

MNP rapport 500093005/2006

**PM<sub>10</sub> in Nederland**

Rekenmethodiek, concentraties en onzekerheden

J. Matthijsen en H. Visser

Contact:

J. Matthijsen

Milieu- en Natuurplanbureau (MNP)

[Jan.Matthijsen@mnp.nl](mailto:Jan.Matthijsen@mnp.nl)

Dit onderzoek werd uitgevoerd in het kader van project M500093, Beleidsevaluatie en Kennisbasis Verzuring en Grootchalige luchtverontreiniging.

## Voorwoord

Fijn stof levert een belangrijke bijdrage aan de milieugerelateerde ziektelast. Ter bescherming van de volksgezondheid zijn daarom voor fijn stof (PM<sub>10</sub>) Europese grenswaarden vastgesteld, die vanaf 2005 van kracht zijn. Ook voor PM<sub>2,5</sub> zijn recentelijk normen voorgesteld. PM<sub>10</sub>-concentraties in Nederland overschrijden in 2005 de grenswaarden. Hoewel het aantal knelpunten waarschijnlijk zal afnemen als gevolg van het gevoerde emissiereductiebeleid, worden in 2010 nog wel overschrijdingen van de PM<sub>10</sub>-grenswaarden verwacht. Met aanvullend beleid verwacht het MNP dat Nederland mogelijk in 2015 kan voldoen aan de strengste grenswaarden voor PM<sub>10</sub>.

De gevolgen zijn mogelijk groot als een grenswaarde wordt overschreden. Dat betreft niet zozeer de gezondheid: net wel of net niet voldoen aan grenswaarden levert voor gezondheid relatief weinig verschil, omdat gezondheidseffecten ook onder de grenswaarden optreden. Echter als Nederland niet op tijd voldoet aan de gestelde grenswaarden, kan het door de Europese Commissie in gebreke worden gesteld. Ook op nationaal niveau is de druk om overschrijdingen van grenswaarden te voorkomen onverminderd hoog. In Nederland is de uitvoering van grote bouwplannen nog steeds gekoppeld aan de luchtkwaliteit. Hoewel het Besluit Luchtkwaliteit van 2005 de koppeling tussen ruimtelijke ordening en de luchtkwaliteit minder knellend heeft gemaakt, blijft het mogelijk dat een overschrijding van de PM<sub>10</sub>-grenswaarde leidt tot belemmeringen bij de uitvoering van bouwplannen.

De behoefte is dus groot om fijnstofconcentraties en delen ervan nauwkeurig te kunnen vaststellen. De werkelijkheid laat echter zien dat het fijnstofdossier op alle punten grote onzekerheden bevat. Hierdoor kent de beoordeling of er sprake is van een overschrijdings situatie een grote onzekerheidsmarge.

Met dit achtergrondrapport wil het MNP deze onzekerheidsmarge in kaart brengen. Het behandelt de rekenmethodiek waarmee PM<sub>10</sub>-kaarten worden gemaakt en geeft een analyse van de bijbehorende concentraties en onzekerheden. Het rapport beoogt:

- kwaliteitsborging van de rekenmethodiek van fijn stof;
- onzekerheden rond fijn stof in kaart te brengen en te kwantificeren;
- nieuwe inzichten rond fijn stof uiteen te zetten;
- ontwikkelingen die onzekerheden in de PM<sub>10</sub>-kaarten kunnen reduceren aan te wijzen.

Dit rapport is mede tot stand gekomen dankzij de MNP-bijdrage van:  
Benno Jimmink,  
Patrick van Hooydonk en  
Wilco de Vries.

Verder bedanken de auteurs onderstaande mensen voor hun commentaar op dit rapport:  
Prof. Dr. Ir. P.J.H. Bultjes (TNO),  
Dr. M. Schaap (TNO),  
Dr. E.P. Weijers (ECN),  
Dr. H.M. ten Brink (ECN) en  
Dr. R. Hoogerbrugge (RIVM).

# Abstract

## PM<sub>10</sub> in the Netherlands

Calculation methodology, concentrations and uncertainties

Limit values for particulate matter (PM<sub>10</sub>) for reduction of adverse effects on human health are supplied in the European Air Quality Directive. When the directive came into force in 2005, PM<sub>10</sub> levels in the Netherlands still exceeded the limit values on local scale. These limit values are monitored by means of both measurements and model calculations. This report documents the results of applying the usual calculation method and describes uncertainties in making PM<sub>10</sub> maps for the Netherlands. Developments of models, measurements and emission data for improving the precision of the PM<sub>10</sub> concentrations are also indicated.

The report shows the step by step method used for making PM<sub>10</sub> maps for the Netherlands. This calculation method combines model results with PM<sub>10</sub> measurements to produce an optimal map. The map reflects therefore the following components:

- spatially detailed PM<sub>10</sub> model calculations using known European anthropogenic emissions as input and
- measurements of PM<sub>10</sub> background concentrations that form the reference level for the PM<sub>10</sub> concentrations in the map.

However, combining model results and measurements in this way has the disadvantage that systematic errors in the model results and the measurements will end up in the final PM<sub>10</sub> map. Moreover, validation of the results with independent measurements is limited. The calculated PM<sub>10</sub> concentrations based on the known anthropogenic emissions explain only about half the measured concentrations. The other half is explained by the PM<sub>10</sub> contribution from the sea (sea salt), land (crustal material) and other, mostly poorly known, sources.

After 2003 the measured PM<sub>10</sub> concentrations showed a discontinuity in the trend in rural areas, with an average concentration drop of 10 to 15% (~4 µg/m<sup>3</sup>). The report deals with this drop and indicates possible causes. It also elaborates on the consequences of this drop in meeting the limit values. The discontinuity in the trend is probably due to a combination of two factors: 1) instrument changes in the Dutch national network and 2) specific physico-chemical circumstances in the rural areas of the Netherlands.

Uncertainty in the concentrations used in PM<sub>10</sub> maps is substantial: 15 to 30% for a specific year and 20 to 40% for future assessments. The overall uncertainty along streets and highways can total 45%. Meteorological variability is a dominant, and always current, source of uncertainty in the assessment of future PM<sub>10</sub> levels, since it is not addressed in the definition of the PM<sub>10</sub> limit values.

Not yet included in the model are the sources: sea salt, crustal material, secondary organic aerosol, water and biomaterial and sources outside Europe. Estimates indicate that their contribution to PM<sub>10</sub> in the Netherlands can add up to a concentration of between 12 to 18 µg/m<sup>3</sup>. Further developments here may, therefore, increase the precision of the PM<sub>10</sub> maps. A better knowledge of anthropogenic emission levels in Europe and more accurate measurements will also contribute to more precise PM<sub>10</sub> maps.

