

University of Groningen

Field observations of aerosol physical and chemical properties in the Netherlands

Liu, Xinya

DOI:
[10.33612/diss.1144463961](https://doi.org/10.33612/diss.1144463961)

IMPORTANT NOTE: You are advised to consult the publisher's version (publisher's PDF) if you wish to cite from it. Please check the document version below.

Document Version
Publisher's PDF, also known as Version of record

Publication date:
2024

[Link to publication in University of Groningen/UMCG research database](#)

Citation for published version (APA):

Liu, X. (2024). *Field observations of aerosol physical and chemical properties in the Netherlands*. [Thesis fully internal (DIV), University of Groningen]. University of Groningen.
<https://doi.org/10.33612/diss.1144463961>

Copyright

Other than for strictly personal use, it is not permitted to download or to forward/distribute the text or part of it without the consent of the author(s) and/or copyright holder(s), unless the work is under an open content license (like Creative Commons).

The publication may also be distributed here under the terms of Article 25fa of the Dutch Copyright Act, indicated by the "Taverne" license. More information can be found on the University of Groningen website: <https://www.rug.nl/library/open-access/self-archiving-pure/taverne-amendment>.

Take-down policy

If you believe that this document breaches copyright please contact us providing details, and we will remove access to the work immediately and investigate your claim.

Downloaded from the University of Groningen/UMCG research database (Pure): <http://www.rug.nl/research/portal>. For technical reasons the number of authors shown on this cover page is limited to 10 maximum.

Samenvatting

Het primaire doel van dit proefschrift is om de fysische en chemische kenmerken van aerosolen in Nederland te onderzoeken, inclusief hun chemische samenstelling, grootteverdeling en optische eigenschappen. Het onderzoek in dit proefschrift begon met een veldexperiment, namelijk de Ruisdael Intensive Trace-gas and Aerosol (RITA) campagne in 2021. Het doel was om een reeks aerosolinstrumenten te evalueren om de betrouwbaarheid van de observatiegegevens te waarborgen en de lokale aerosolen samenstelling en concentratie nauwkeurig te beoordelen. Het onderzoek ging vervolgens verder met het onderzoeken van de verticale verdeling van de optische eigenschappen van aerosolen door berekende profielen te combineren met door lidar verkregen profielen. De berekende profielen waren gebaseerd op goed geëvalueerde grondgegevens van de RITA-2021 campagne. Tot slot werd het onderzoek uitgebreid met de analyse van langetermijnobservatiegegevens om een uitgebreid begrip te krijgen van de eigenschappen van aerosolen, met name de deeltjesgrootteverdeling in Nederland.

In Hoofdstuk 2 hebben we verschillende online en offline aerosol meetinstrumenten toegepast, met een bijzondere focus op de evaluatie van de time-of-flight aerosol chemische species monitor (TOF-ACSM) uitgerust met een $PM_{2.5}$ aerodynamische lens en een capture vaporizer. Offline filteranalyse toonde een uitstekende overeenstemming met online ACSM-metingen, met R^2 waarden variërend van 0.87 tot 0.99 voor NH_4^+ , NO_3^- en SO_4^{2-} . De bias in de concentraties van secundaire anorganische aerosolen was minder dan 10%, wat aanzienlijk beter is dan de nominale nauwkeurigheid van $\pm 30\%$ die uit eerdere ACSM-gegevens werd gerapporteerd. Daarom wordt deze geavanceerde ACSM-configuratie aanbevolen voor routinematige monitoring van de chemische bestanddelen van $PM_{2.5}$. Bovendien maakt de uitstekende prestatie verdere kwantificering van de lokale niet-refractaire (NR)- $PM_{1.0}$ en NR- $PM_{2.5}$ mogelijk. De gemiddelde massaconcentraties waren $4.11 \pm 3.32 \mu\text{g m}^{-3}$ voor NR- $PM_{1.0}$ en $5.27 \pm 3.98 \mu\text{g m}^{-3}$ voor NR- $PM_{2.5}$ tijdens de RITA-2021 campagne. Gemiddeld bestond NR- $PM_{1.0}$ uit 70%–80% van NR- $PM_{2.5}$, met organische stoffen (>33%) als de dominante component, gevolgd door nitraat (>27%), sulfaat (~18%) en ammonium (~17%). De chemische samenstelling is echter afhankelijk van de grootte, met een hogere massafractie van organische koolstof maar een lagere fractie van nitraat in $PM_{1.0}$ in vergelijking met $PM_{2.5}$. Bovendien werden sterke correlaties ($R^2 > 0.9$) waargenomen tussen verschillende online metingen, hoewel de bias varieerde met de relatieve luchtvochtigheid. Hogere relatieve luchtvochtigheid resulteerde in een verhoogde hygroscopische groei, wat leidde tot een kleinere droge grensgrootte van de deeltjes, die iets verschilde tussen verschillende inlaten (bijv. impactoren versus cyclonen). Om dit probleem te voorkomen, adviseren we het gebruik van uniforme grensgroottemethoden voor

verschillende instrumenten om de vergelijkbaarheid van metingen en de consistentie van langetermijnobservaties te waarborgen.

