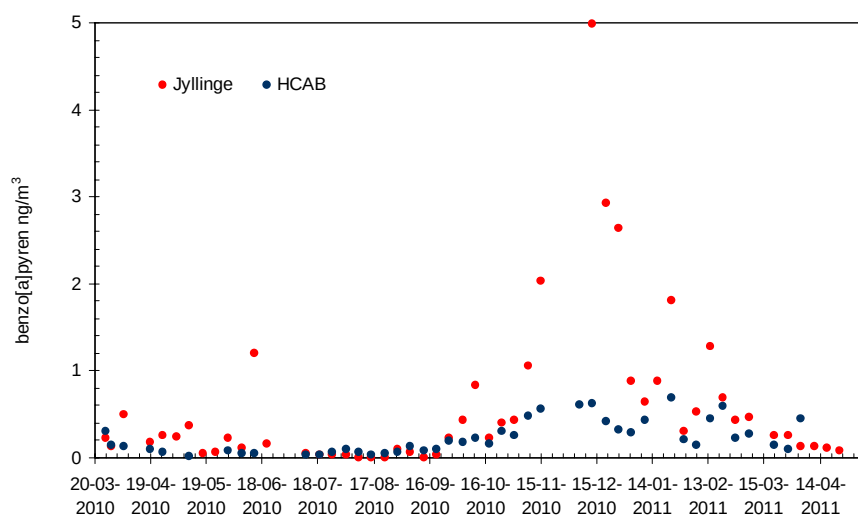
Figur 4.6 viser døgnmålinger af benzo[a]pyren suppleret med ugemidlede målinger. I perioderne 26.03.2010 til 22.05.2010 samt 14.12.2010 til 17.01.2011 foreligger der resultater på døgnbasis. I den resterende del af måleperioden viser figuren for hver dag den ugentlige middelværdi (illustreret som sammenhængende punkter med ens koncentration for hele ugen). Opgjort på denne måde var der 52 dage med koncentrationer af benzo[a]pyren større end 1 ng/m³. Heriblandt var seks (døgnmidlede) dage i perioden 15.12.2010 - 29.12.2010 med koncentrationer over 5 ng/m³. Generelt blev de højeste koncentrationer målt fra oktober 2010 – marts 2011, både i Jyllinge og på HCAB. Denne periode omfatter fyringssæsonen, hvilket kan forklare de højere koncentrationer i Jyllinge, idet PAH'er, og dermed benzo[a]pyren, dannes ved ufuldstændig forbrænding, herunder brændefyring (McDonald et al., 2000). I henhold til danske emissionsopgørelser (Nielsen et al., 2011) er brændefyring den dominerende kilde til PAH-emissioner i Danmark med en andel på over 80 % af den totale danske PAH-emission. PAH'erne emitteres imidlertid også fra trafik, og i større mængder under koldstart (Kashiwakura og Sakamoto, 2010), bl.a. fordi bilernes katalysatorer virker mindre effektive ved lavere temperaturer.

Tabel 4.4. Gennemsnitlige koncentrationer af benzo(a)pyren (ng/m³), baseret på ugemidlede data fra 01.05.2010 – 30.04.2011 ved målestationen i Jyllinge og gademålestationen HCAB. Målingerne på HCAB er udført under NOVANA (Ellermann et al., 2011).

	benzo[a]pyren (ng/m ³)	antal målinger
Jyllinge	0,61	46
HCAB	0,23	39



Figur 4.6. Døgnmålinger af benzo[a]pyren i Jyllinge og på HCAB, København i perioden 26.03.2010 – 02.05.2011.



Figur 4.7. Ugemidlede målinger af benzo[a]pyren i Jyllinge Nordmark og på HCAB, København i perioden 26.03.2010 – 02.05.2011.