Keywords: particulate matter, PM<sub>10</sub>, maps, methodology, uncertainty



# Inhoud

<b>Samenvatting</b>	<b>7</b>
<b>1. Inleiding</b>	<b>9</b>
<b>2. Rekenmethodiek fijn stof</b>	<b>11</b>
2.1 <i>Methodiek stapsgewijs</i>	12
2.2 <i>Emissiegegevens</i>	17
2.3 <i>OPS</i>	18
2.4 <i>Metingen in het LML</i>	20
2.5 <i>Bepaling 'Overige bronnen PM'</i>	22
2.6 <i>GCN-kaarten fijn stof 2005, 2010 en 2020</i>	29
<b>3. Trendbreuk metingen</b>	<b>31</b>
3.1 <i>PM<sub>10</sub>-metingen</i>	31
3.2 <i>Trendbreuk</i>	33
3.3 <i>Betekenis van de trendbreuk</i>	36
3.4 <i>Onderbouwing keuze 2004/2005</i>	38
3.5 <i>Mogelijke verklaringen trendbreuk</i>	41
<b>4. Alternatieve verkenningen</b>	<b>45</b>
4.1 <i>Alternatieve verkenningen PM<sub>10</sub></i>	46
4.2 <i>Methode alternatieve kalibratie</i>	46
<b>5. Onzekerheden</b>	<b>49</b>
5.1 <i>Inleiding</i>	49
5.2 <i>Onzekerheid in de metingen</i>	50
5.3 <i>Onzekerheid in OPS-resultaten</i>	50
5.4 <i>Onzekerheid in PM<sub>10</sub>-concentratie</i>	51
5.5 <i>Onzekerheid in straatbijdrage</i>	56
5.6 <i>Normoverschrijding op knelpunten</i>	57
5.7 <i>Gebruik kans op overschrijding</i>	58
<b>6. Samenstelling 'overige bronnen PM'</b>	<b>61</b>
6.1 <i>Zeezout</i>	62
6.2 <i>Bodemstof</i>	65
6.3 <i>Hemisferische bijdrage</i>	68
6.4 <i>Overig (biostof, SOA en water)</i>	68
<b>7. Conclusie</b>	<b>71</b>
<b>Literatuur</b>	<b>73</b>
<b>Bijlage A Emissiegegevens 1993-2005</b>	<b>81</b>
<b>Bijlage B Trendbreuk regionale achtergrondstations</b>	<b>85</b>
<b>Bijlage C Uitwerking hypothese</b>	<b>89</b>
<b>Bijlage D Uitwerking alternatieve kalibratie</b>	<b>97</b>
<b>Bijlage E Ontwikkelingen rekenmethodiek PM<sub>10</sub></b>	<b>101</b>



## Samenvatting

Europese richtlijnen bevatten grenswaarden om de effecten van luchtverontreiniging op de gezondheid van de mens te beperken. De luchtkwaliteit in Nederland moet sinds 2005 aan deze grenswaarden voldoen. In 2005 zijn de PM<sub>10</sub>-grenswaarden plaatselijk overschreden. In Nederland vormen zowel metingen als modelberekeningen de basis voor de vaststelling of grenswaarden al dan niet worden overschreden. De metingen en modelberekeningen van fijn stof en de onzekerheid daarin hebben extra aandacht genoten sinds de grenswaarden voor fijn stof in 2005 van kracht zijn geworden. Dit achtergrondrapport bij verschillende MNP- en RIVM-publicaties rond fijn stof behandelt de methodiek en onzekerheden waarmee PM<sub>10</sub>-kaarten voor Nederland worden gemaakt. Dit rapport beoogt de vastlegging van feiten en onzekerheden rond modelberekeningen en metingen van fijn stof. Verder streeft dit rapport ernaar duidelijk te maken welke ontwikkelingen van modelberekeningen en metingen de nauwkeurigheid van fijnstofconcentraties kunnen verbeteren.

Dit rapport beschrijft stapsgewijs hoe PM<sub>10</sub>-kaarten met grootschalige concentraties voor Nederland worden gemaakt. De rekenmethodiek combineert modelberekeningen en metingen van fijn stof. De PM<sub>10</sub>-kaart volgens deze methodiek is het optimale resultaat van:

- ruimtelijk gedetailleerde modelberekeningen van fijn stof op basis van bekende antropogene Europese bronnen;
- metingen van achtergrondconcentraties van fijn stof die het referentieniveau van de fijnstofconcentraties in de PM<sub>10</sub>-kaart bepalen.

Het combineren van modelberekeningen en metingen heeft echter als nadeel dat systematische afwijkingen in model en meting automatisch in het eindresultaat doorwerken. Ook is validatie van de resultaten met onafhankelijke metingen slechts beperkt mogelijk. Berekende concentraties verklaren ongeveer de helft van de gemeten concentratie. De andere helft, ‘overige bronnen PM’, bestaat uit de fijnstofbijdrage van zee (zeezout), land (bodestof) en andere, veelal slecht bekende, bronnen. Voor toekomstverkenningen van fijn stof is een schatting van de bijdrage door ‘overige bronnen PM’ nodig. Omdat deze schatting echter zeer onzeker is, wordt ze in de tijd constant verondersteld.

Analyse van de fijnstofmetingen en modelberekeningen voor de periode 1993-2005 leert onder andere dat er een trendbreuk is in de fijnstofmeetreeks van stations in het landelijk gebied van 1993-2003 naar 2004/2005. Aannemelijkheid, mogelijke oorzaken en gevolgen van de trendbreuk worden in het onderliggende rapport uitgewerkt. Na 2003 zijn de gemeten concentraties in het landelijk gebied gemiddeld met 10 tot 15 procent ( $\sim 4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) gedaald. Deze verlaging werkt navenant door in de fijnstofverkenningen voor 2010 en later. Het gevolg van de trendbreuk is dat de haalbaarheid van de grenswaarden in zicht is gekomen: met extra lokaal, nationaal en Europees beleid kunnen knelpunten waar de grenswaarden nog worden overschreden, tegen 2015 opgelost zijn. Hiervoor leek dit zelfs in 2020 niet haalbaar.

De oorzaak van de waargenomen trendbreuk moet waarschijnlijk worden gezocht in een combinatie van twee factoren: 1) wijzigingen die doorgevoerd zijn in het landelijk meetnet luchtkwaliteit om te voldoen aan Europese meetvoorwaarden en 2) specifieke lokale fysisch-chemische omstandigheden. Nader onderzoek zal moeten uitwijzen wat de precieze oorzaak is geweest. Bijstellingen in de toekomst van de meetreeks voor én na 2003 zijn daarom nu nog niet uit te sluiten.