In Hoofdstuk 3 hebben we de verticale verdeling van aerosol optische eigenschappen onderzocht met als doel deze eigenschappen te voorspellen door metingen vanaf de grond (chemische samenstelling en deeltjesgrootteverdeling) te combineren met ECMWF-meteorologische gegevens en deze vervolgens te vergelijken met lidar-verkregen gegevens. De optische eigenschappen omvatten de verstrooiingscoëfficiënt, terugverstrooiingscoëfficiënt, extinctiecoëfficiënt en lidar-verhouding. De voorspelde resultaten werden eerst gevalideerd aan de hand van TSI-integrerende nephelometerobservaties onder droge omstandigheden. Er werd een goede overeenkomst bereikt, met hellingen voor de verstrooiingscoëfficiënt tussen 0.84 en 0.96 ($R^2 \geq 0.90$) en voor de terugverstrooiingscoëfficiënt tussen 1.01 en 1.18 ($R^2 \geq 0.67$) bij verschillende golflengten. Vervolgens vergeleken we de voorspelde resultaten met 26 aerosol optische profielen van Raman-lidarmetingen, waarbij we ontdekten dat voorspelde en verkregen profielen (terugverstrooiings- en extinctiecoëfficiënten) ongeveer 35% van de tijd overeenkwamen. De voorspelde lidar-verhoudingen kwamen echter vaak goed overeen met de verkregen profielen, ondanks de aanzienlijke verschillen in de terugverstrooiings of extinctieprofielen. De verschillen tussen de voorspelde en verkregen lidar-verhoudingen waren over het algemeen binnen $\pm 30\%$ voor alle gevallen in onze studie. Deze benadering, die gebruikmaakt van routinematige aerosol meetgegevens, valideert niet alleen lidar metingen, maar overbrugt ook de kloof tussen in-situ metingen en lidar-remote sensing. Het helpt bij het uitbreiden van extinctie profielen naar lagere hoogtes en heeft het potentieel om de berekeningen van aerosol optische diepte te ondersteunen. Deze methode kan ook worden toegepast op meer aerosol meetstations voor de voorspelling en validatie van aerosol optische eigenschappen over langere perioden in verschillende omgevingen.

In Hoofdstuk 4 hebben we twee jaar aan aerosol gegevens geanalyseerd die zijn verzameld van twee atmosferische observatoria in Nederland, waaronder een landelijke locatie (Cabauw) en een afgelegen kustlocatie (Lutjewad). Dit onderzoek richtte zich op de deeltjesgrootteverdeling en de chemische samenstelling van aerosolen en precursor gassen, evenals meteorologische gegevens om de processen te begrijpen die de aerosol concentraties in Nederland beheersen. De resultaten toonden een goede correlatie ($R^2 = 0.62$) aan tussen de concentraties van grote aerosoldeeltjes (100-800 nm) bij Lutjewad en Cabauw. Dit wees erop dat langeafstandsvervoer of regionale vormingsmechanismen voornamelijk bijdroegen aan de deeltjesconcentraties in dit formaat. Dit verschil werd voornamelijk toegeschreven aan ultrafijne deeltjes (UFPs), aangezien UFPs meer dan 80% van de totale deeltjesconcentratie op beide locaties uitmaakten. In het bijzonder vertegenwoordigden deeltjes in het nucleatiegroottebereik (< 25 nm) gemiddeld 35% van de UFPs bij Lutjewad en 46% van de UFPs bij Cabauw. Hoge concentraties UFPs in Cabauw werden vaak in verband gebracht met wind uit een specifieke richting, zoals de luchthaven Schiphol, de haven van Rotterdam en de nabijgelegen stad Utrecht. Opmerkelijk was de sterke toename

van deeltjes in het nucleatiegroottebereik tijdens de ochtendspits op weekdays, wat duidde op verkeersemisies als een primaire of secundaire bron van deeltjes met diameters < 25 nm. Clusteranalyse van de deeltjesgrootteverdeling toonde een bijbehorende nucleatiemoduscluster aan met een hoge frequentie van voorkomen in de ochtenduren. Over het algemeen gaf de analyse van de vorming van nieuwe deeltjes (NPF) aan dat zonnestraling de belangrijkste factor is in NPF op beide locaties. NPF bij Lutjewad werd echter ook significant beïnvloed door de beschikbaarheid van SO₂, terwijl deze invloed niet echt te zien was bij Cabauw. Al met al onderstreept de studie de noodzaak voor verder onderzoek naar de mechanismen voor de vorming van nieuwe deeltjes die samenhangen met verkeersemisies, evenals hun implicaties voor de volksgezondheid en klimaateffecten.

Samenvattend richtte dit proefschrift zich op de fysische en chemische eigenschappen van aerosolen die zijn waargenomen via veldmetingen in Nederland en werden de aerosol eigenschappen vanuit verschillende aspecten besproken, zoals meting en modelvoorspelling. De inzichten die zijn verstrekt, zijn bijzonder relevant voor aerosol eigenschappen in de regio, maar sommige conclusies zijn ook breder toepasbaar.

Vertaald door Jan Mulder