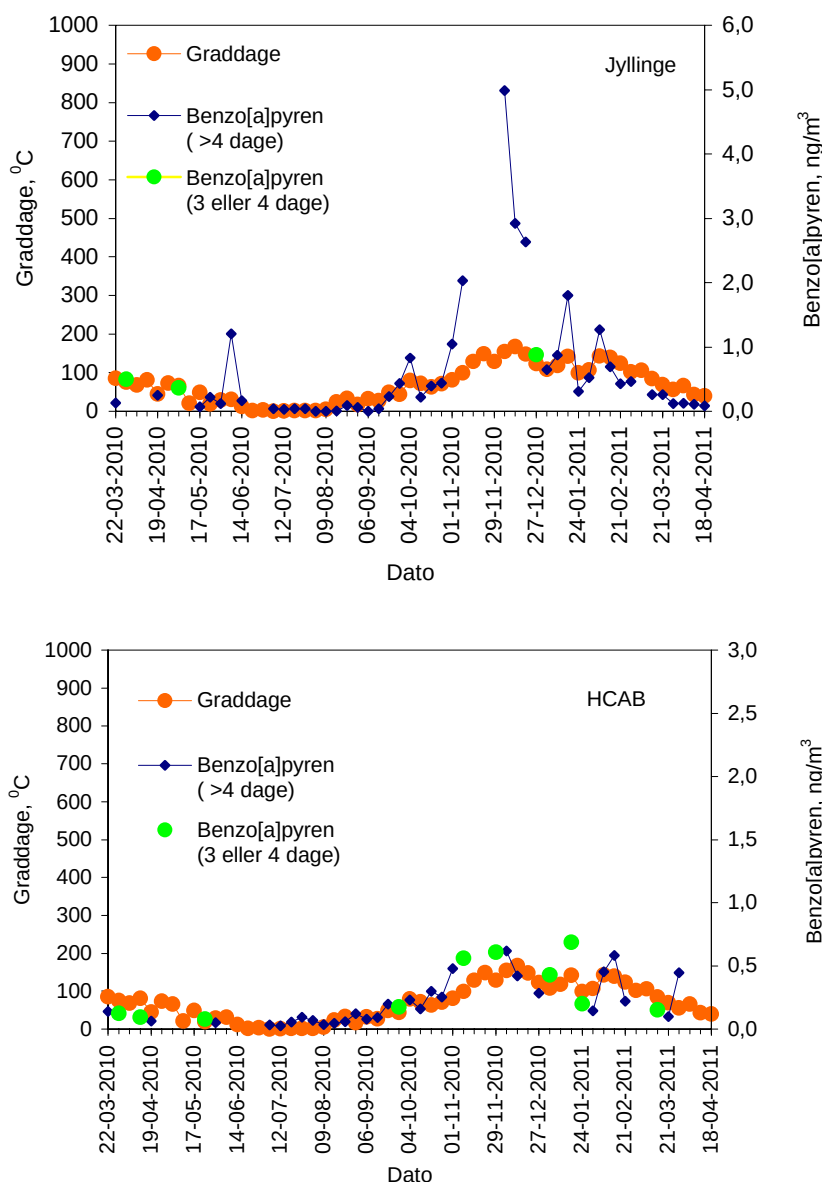
I Figur 4.7 vises ugemidlede målinger af benzo[a]pyren på HCAB og i Jyllinge. De to måleserier følger overordnet set hinanden med højeste koncentrationer om vinteren og laveste koncentrationer om sommeren. Fra april-september 2010 ses lave koncentrationer på begge stationer. Dog er der enkelt målinger i Jyllinge fra april-juni 2010, der er væsentligt højere end det der måles på HCAB. I fyringsperioden fra oktober 2010 til marts 2011 stiger koncentrationen af benzo[a]pyren mærkbart, som følge af højere emissioner fra navnlig trafik og opvarmning, hvor anvendelse af brændeovne spiller en stor rolle. Stigningen er størst i Jyllinge, hvor målingerne er foretaget i område med mange brændeovne.

I Figur 4.8 (øverst) ses en sammenligning mellem sæsonvariation for ugemiddelværdier af benzo[a]pyren i Jyllinge sammenlignet med ugentlige graddage, som er en indikator for opvarmningsbehov og dermed en indikator på størrelsen af udledningerne fra brændeovne. I Jyllinge ses

en sammenhæng mellem koncentrationerne af benzo[a]pyren og antallet af graddage per uge. Dette indikerer, at brændeovne er en af de væsentligste kilder til benzo[a]pyren. Det er dog også tydeligt, at der er større variationer fra uge til uge i benzo[a]pyren end der observeres for graddagene. Det skyldes at det ikke kun er udetemperaturen, der bestemmer udledningernes og luftkoncentrationernes størrelse. De vigtigste andre faktorer er følgende:

- Vindhastighed har stor betydning for fortyndingen, hvor fortyndingen stiger med stigende vindhastigheder og dermed ses lavere koncentrationer med stigende vindhastighed. Omvendt kan vindhastigheden dog også give øget opvarmningsbehov ved stigende vindhastigheder.
- Vindretning, idet udledningernes størrelse typisk vil variere for forskellige opstrøms vindretninger.
- Grænselagshøjden, som er bestemmende for den turbulente horisontale opblanding af luften. Lav grænselagshøjde giver øgede koncentrationer. I kolde vinternætter kan ses perioder med meget lav grænselagshøjde (20-40 m), hvilket lægger "låg" over udledningerne og kan føre til høje lokale koncentrationer.
- Ferieperioder (fx jule- og nytårsferie), hvor øget anvendelse af brændeovne forventes, da folk typisk er hjemme en større del af dagen end i forbindelse med almindelige arbejdsuger.