Er is veel aandacht besteed om de onzekerheid in de fijnstofconcentraties vast te stellen voor zowel historische als toekomstige jaren. Ook is de onzekerheid in de fijnstofconcentraties langs snelwegen en stadswegen in kaart gebracht. De onzekerheid in jaargemiddelde fijnstof-achtergrondconcentratie voor een specifiek jaar is 15 tot 30 procent. Voor het jaar 2005 komt dit neer op gemiddeld  $6.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . De fijnstofverkenningen hebben een grotere onzekerheid van  $7\text{-}8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Dit correspondeert met een onzekerheidsmarge van ongeveer 30 procent (20 procent in gebieden met hoge  $\text{PM}_{10}$ -concentraties tot 40 procent in het noorden van Nederland). De onzekerheid in de  $\text{PM}_{10}$ -concentratie langs snelwegen en stadswegen is nog hoger (tot 45 procent) door onzekerheden in de straatbijdrage zoals die wordt berekend met het CAR-model.

Variaties in de weersomstandigheden leiden tot een dominante bijdrage aan de onzekerheid bij verkenningen ( $4.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ). Dit betekent dat inspanningen om onzekerheden te reduceren in het meet- en modelinstrumentarium daarom bij verkenningen een beperkt effect zullen sorteren. Het betekent ook dat zich in de toekomst geregeld weersomstandigheden zullen voordoen die overschrijdingen van grenswaarden tot gevolg hebben op plaatsen waar de huidige verkenningen van fijn stof, die voor gemiddelde weersomstandigheden zijn bepaald, geen overschrijdingen laten zien.

Verder worden in dit rapport de voor Nederland belangrijkste bijdragen door ‘overige bronnen  $\text{PM}$ ’ aan  $\text{PM}_{10}$  samengevat. Het gaat hierbij om zeezout, bodemstof, de bijdrage van bronnen buiten Europa, biostof, secundair organisch aërosol en water. Ruwe schattingen voor het totaal lopen uiteen van 12 tot  $18 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Tot slot geeft het rapport achtergrondinformatie bij de zeezoutaftrek. Bij het bepalen of de grenswaarden van fijn stof worden overschreden, is het toegestaan de bijdrage van zeezout aan  $\text{PM}_{10}$  buitenbeschouwing te laten waardoor het aantal overschrijdingen van de grenswaarden daalt.

De relatief grote  $\text{PM}_{10}$ -onzekerheidsmarge kan alleen worden verkleind als de nauwkeurigheid van zowel emissies, als metingen als modellen wordt verbeterd. Het gaat dan om nauwkeurigere emissiegegevens van antropogene  $\text{PM}_{10}$ -bronnen zoals landbouw en het kwantificeren van natuurlijke bronnen van bijvoorbeeld zeezout en bodemstof. Verder kunnen de modelberekeningen worden verbeterd door de samenstelling te bepalen van het deel ‘overige bronnen  $\text{PM}$ ’ door middel van modelonderzoek in combinatie met nauwkeurigere metingen van  $\text{PM}_{10}$  (totaal en samenstelling). Verder kan, door vooral een betere beschrijving in ruimte en tijd van verkeeremissies, de lokale bijdrage aan de  $\text{PM}_{10}$ -concentratie nauwkeuriger worden berekend.



# 1. Inleiding

Dit rapport, PM<sub>10</sub> in Nederland, behandelt de rekenmethodiek waarmee PM<sub>10</sub>-kaarten worden gemaakt en geeft een analyse van de bijbehorende concentraties en onzekerheden.

Het rapport beoogt:

- kwaliteitsborging van de rekenmethodiek van fijn stof;
- onzekerheden rond fijn stof in kaart te brengen en te kwantificeren;
- nieuwe inzichten rond fijn stof uiteen te zetten;
- ontwikkelingen die onzekerheden in de PM<sub>10</sub>-kaarten kunnen reduceren aan te wijzen.

Het MNP produceert jaarlijks kaarten met generieke concentraties voor Nederland (GCN) van het jaar ervoor en verkenningen op basis van toekomstscenario's voor onder andere fijn stof (<http://www.mnp.nl>). Dit is een achtergrondrapport bij de recente fijnstofrapportages van het MNP en het RIVM (Buijsman et al., 2005; Hammingh et al., 2005; Folkert et al., 2005; MNP, 2006; Velders et al., 2006a, b).

Fijn stof veroorzaakt problemen in Nederland, maar de concentratieniveaus zijn onzeker. De fijnstofconcentraties in Nederland behoren tot de hoogste in Europa. Uit metingen blijkt dat de EU-grenswaarde voor daggemiddelde fijnstofconcentraties wordt overschreden op stad- en straatlocaties. Verder laten scenario-analyses zien dat de knelpunten vóór 2010 met het huidige beleid waarschijnlijk niet zullen zijn opgelost (Velders et al., 2006b). Bovendien kan overschrijding van een luchtkwaliteitsgrenswaarde in Nederland een reden zijn om bouwplannen tegen te houden (Koelemeijer et al., 2005). Het fijnstofdossier raakt dus twee belangrijke maatschappelijke belangen: de bescherming van de gezondheid en economische ontwikkeling. Tegelijkertijd kennen de emissies, metingen, verspreidingsmodellen en de gezondheidseffecten van fijn stof grote wetenschappelijke onzekerheden, die het moeilijk maken om de hoogte van de fijnstofconcentraties nauwkeurig vast te stellen. Recentelijk zijn, bijvoorbeeld, op basis van nieuwe inzichten de verkenningen van fijn stof met 10-15% naar beneden bijgesteld (MNP, 2006a).

Modelberekeningen en metingen spelen een belangrijke rol in het beleid rond fijn stof. Dit blijkt uit de volgende feiten:

- De toetsing of grenswaarden al dan niet worden overschreden, gebeurt in Nederland aan de hand van metingen van de fijnstofconcentraties in het landelijk meetnet luchtkwaliteit (LML) van het RIVM en modelberekeningen.
- Ook worden modelberekeningen gebruikt bij de rapportages rond de luchtkwaliteit aan de Europese Commissie.
- De GCN-kaarten worden gebruikt als input voor lokale luchtkwaliteitsberekeningen die nodig zijn voor rapportageverplichtingen in het kader van het Besluit Luchtkwaliteit (Staatsblad, 2005).
- Modelberekeningen worden gebruikt bij evaluatie en verkenning van het milieu(beleid) en zijn onmisbaar bij de interpretatie van meetgegevens.
- Toetsing van (bouw)plannen aan luchtkwaliteitsnormen in verband met vergunningverlening gebeurt vaak op basis van modelberekeningen.

Het is daarom van belang om de feiten met betrekking tot de modelberekeningen en metingen vast te leggen en de onzekerheden die het fijnstofdossier omgeven zoveel mogelijk te

kwantificeren. Dit rapport draagt daar aan bij en geeft aan wat de mogelijkheden zijn om de onzekerheden verder te reduceren.

Dit rapport beschrijft stapsgewijs hoe de GCN-kaarten van fijn stof voor Nederland worden gemaakt. Op basis van de bekende antropogene bronnen in Europa berekenen verspreidingsmodellen ongeveer de helft van de gemeten concentraties. Het verschil tussen de metingen en de berekende waarden levert vervolgens een schatting voor de andere helft op, 'overige bronnen PM'. Omdat deze kalibratie aan metingen een belangrijk onderdeel vormt in de rekenmethodiek, is in dit rapport het 'hoe en waarom' ervan uitgewerkt.

Verder vindt u hier een analyse van fijn stof voor de reeks 1993-2005, op basis van berekeningen en metingen. De analyse leert onder andere dat er een trendbreuk is opgetreden in de fijnstofmeetreeks van stations in het landelijk gebied van 1993-2003 naar 2004/2005. Dit rapport beschrijft de aannemelijkheid van de trendbreuk, waaronder de significantie van de breuk en mogelijke oorzaken en gevolgen. De precieze oorzaak is overigens nog niet vastgesteld.

Wegens de trendbreuk moest voor de toekomstverkenningen van fijn stof een nieuwe schatting worden gemaakt van de bijdrage door 'overige bronnen PM'. Hiervoor zijn de gegevens van de jaren 2004 en 2005 gebruikt. Als gevoeligheidsstudie is ook een alternatief uitgewerkt waarbij gegevens van de hele reeks 1993-2005 zijn gebruikt, ongeacht de trendbreuk.

Het rapport zet uiteen hoe de onderliggende onzekerheden doorwerken in de onzekerheid van de berekende totale fijnstofconcentraties. Het gaat hierbij om de onzekerheid in:

- het OPS-model (Van Jaarsveld, 2004);
- het CAR model (Eerens et al., 1993; Jonker en Teeuwisse, 2006);
- de metingen;
- de weersomstandigheden.

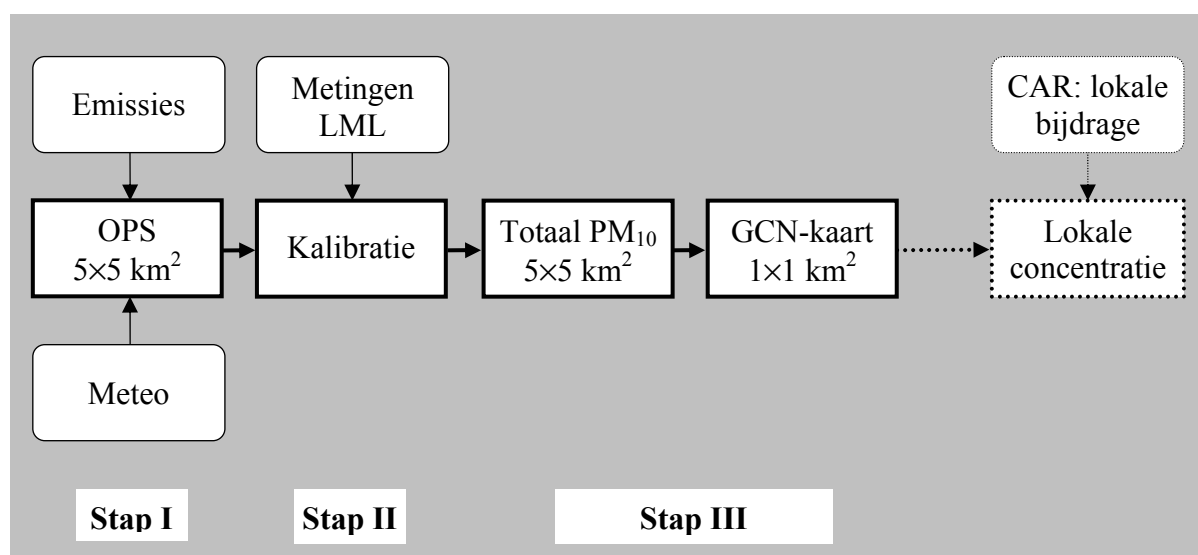
Met deze analyse zijn onzekerheidskaarten samengesteld en, meer integraal, kaarten met de kans op overschrijding van de grenswaarde voor daggemiddelde fijnstofconcentraties. Naast de onzekerheid in de fijnstofconcentraties van de GCN-kaarten geeft het rapport ook de berekende onzekerheden in fijnstofconcentraties langs snelwegen en stadswegen.

Verder worden in dit rapport de voor Nederland belangrijkste bijdragen door 'overige bronnen PM' aan  $PM_{10}$  samengevat. Het gaat hierbij om zeezout, bodemstof, de bijdrage van bronnen buiten Europa, biostof, secundair organisch aerosol en water. Tot slot geeft het rapport achtergrondinformatie bij de aftrek van de bijdrage door zeezout aan de fijnstofconcentratie, zoals die is vastgelegd in de meetregeling (Staatscourant, 2005) bij het recente Besluit Luchtkwaliteit.

## 2. Rekenmethodiek fijn stof

Fijnstofdeeltjes hebben, afhankelijk van de grootte, een atmosferische verblijftijd in de orde van dagen tot weken. Daardoor kan fijn stof zich over afstanden van duizenden kilometers verplaatsen en is fijn stof een probleem op continentale schaal. Het instrumentarium waarmee GCN-kaarten voor fijn stof worden afgeleid, berekent jaargemiddelde concentraties voor het hele Nederlandse grondgebied op basis van brongegevens en meteorologische en andere geofysische data voor geheel Europa.

Figuur 2.1 geeft schematisch weer hoe de grootschalige concentratiekaarten voor Nederland tot stand komen. De methodiek van berekening wordt in dit hoofdstuk beschreven en vormt daarmee een uitbreiding en detaillering op de beschrijving in Velders et al. (2006b). Verder worden fijnstofresultaten gepresenteerd van een analyse voor de periode 1993-2005.



*Figuur 2.1 Schematische weergave van de stappen die worden gezet om van brongegevens tot een grootschalige concentratiekaart (GCN-kaart) te komen voor fijn stof. Deze kaart is vervolgens invoer bij de berekening van de lokale concentraties.*

Fijnstofconcentraties op achtergrondlocaties in Nederland kunnen met modellen voor ongeveer de helft worden verklaard door de bekende (geregistreerde) antropogene bronnen in Europa. De andere helft bestaat grotendeels uit een min of meer natuurlijke bijdrage. Dit verklaart het grote verschil tussen gemeten en berekende, antropogene, fijnstofconcentraties. Een dergelijk verschil tussen metingen en berekeningen bestaat bij alle internationaal gebruikte modellen (EU, 1997; EU, 2004). Er zijn modellen waarmee onderzoeksmatig wordt geprobeerd de bijdrage door 'overige bronnen PM' in kaart te brengen. De kwaliteit en nauwkeurigheid van modelinvoer en modelresultaten voor enerzijds antropogeen fijn stof is echter nog veel beter dan voor anderzijds fijn stof uit overige bronnen.