På Figur 4.8 (nederst) vises sammenhængen mellem benzo[a]pyren og graddage på HCAB. Sæsonvariationen for benzo[a]pyren på HCAB er større end forventet, da emissionerne fra trafik typisk kun har en beskedne sæsonvariation. Sæsonvariationen i udledninger fra trafik skyldes et større antal koldstarter og et større brændstofforbrug om vinteren set i forhold til sommeren. Lige som for Jyllinge ses en relativt god sammenhæng mellem variationerne i benzo[a]pyren og antallet af graddage. Dette indikerer at brændeovne måske har en større indflydelse på koncentrationerne af benzo[a]pyren end oprindeligt antaget, hvor man regnede med at trafikken var den dominerende kilde. I området omkring HCAB er der kun få brændeovne. Hvis udledninger fra brændeovnene spiller en markant betydning for koncentrationen af benzo[a]pyren på HCAB, så vil der formentligt være tale om udledninger fra brændeovnsopvarmning fra et større opland omkring HCAB. Endelig vil langtransport af benzo[a]pyren fra omkringliggende lande også kunne give anledning til sæsonvariation i benzo[a]pyren, idet benzo[a]pyren overvejende vil være at finde i PM_{2,5} (Akyuz og Cabuk, 2009), som typisk kan transporteres over store afstande.



Figur 4.8. Sæsonvariation for antallet af ugentlige graddage og ugemiddelværdier for benzo[a]pyren målt ved Jyllinge (øverst) og HCAB (nederst) i perioden fra uge 13, 2010 til og med uge 17. Koncentrationerne for benzo[a]pyren angives med blå for de uger, hvor der er foretaget en egentlig måling af ugemiddelværdi eller hvor ugemiddelværdier er baseret på resultater fra mere end 4 dage i ugen. Benzo[a]pyren angivet med grøn er for de uger, hvor ugemiddelværdien er beregnet på basis af resultater fra 3 eller 4 dage i ugen. Disse middelværdier er behæftet med øget usikkerhed grundet lavere datarepræsentativitet. Graddage er gældende for Roskilde (www.DMI.dk).

Udover sæsonvariationer i udledningerne så spiller de kemiske og fysiske egenskaber for benzo[a]pyren også en rolle for sæsonvariationen for koncentrationerne af benzo[a]pyren. Benzo[a]pyren findes både på gas- og partikelform ved typiske udetemperaturer, som følge af en temperaturafhængig ligevægt. Ligevægten betyder at en relativt mindre andel af benzo[a]pyren vil findes på partikelform ved de høje sommertemperaturer set i forhold til de lavere temperaturer ved de øvrige årstider (Yamasaki et al., 1982). Om vinteren vil stort set alt benzo[a]pyren være på partikelform, mens kun 80-90 % af den samlede benzo[a]pyren findes på partikelform om sommeren grundet de højere temperaturer. Alt i alt vil

de kemiske og fysiske egenskaber give en mindre sæsonvariation i koncentrationen, end når der kun måles koncentration af partikelformen.

4.3.3 Øvrige PAH under direktivet

Samtidig med benzo[a]pyren måles seks øvrige relevante PAH (2004/107/EF), nemlig benzo[a]anthracen, benzo(b+j)fluoranthen (de to bestemmes samlet), benzo(k)fluoranthen, indeno(1,2,3-cd)pyren samt di-benzo(a,h)anthracen på de to lokaliteter. Det ses af Tabel 4.5, at alle stofferne forekommer i 2-3 gange højere koncentration i Jyllinge end på HCAB, hvilket også gælder for benzo[a]pyren.