Berekeningen met het rekenmodel OPS (Van Jaarsveld, 2004) voor zwaveldioxide en stikstofoxiden, stoffen die bijna alleen van antropogene oorsprong zijn, komen wel goed overeen met metingen. Dit geeft aan dat het OPS-model voldoende kwaliteit heeft om de verspreiding van *antropogene* fijnstofemissies te beschrijven. De hoogte van de berekende antropogene bijdrage aan de fijnstofconcentratie is daardoor als vrij betrouwbaar te bestempelen. Dit wordt ondersteund door metingen en berekeningen van specifieke fracties van fijn stof (zie paragraaf 2.3). De berekende concentraties van primair fijn stof blijven echter relatief onzeker, omdat enerzijds de emissies een relatief grote onzekerheid kennen en anderzijds omdat de berekende concentraties niet rechtstreeks zijn te valideren.

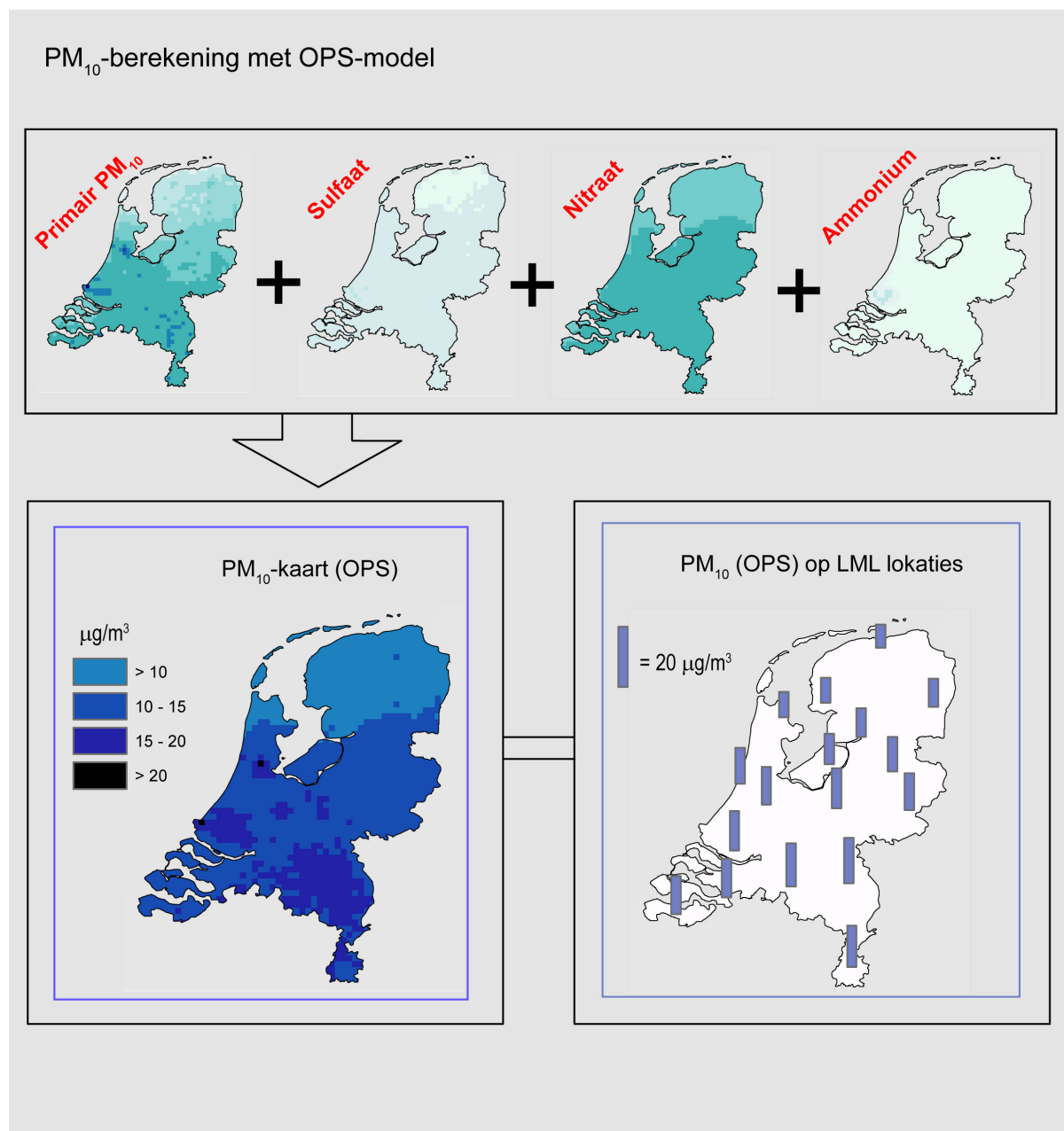
Het ontbrekende deel, ‘overige bronnen PM’, is deels van natuurlijke oorsprong. De gemiddelde samenstelling en de oorsprong van de bijdrage door ‘overige bronnen PM’ in Nederland is onderzocht (Visser et al., 2001) maar kent nog vele vraagtekens. De bijdrage van ‘overige bronnen PM’ bevat bestanddelen van fijn stof waarvan de bronnen niet zijn meegenomen in het model maar die wel in de lucht aanwezig zijn zoals zeezout, mineraal stof, water, bijdrage van bronnen buiten Europa et cetera. Hoofdstuk 6 behandelt de samenstelling van ‘overige bronnen PM’ in meer detail. Deze bronnen zijn in berekeningen tot dusver niet meegenomen, deels door gebrek aan proceskennis maar vooral door gebrek aan betrouwbare emissiegegevens. Daarbij gaat het om een gebrek aan kennis van de bronkarakteristieken, zoals sterkte en verdeling in tijd en ruimte. Om toch landsdekkende fijnstofkaarten te kunnen maken met een zo realistisch mogelijke concentratieverdeling is gekozen de fijnstofmetingen als referentie te gebruiken en hierop de berekeningen te kalibreren.

Modelresultaten voor Nederland worden gekalibreerd met meetgegevens op regionale achtergrondlocaties. De keuze voor regionale achtergrond locaties is gebaseerd op de aanname dat ‘overige bronnen PM’ een netto bijdrage aan fijn stof geven die gelijkmatig is verdeeld over Nederland. Door deze kalibratie is de GCN-kaart van fijn stof opgebouwd uit een berekend deel en een deel dat de bijdrage door die ‘overige bronnen PM’ representeert. Een negatief bijverschijnsel van het combineren van modelresultaten met meetgegevens is dat de resulterende concentraties (de GCN-kaart) onbekende systematische meet- en modelafwijkingen bevatten. De recente wijziging in de GCN-kaart voor 2010 is een bijstelling door een systematische afwijking. In hoofdstuk 3 zal de basis voor deze wijziging nader worden toegelicht.