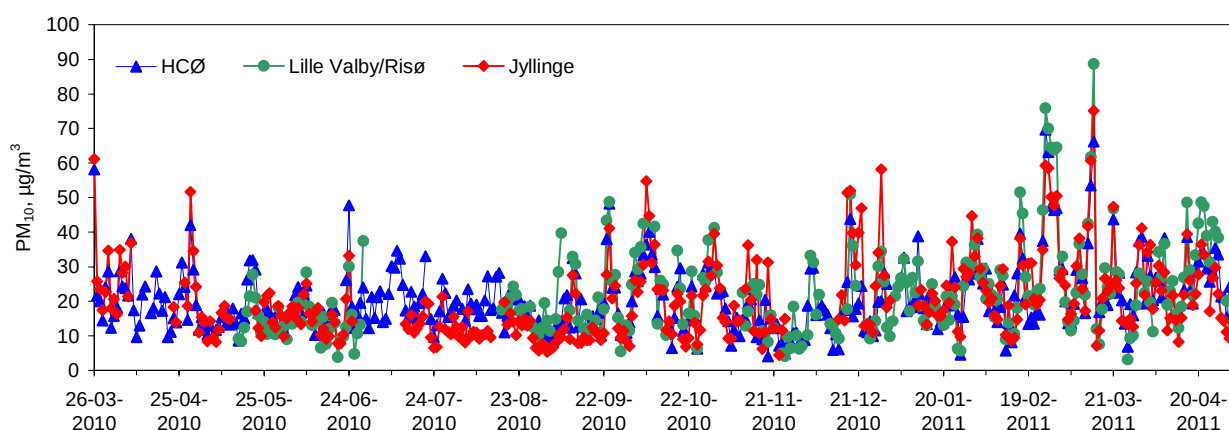
Tabel 4.5. Gennemsnitlige koncentrationer for de seks øvrige PAH'er (ng/m³) baseret på ugemidlede data fra 01.05.2010 – 30.04.2011 ved målestationen i Jyllinge og gademålestationen HCAB. Målingerne på HCAB er udført i under NOVANA (Ellermann et al., 2011).

	benzo(a) anthracen	benzo(b+j) fluoranthen	benzo(k) fluoranthen	indeno(1,2,3- cd)pyren	dibenzo(a,h) anthracen
Jyllinge	0,57	1,40	0,58	0,71	0,11
HCAB	0,21	0,43	0,21	0,25	0,056

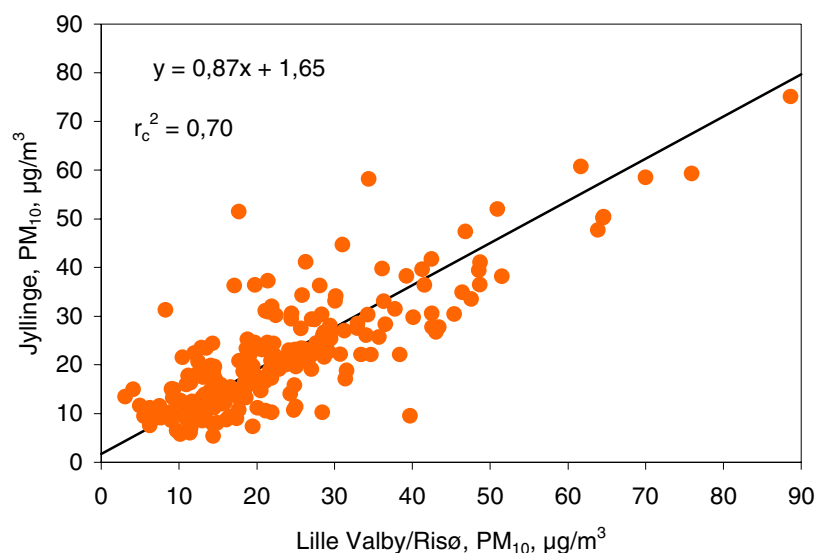
4.3.4 PM₁₀

I forbindelse med PAH-målekampagnen blev de indsamlede partikelfilterprøver brugt til bestemmelse af PM₁₀. Målet med dette var, for en minimal ekstra omkostning, at supplere målingerne af PAH i PM₁₀-fraktionen med bestemmelse af PM₁₀, idet der ikke tidligere er blevet foretaget længerevarende målinger af PM₁₀ i et område med stor anvendelse af brændeovne.

Figur 4.9 viser resultaterne fra målingerne i Jyllinge sammen med tilsvarende målinger fra Lille Valby/Risø og H. C. Ørstedts Institut (HCØ) i København. Figur 4.10 viser scatter plot for PM₁₀ målt ved Lille Valby/Risø og Jyllinge. Det ses umiddelbart, at niveauerne er ens på de tre målestationer, og at der er stor tidlig korrelation mellem PM₁₀ på de tre målestationer.



Figur 4.9. PM₁₀ målt i et brændeovnsområde i Jyllinge i perioden fra den 26. april 2010 til den 2. maj 2011. Til sammenligning vises resultater fra den samme periode for bybaggrundsmalestationen HCØ og landbaggrundsstationen Lille Valby/Risø (målestationen ved Lille Valby blev i sommeren 2010 flyttet ca. 2 km mod vest til Risø). Målingerne ved Lille Valby/Risø og HCØ er udført i forbindelse med delprogram for luft under NOVANA (Ellermann et al., 2011).



Figur 4.10. Scatter plot for PM₁₀ målt ved lille Valby/Risø og Jyllinge

I Tabel 4.6 vises middelværdierne for målekampagnen for de tre målestationer samt middelværdi for HCAB for perioden fra den 1. maj 2010 til den 30. april 2011. Niveaue af PM₁₀ i Jyllinge ligger 10 og 3 % under niveauet målt på henholdsvis Lille Valby/Risø og HCØ samt omkring 50 % under niveauet på gademålestationen HCAB. I Jyllinge ligger niveauet på halvdelen af grænseværdien for årsmiddel (40 µg/m³; 2008/50/EF).

I Tabel 4.6 angives endvidere antallet af dage med overskridelser af grænseværdien for døgnmiddelværdierne på 50 µg/m³. Antallet af dage med overskridelser ligger på samme niveau i Jyllinge, Lille Valby/Risø og på HCØ. Alle tre steder ligger antallet af dage med overskridelser langt under den tilladte grænse på 35 dage med overskridelser per kalenderår.

Tabel 4.6. Middelværdier af PM₁₀ målt i målekampagnen fra den 1. maj 2010 til den 30. april 2011 ved målestationen i Jyllinge, gademålestationen HCAB, bybaggrundsmålestationen HCØ og landbaggrundsmålestationen ved Lille Valby/Risø. Endvidere angives antallet af dage med overskridelser af grænseværdien for døgnmiddelværdien (50 µg/m³; 2008/50/EF). Målingerne ved HCAB, Lille Valby/Risø og HCØ er udført i forbindelse med Delprogram for luft under NOVANA (Ellermann et al., 2011).

	Antal	Middelværdi µg/m ³	Antal over 50 µg/m ³
Jyllinge	306	19,8	10
HCAB	334	31,1	27
HCØ	342	20,5	5
Lille Valby/Risø	263	22,2	9

Ved sammenligning mellem Jyllinge og Lille Valby/Risø skal det tages med i betragtning, at der ved Lille Valby/Risø mangler en del målinger i sommerperioden, hvilket kan føre til en mindre overestimering af middelværdierne, idet PM₁₀ typisk er lavere om sommeren end om vinteren. I Tabel 4.7 vises middelværdierne for Jyllinge, Lille Valby/Risø og HCØ, hvor middelværdien er udregnet ud fra dage, hvor der er resultater fra alle tre målestationer. Dette mindsker forskellen mellem de tre målestationer således, at PM₁₀ i Jyllinge reelt kun ligger 6 % under Lille Valby/Risø og er 1 % højere end HCØ. Forskellen mellem de tre målestatio-

ner ligger derfor indenfor måleusikkerheden, der vurderes til ca. $\pm 15\%$. Det skal i den sammenhæng tages med i betragtning, at målingerne af PM_{10} er foretaget med to forskellige metoder, hvor der kan være mindre systematiske forskelle f.eks. i forbindelse med indtagshovedernes afskærmingsdiameter.

Tabel 4.7. Middelverdier af PM_{10} målt i målekampagnen fra den 1. maj 2010 til den 30. april 2011 for dage med resultater fra alle målestationer.

	Antal	Middelværdi $\mu g/m^3$	Antal over 50 $\mu g/m^3$
Jyllinge	210	22,0	7
HCØ	210	21,8	4
Lille Valby/Risø	210	23,4	9

Det kan derfor konkluderes, at det i overvejende grad er langtransport af partikler, som bestemmer niveauet af PM_{10} i en by som Jyllinge med stor anvendelse af brændeovne, og at PM_{10} -niveauet ikke påvirkes markant af bidraget fra brændeovne. Denne konklusion er i overensstemmelse med forventningerne. I henhold til andre undersøgelser (f.eks. Olesen et al., 2010) finder man i aktive brændeovnsområder, at bidraget til partikelforurening på årsbasis udgør omkring $1-2 \mu g/m^3$, hvilket er fuldt ud foreneligt med de her viste resultater. Endvidere kan det konkluderes, at der skal mere detaljerede undersøgelser til for at kunne foretage en kvantitativ bestemmelse af brændeovnsbidraget til PM_{10} end det har været muligt at udføre indenfor rammerne af dette projekt.

5 Konklusion

5.1 Benzen

I perioden fra september-november 2010 er der gennemført en målekampagne på gademålestationerne i Aarhus, Odense og Aalborg med bestemmelse af luftkoncentrationer (ugemiddelværdier) af benzen, toluen, ethylbenzen og xylener (BTEX).

Måleresultaterne fra målekampagnen blev anvendt til estimering af årsmiddelværdier for benzen på basis af sammenholdning mellem resultaterne fra de tre byer med resultaterne fra rutinemålingerne af BTEX i København (Jagtvej og H.C. Andersens Boulevard (HCAB)) under delprogram for luft, NOVANA.