## 2.1 Methodiek stapsgewijs

**Stap I:** berekeningen met het OPS-model voor de achtergrondconcentratie in landelijk gebied en stedelijke omgeving. Hierbij worden bronbijdragen uit heel Europa meegenomen. De bijdrage aan de primaire en secundaire fracties (sulfaat, nitraat, ammonium) worden afzonderlijk berekend per land en per brongroep. Vervolgens worden deze bijdragen gesommeerd om de totaal berekende fijnstofconcentratie te krijgen (Figuur 2.2). De rekenresolutie is  $5 \times 5\text{-km}^2$ . Als laatste onderdeel van stap I worden berekende concentraties geselecteerd van gridcellen waarin een regionaal achtergrondstation ligt.

Als invoer voor het model zijn onder andere gegevens nodig over emissies, zoals sterkte en ruimtelijke en temporele verdeling van de bronnen, zowel voor Nederland als voor de andere Europese landen. Ook meteorologische gegevens zijn nodig. Voor berekeningen van jaren uit het verleden worden meteorologische gegevens van het betreffende jaar gebruikt.



*Figuur 2.2 **Stap I:** Berekening met het OPS-model van landsdekkende kaarten van verschillende PM<sub>10</sub>-fracties: primair fijn stof, sulfaat, nitraat en ammonium. Sommatie tot de OPS PM<sub>10</sub>-kaart. Selectie van OPS-concentraties uit gridcellen met regionale achtergrondstations (LML). Deze OPS-concentraties worden in stap II gebruikt bij de kalibratie. De hier getoonde kaarten en cijfers betreffen het jaar 2005.*

Voor berekeningen in toekomstige jaren wordt langjarig gemiddelde meteorologische invoer gebruikt (1990-1999).

**Stap II:** kalibratie van de berekende fijnstofconcentraties aan metingen uit het landelijk meetnet luchtkwaliteit (LML). Hiertoe zijn in stap I de OPS-concentraties geselecteerd van die gridcellen met een regionaal achtergrondstation. De bijdrage door ‘overige bronnen PM’ (OBP<sub>*i*</sub>) op de plek van een regionaal achtergrondstation *i* is gedefinieerd door het verschil van

de meting op het station ( $LML_i$ ) en de berekende concentratie ( $OPS_i$ ) uit de gridcel waarin het meetstation zich bevindt:

$$OBP_i = LML_i - OPS_i$$

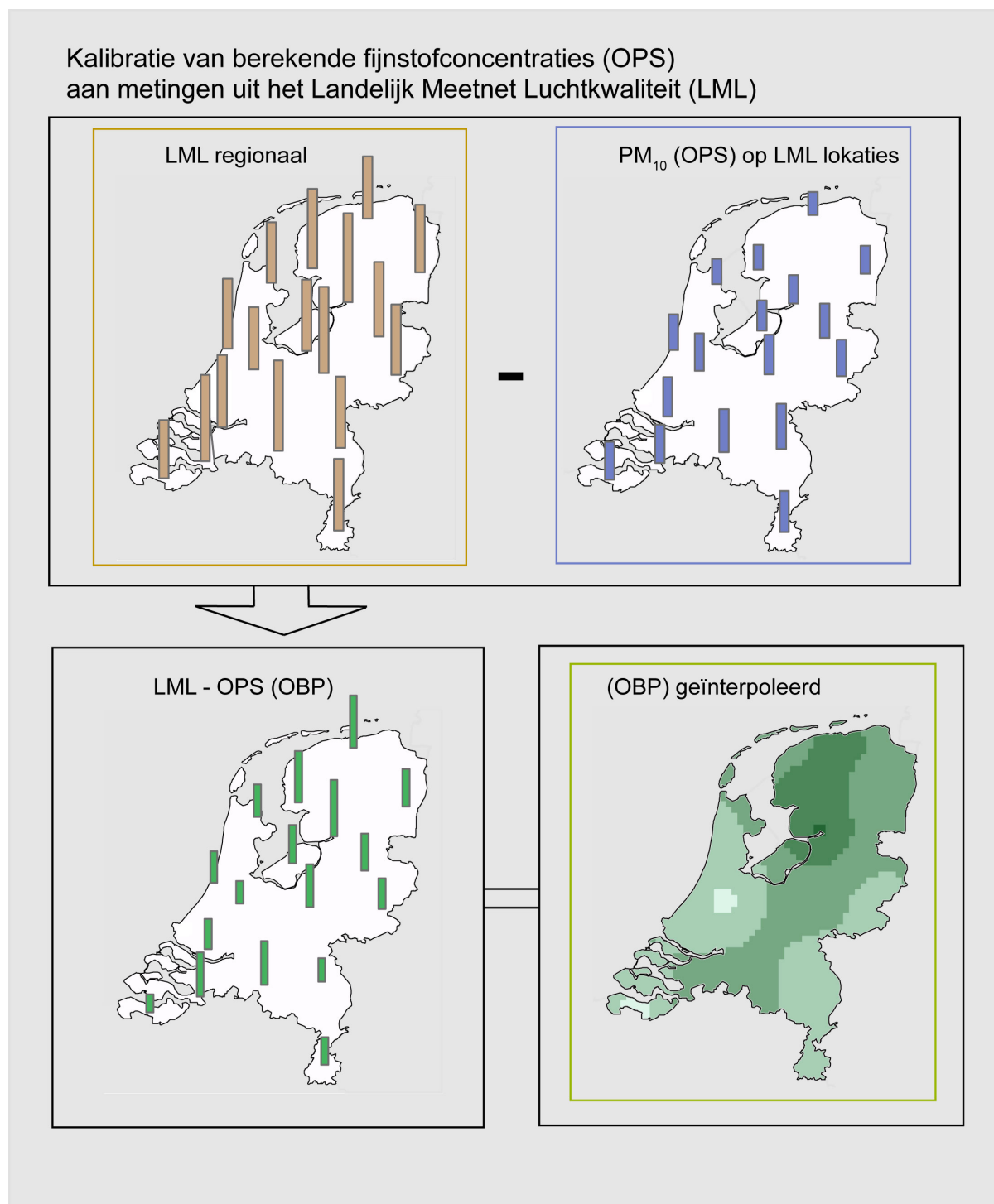
De gevonden verschillen worden vervolgens geïnterpoleerd tot een landsdekkende verschilkaart of OBP-kaart (Figuur 2.3). De waarden  $OBP_i$  op de verschillende locaties zijn geïnterpoleerd met behulp van Kriging (Kaluzny et al., 1998). Deze methodiek is een verbetering ten opzichte van de eerder gebruikte methode omdat bij de interpolatie onzekerheid in de te interpoleren waarden worden verdisconteerd. Er is gekozen om de eenvoudigste Kriging-methode te gebruiken, namelijk Ordinary Kriging. Bij toepassing van deze methode wordt verondersteld dat de OBP-kaart a priori géén ruimtelijke gradiënt kent. Deze methode doet recht aan de gegevens inclusief onzekerheid.