Resultaterne viser, at de estimerede årsmiddelværdier for benzen i 2010 ligger i intervallet fra 0,9-1,4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. I København, Odense og Aalborg ligger årsmiddelværdierne på samme niveau (1,3-1,4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$), mens koncentrationen af benzen i Aarhus (0,9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) ligger ca. 33 % under dette niveau. Benzen på gadeniveau stammer primært fra trafik. Årsagen til den lavere koncentration i Aarhus er derfor formentligt mindre trafikintensitet ved gademålestationen.

Et lignende billede ses for CO, hvor årsmiddelkoncentrationen i Aarhus ligger omkring 37 % under niveauet i de tre andre byer. CO stammer ligesom benzen primært fra den benzindrevne trafik. For NO_x ses ikke tilsvarende billede, hvilket er i overensstemmelse med, at NO_x primært stammer fra den dieseldrevne trafik og at der er andre væsentlige kilder (byggeri og togtrafik), som påvirker visse af gademålestationerne.

Årsmiddelværdierne for benzen lå i 2010 i alle fire byer under EU's (Luftkvalitetsdirektivet, 2008/50/EC) nedre vurderingstærskel på 2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. På basis af den målte udviklingstendens for benzen i København vurderes, at den nedre vurderingstærskel ikke har været overskredet mere end tre enkelte år ud af de seneste fem år. Det vurderes derfor, at den nedre vurderingstærskel ikke er overskredet. I henhold til EU-direktivet er det derfor tilstrækkeligt at anvende objektiv estimering af årsmiddelværdierne for benzen i alle tre luftkvalitetszoner i Danmark.

Baseret på en relativt god tidslig og geografisk korrelation mellem middelkoncentrationer af benzen og CO er der opstillet en simpel empirisk model til objektiv estimering af benzenkoncentrationen i Zone 2 (Aarhus) og 3 (Odense og Aalborg), hvor der måles CO og ikke benzen. Målingerne af benzen og CO på gademålestationerne i Zone 1 (København) kan fremadrettet anvendes til kvalitetssikring af den empiriske model.

Ved at kombinere målingerne af CO og benzen samt ved at anvende objektiv estimering vurderer AU derfor, at der kan opnås en hensigtsmæssig opfyldelse af kravene i EU's luftkvalitetsdirektiv (2008/50/EF) i alle tre luftkvalitetszoner. Der skal dog gøres opmærksom på at denne konklusion gælder for de diffuse kilder til benzen, mens der i projektet ikke er foretaget en revurdering af overvågningsbehov i relation til punktkilder.

For toluen, ethylbenzen og xylenerne ses tilsvarende billede som for benzen. Koncentrationerne bestemt i Odense og Aalborg svarer til koncentrationerne målt i København, mens Aarhus ligger tydeligt lavest. Forholdet mellem toluen og benzen ligger på 2,9-3,9, hvilket er i overensstemmelse med, at trafik er den dominerende kilde til BTEX på gadeniveau i Danmark.

5.2 PAH

I perioden 26. april 2010 – 2. maj 2011 har der været opsamlet 24 timers filterprøver til bestemmelse af partikelbundne PAH i Nordmarken, Jyllinge. Lokaliteten er valgt ud fra en forventning om et mærkbart lokalt bidrag fra brændefyring. Målingerne blev sammenlignet med målinger fra en trafikeret gade i København (HCAB) under Delprogram for luft under NOVANA (Ellermann et al., 2011).

Generelt blev der fundet mindre afvigelser mellem Jyllinge og HCAB uden for fyringssæsonen, mens markante forskelle var åbenlyse i fyringssæsonen, særligt fra oktober til februar, hvor der blev målt benzo[a]pyren i koncentrationer op til 12,5 ng/m³ som døgnmiddel. På begge lokaliteter var koncentrationerne højest i de kolde måneder i fyringssæsonen. I sommermånederne var koncentrationen af benzo[a]pyren i Jyllinge derimod lavere end på HCAB. Sæsonvariationen for de to stationer følger på det generelle plan hinanden. Variationerne skyldes primært sæsonvariation i udledningerne fra forbrændingsreaktioner (brændefyring trafik m.m.), men også den temperaturafhængige fordelingsligevægt mellem gasfase og partikelfase for benzo[a]pyren og sæsonvariation i langtransport fra udlandet påvirker i mindre grad sæsonvariationen. De øvrige seks PAH nævnt i direktivet var, som for benzo[a]pyren, 2-3 gange forhøjet i Jyllinge ift. HCAB.

Årsmiddelkoncentrationerne af benzo[a]pyren i Jyllinge og HCAB blev målt til 0,61 og 0,21 ng/m³ i perioden 1. maj 2010 – 30. april 2011. Årsmiddelkoncentrationen i Jyllinge er derfor på niveau med den øvre vurderingstærskel (0,6 ng/m³) og 40 % mindre end målværdien (1 ng/m³; 2004/107/EF).

På basis af målingerne fra Jyllinge vurderes det, at det er mest sandsynligt, at målværdien for benzo[a]pyren ikke overskrides i andre tilsvarende områder med store udledninger fra brændeovne.

Det er imidlertid vanskeligere at vurdere, om andre tilsvarende områder med store udledninger fra brændeovne vil ligge over eller under den øvre vurderingstærskel. Denne vurdering har betydning for det nødvendige omfang af overvågningen.

Såfremt tilsvarende områder med store udledninger fra brændeovne ligger over koncentrationerne målt i Jyllinge vil den øvre vurderingstærskel være overskredet. I henhold til direktivet (2004/107/EF) skal der anvendes faste målinger for at vurdere luftkvaliteten. De faste målinger kan suppleres med modelberegninger og/eller indikative målinger. Af Tabel 5.1 fremgår det, at der er behov for målinger ved i alt syv målestationer, hvis den øvre vurderingstærskel er overskredet i alle tre overvågningszoner. I det nuværende overvågningsprogram indgår kun en gademålestation i København.

Hvis tilsvarende områder med store udledninger fra brændeovne ligger under koncentrationerne målt i Jyllinge overskrides den øvre vurderingstærskel ikke. I henhold til direktivet kan der i så fald anvendes en kombination mellem faste målinger og modelberegninger og/eller indikative målinger. Af Tabel 5.1 fremgår, at der er behov for målinger ved i alt fire målestationer, hvis den øvre vurderingstærskel er overskredet i alle tre overvågningszoner.

Ovenstående vurdering af antal af målestationer er baseret på, at faste målinger benyttes som den eneste metode til at opfylde kravene til overvågningen. Direktivet (2004/107/EF) rummer imidlertid mulighed for også at anvende modeller og indikative metoder. Der er derfor mulighed for at foretage en vurdering af, i hvilket omfang det vil være muligt at udskifte en del af de omkostningstunge målinger med disse relativt set billigere metoder. Endvidere er der mulighed for at se på om målingerne ved nogle af de faste målestationer kan udføres med et mindre antal prøver for hermed at mindske omkostningerne. Endelig er det en mulighed at overveje om zoneinddelingen for benzo[a]pyren kan ændres.

Tabel 5.1. Direktivkrav (2004/107/EF) til antal af målestationer for måling af benzo[a]pyren ved koncentrationer over og under øvre vurderingstærskel

Zone	Befolkningstal	Antal målestationer	
		Over øvre vurderingstærskel	Mellem øvre og nedre vurderingstærskel
1. København + omkringliggende kommuner	950.000	1	1
2. Aarhus	300.000	2	1
3. Øvrige Danmark	4.200.000	4	2
Samlet	5.450.000	7	4

Der skal endelig gøres opmærksom på at ovenstående konklusioner gælder for de diffuse kilder til benzo[a]pyren og øvrige PAH, mens der i projektet ikke er foretaget en revurdering af overvågningsbehov i relation til punktkilder.

5.3 PM₁₀

Målingerne af PM₁₀ ved Jyllinge viste at PM₁₀ lå på en årsmiddelt på 20 µg/m³, hvilket er samme niveau som målt ved Lille Valby/Risø og på HCØ. Niveaulet for PM₁₀ ligger langt under grænseværdierne. Det kan derfor konkluderes, at det i overvejende grad er langtransport af partikler, som bestemmer niveauet af PM₁₀ i en by som Jyllinge med stor anvendelse af brændeovne, og at PM₁₀-niveauet ikke påvirkes markant af bidraget fra brændeovne. Denne konklusion er i overensstemmelse med forventningerne. I henhold til andre undersøgelser (f.eks. Olesen et al., 2010) finder man i aktive brændeovnsområder, at bidraget til partikel-forurening på årsbasis udgør omkring 1-2 µg/m³, hvilket er fuldt ud foreneligt med de her viste resultater. Endvidere kan det konkluderes, at der skal mere detaljerede undersøgelser til for at kunne foretage en kvantitativ bestemmelse af brændeovnsbidraget til PM₁₀ end det har været muligt at udføre indenfor rammerne for dette projekt.

6 Litteratur

Akyuz, M., & Cabuk, H., 2009. Meteorological variations of PM_{2.5}/PM₁₀ concentrations and particle-associated polycyclic aromatic hydrocarbons in the atmospheric environment of Zonguldak, Turkey. *Journal of Hazardous Materials* 170, 13–21.