De statistische toets of er wel/niet een ruimtelijke gradiënt zit in de verschilwaarden,  $OBP_i$ , blijkt bij een marge van 2-sigma onbeslist. Dat wil zeggen dat bij de gebruikelijke statistische 2-sigma marge er geen uitgesproken aanwijzing is om wel of niet een ruimtelijke gradiënt in de OBP-waarden te veronderstellen. De afweging om de methode zónder ruimtelijke gradiënt te gebruiken, is gebaseerd op de volgende punten:

- De  $OBP_i$  waarden bevatten mogelijk systematische afwijkingen. Correctie hiervoor zou de ruimtelijke gradiënt kunnen laten verdwijnen of in ieder geval verkleinen. De genoemde statistische toets zou dan de keus voor een methode zonder ruimtelijke gradiënt zelfs sterker ondersteunen. Aanwijzing voor systematische afwijkingen is de specifieke ruimtelijke variatie in de correctiefactoren voor de fijnstofmetingen terwijl een constante factor van 1.3 wordt toegepast (zie bijvoorbeeld De Jonge et al., 2005). De precieze grootte van deze correctiefactor per regionaal achtergrondstation is nu nog niet volledig in kaart gebracht en begrepen waardoor correctie, op voorhand, niet is overwogen.
- De kennisbasis is onvoldoende om een uitspraak te doen over de ruimtelijke verdeling van  $OBP_i$ . Zeezout, bodemstof, hemisferische bijdrage, water, secundair organisch aërosol, biostof, et cetera, elk deel heeft, een onbekende eigen verdeling over Nederland. Alleen voor zeezout is een redelijke schatting gemaakt van de lange termijn gemiddelde ruimtelijke verdeling.
- Tot nu toe is er geen hard fysisch-chemisch bewijs voor een ruimtelijke gradiënt. Eerder onderzoek in het kader van het Nationaal Aërosol Programma (NAP) leverde geen aanwijzingen voor een gradiënt in het totaal van deze bijdragen (Visser et al., 2001).
- Er is gekozen voor het principe dat bij een onbesliste uitslag het gebruik van het *eenvoudigste* model dat recht doet aan de metingen, de voorkeur geniet.

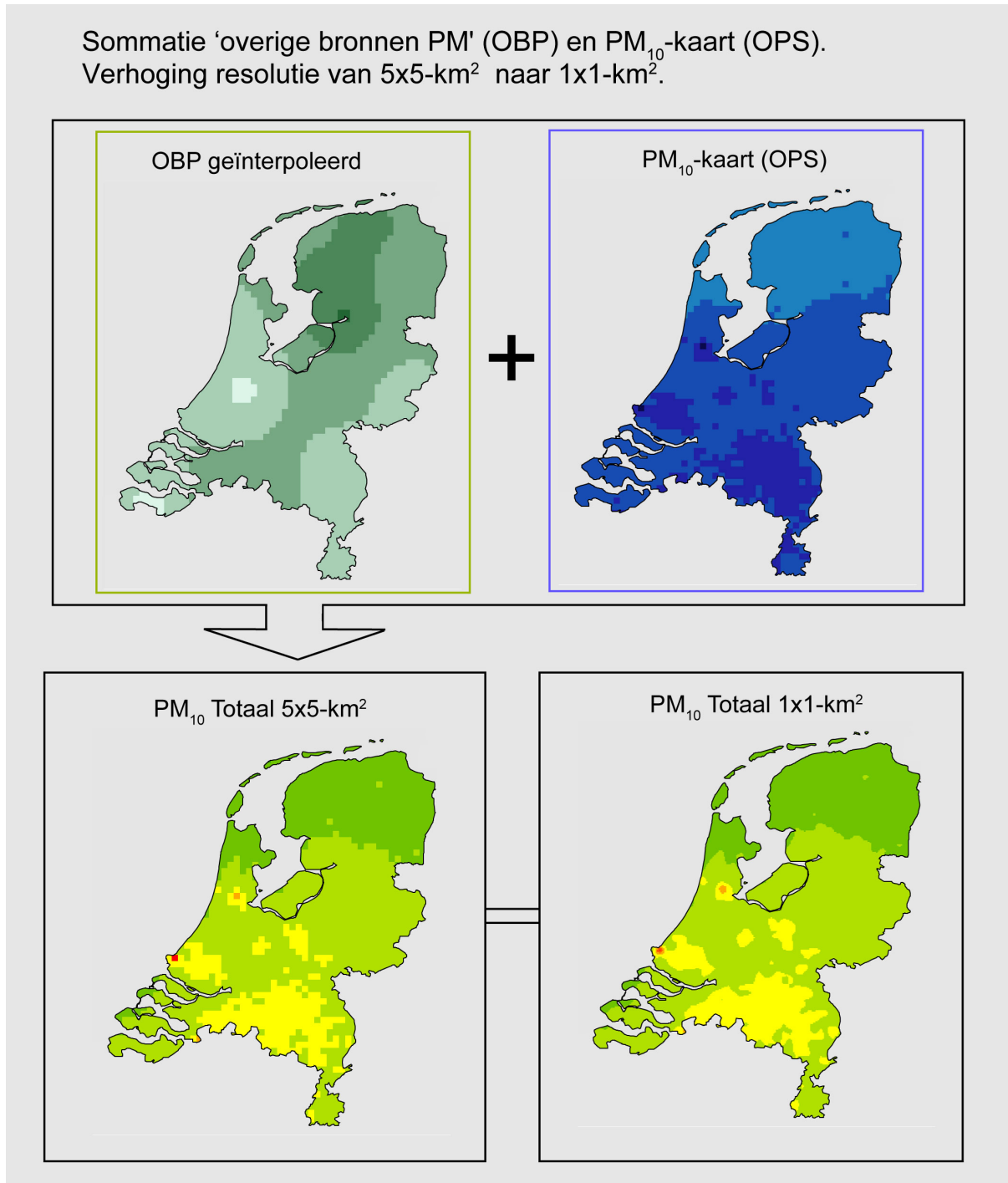
Bij GCN-kaarten van eerdere leveringen is bij de interpolatie van  $OBP_i$  gebruik gemaakt van een kleinste-kwadraten-methode waarbij geen rekening gehouden kon worden met de relatief grote onzekerheid in de OBP-waarden. Het geïnterpoleerde veld verwerkte een gradiënt in de OBP-waarden, significant of niet. Toepassing van de nieuwe methodiek leidt logischerwijs tot verschillen met de vroegere benadering. De verschillen uiten zich op plekken waar de GCN-waarden hoger of lager zijn dan meetgegevens van een regionaal achtergrondstation.