Ellermann, T., Nordstrøm, C., Brandt, J., Christensen, J., Ketzel, M. & Jensen, S.S., 2011. The Danish Air Quality Monitoring Programme. Annual Summary for 2010. National Environmental Research Institute, Aarhus University. 55 pp. -NERI Technical Report No. 836.

Jensen, S.S., Ketzel, M., Nøjgaard, J. K. & Becker, T. 2011: Hvad er effekten af miljøzoner for luftkvaliteten? - Vurdering for København, Frederiksberg, Aarhus, Odense, og Aalborg. Slutrapport. Danmarks Miljøundersøgelser, Aarhus Universitet 110 s. -Faglig rapport nr. 830.

Glasius M, Ketzel M, Wählin P, Bossi R, Stubkjær J, Hertel O, Palmgren F., 2008. Characterization of particles from residential wood combustion and modelling of spatial variation in a low-strength emission area. *Atmos Environ* 2008; 42: 8686-97.

Kashiwakura, K. and Sakamoto, K., 2010. Emissions characteristics and cancer risks of polycyclic aromatic hydrocarbon emissions from diesel-fueled vehicles complying with recent regulations. *Journal of Health Science* 56, 200-207.

McDonald, J., Zielinska, B., Fujita, E.M., Sagebiel, J.C., Chow, J.C., & Watson, J.G., 2000. Fine Particle and Gaseous Emission Rates from Residential Wood Combustion. *Environ. Sci. Technol.* 34, 2080-2091

Nielsen, O.-K., Winther, M., Mikkelsen, M.H., Hoffmann, L., Nielsen, M., Gyldenkerne, S., Fauser, P., Plejdrup, M.S., Albrektsen, R., Hjelgaard, K. & Bruun, H.G.. 2011: Annual Danish Informative Inventory Report to UNECE. Emission inventories from the base year of the protocols to year 2009. National Environmental Research Institute, Aarhus University. 601 pp. – NERI Technical Report No. 821.

Olesen, H.R., Wählin, P., & Illerup, J.B., 2010. Brændefyrings bidrag til luftforurening. Nogle resultater fra projektet WOODUSE. Danmarks Miljøundersøgelser, Aarhus Universitet. 71 s. Faglig rapport fra DMU nr. 779.

<http://www.dmu.dk/Pub/FR779.pdf>

Skov, H., Hansen, A.B., Lorenzen, G., Andersen, H.V., Løfstrøm, P., & Christensen, C.S., 2001a. Benzene exposure and the effect of traffic pollution in Copenhagen, Denmark. *Atmospheric Environment* 35, 2463-2471.

Skov, H., Lindskog, A., Palmgren, F., & Christensen, C.S., 2001b. An overview of common used methods for measuring benzene in ambient air, *Atm. Env.* vol 35. pp. S141-S148.

Yamasaki, H., Kuwata, K., & Miyamoto, H., 1982. Effects of ambient temperature on aspects of airborne polycyclic aromatic hydrocarbons. *Environmental Science and Technology* 16, 189-194.

[Tom side]

SUPPLERENDE MÅLINGER TIL LUFTOVERVÅGNING UNDER NOVANA – BENZEN OG PAH

Rapporten præsenterer resultater fra projekt, som AU har gennemført for Miljøstyrelsen. formålet med projektet var at gennemføre en række målekampagner for på den måde at bedre at kunne vurdere overvågningsbehov for PAH og benzen i relation til EU's luftkvalitetsdirektiver. Resultaterne viste at middelmålingerne af benzen ligger på omtrent samme niveau i Danmarks fire største byer og at koncentrationerne ligger såvel under grænseværdien (5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$), som under den nedre vurderingstærskel (2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$).

Rapporten angiver en metode til objektiv estimering af benzenkoncentrationen ud fra målinger af CO. Metoden vil kunne anvendes til, at opfylde overvågningsbehov for benzen i de zoner, hvor der ikke foretages målinger af benzen. Målinger af PAH, navnlig benzo[a]pyren, er blevet foretaget gennem et helt år i periode n 2010-2011 i brændevædsområdet i Jyllinge. Koncentrationerne af benzo[a]pyren i Jyllinge er næsten en faktor tre højere end på H.C. Andersens Boulevard. Koncentrationerne af benzo[a]pyren i Jyllinge ligger på 0,6 ng/m^3 , hvilket svarer til den øvre vurderingstærskel (0,6 ng/m^3) og ligger 40% under målværdien (1 ng/m^3). Der er på basis af dette behov for at revurdere overvågningen af PAH i delprogram for luft under NOVANA. Målinger af PM_{10} viste at niveauerne i Jyllinge, Lille Valby/Risø og HCØ alle ligger på et niveau omkring 20-22 $\mu\text{g}/\text{m}^3$.