Voor toekomstverkenningen van fijn stof wordt een OBP-kaart gemaakt op basis van een meerjarige reeks van model- en meetgegevens. Uitgangspunt hierbij is dat de bijdrage door 'overige bronnen PM' niet meer verandert in de tijd. Paragraaf 2.5 geeft een beschrijving van de gebruikte methoden om een OBP-kaart voor verkenningen te bepalen.



*Figuur 2.3 **Stap II**: kalibratie van de berekende PM<sub>10</sub>-concentraties (OPS) aan metingen uit het Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit (LML). Op de meetlocaties van regionale achtergrondstations wordt de OPS-concentratie afgetrokken van LML-concentratie (LML - OPS). Vervolgens wordt van dit verschil een kaart gemaakt door het verschil op de meetpunten te interpoleren. De hier getoonde cijfers en kaarten betreffen het jaar 2005.*

Hierna wordt in **stap III** het geïnterpoleerde OBP-veld bij de OPS-kaart opgeteld. Tot slot wordt de resolutie verhoogd van  $5 \times 5\text{-km}^2$  naar  $1 \times 1\text{-km}^2$  met een spline-interpolatie methode (Velders et al., 2006b). De hogere resolutie brengt de ruimtelijke gradiënten nabij steden en puntbronnen beter tot uitdrukking voor lokale luchtkwaliteitsberekeningen (Figuur 2.4).



*Figuur 2.4 Stap III: Sommatie van de geïnterpoleerde kaart 'overige bronnen PM' (OBP) en de OPS-kaart. Verhoging resolutie van  $5 \times 5\text{-km}^2$  naar  $1 \times 1\text{-km}^2$  door middel van spline-interpolatie. Het resultaat in dit voorbeeld is de GCN-kaart voor 2005 (zie Figuur 2.10 en Velders et al., 2006b).*



## 2.2 Emissiegegevens

Voor fijnstofberekeningen met het OPS-model wordt gebruik gemaakt van emissiegegevens van verschillende stoffen. Het gaat om emissiegegevens van primair fijn stof, en de precursors van secundair anorganisch fijn stof, te weten, zwaveldioxide (SO<sub>2</sub>), stikstofoxiden (NO<sub>x</sub>) en ammoniak (NH<sub>3</sub>). Van deze vier stoffen zijn antropogene emissiecijfers gescheiden in gegevens voor Nederland en gegevens voor de andere Europese landen (zowel puntbronnen als oppervlaktebronnen).

### 2.2.1 Emissies: historische jaren

De emissies voor jaren uit het verleden die worden gebruikt voor het OPS-model zijn afkomstig van de Emissieregistratie (ER) voor Nederland en van EMEP ('expert emissions'; WebDab, 2005) voor het buitenland. De ER is in Nederland verantwoordelijk voor het verzamelen, bewerken, beheren, registreren en rapporteren van emissiedata waarmee de betrokken ministeries aan de nationale en internationale verplichtingen op het gebied van emissierapportages kunnen voldoen. De EMEP-emissiedata ('expert emissions') zijn zoveel mogelijk gebaseerd op de officiële emissies zoals deze zijn gerapporteerd aan de UNECE door alle landen in Europa in het kader van de 'Convention on Long range Transboundary Air pollution'.

Naast de gegevens over de emissiehoeveelheid heeft het OPS-model nog een aantal gegevens nodig die van belang zijn voor de verspreiding zoals bronlocatie en -afmetingen, en gegevens over de emissieverdeling in de tijd (Van Jaarsveld, 2004). In Bijlage A zijn de gebruikte emissiegegevens voor de periode 1990-2003 van primair fijn stof, SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub> en NH<sub>3</sub> samengevat. In Velders et al. (2006b) is de totstandkoming en actualiteit van de Nederlandse emissiegegevens behandeld. In de praktijk worden definitieve nationale emissiegegevens gebruikt die tot 2 jaar achterlopen bij de actualiteit. Bij de internationale gegevens is de actualiteit van de gegevens veel minder exact vast te stellen. De gebruikte EMEP-gegevens hebben een verschil met de actualiteit van tenminste 2 jaar. Het gebruik van niet-actuele emissiegegevens heeft een gering effect op de fijnstofconcentraties, omdat de berekende concentraties worden gekalibreerd aan actuele metingen.

### 2.2.2 Emissies: toekomstige jaren

Verkenningen van fijn stof voor 2010, 2015 en 2020, zoals eerder gepresenteerd in Velders et al. (2006b), zijn gebaseerd op twee verschillende emissiescenario's: het Referentiescenario (RS) en Beleidsrijk Scenario (BR). De basis voor deze scenario's is het Global Economy scenario uit de Referentieramingen 2005-2020 (Van Dril en Elzinga, 2005). Het Referentiescenario gaat uit van 'vastgesteld beleid'. Hiermee worden concrete beleidsvoornemens bedoeld, die voldoende geïnstrumenteerd zijn en waarvan de financiering is geregeld. Op Europees niveau zijn nieuwe normen afgekondigd voor de uitstoot van personen- en bestelauto's, de zogenoemde Euro-5-normen. Dit betekent dat nieuwe dieselauto's vanaf 2010 roetfilters nodig zullen hebben. Vooruitlopend op deze nieuwe normen is er een trend dat sommige autofabrikanten nieuwe dieselauto's standaard al van een roetfilter voorzien. De emissieraming voor het Referentiescenario houdt hiermee rekening. De Euro-normen voor verkeer hebben ook betrekking op de NO<sub>x</sub>-emissie en zijn door de vorming van nitraat uit NO<sub>x</sub> van belang voor fijn stof.

Het uitgangspunt bij het Beleidsrijk Scenario zijn de National Emission Ceilings (NEC) (EU, 2001b) voor NO<sub>x</sub>, SO<sub>2</sub> en NH<sub>3</sub> voor 2010 en de ambitie van de Thematische Strategie (TS) (EU, 2005) van de Europese Commissie voor NO<sub>x</sub>, SO<sub>2</sub>, NH<sub>3</sub> en PM<sub>2,5</sub> voor 2020. Er is vanuit gegaan dat eerst in 2010 de NEC-doelen moeten worden gehaald. Hiervoor zijn ten opzichte van het Referentiescenario maatregelen uit het optiedocument (Daniëls en Farla, 2006) en Prinsjesdagpakket (zacht) gebruikt (Hammingh et al., 2005) om de NEC-doelen in 2010 te realiseren.

Velders et al. (2006b) en Hoen et al. (2006, in voorbereiding) geven een gedetailleerde uitwerking van beide scenario's inclusief nationale emissieramingen per sector.

## 2.3 OPS

Het OPS-model is uitvoerig behandeld door Van Jaarsveld (2004). Hier wordt daarom volstaan met de opsomming van een aantal modeleigenschappen die belangrijk zijn voor berekening van de fijnstofconcentratie.

Het OPS-model is een Lagrangiaans model. De bijdrage aan concentratie en depositie als gevolg van de uitstoot door een specifieke bron wordt voor een raster over Nederland per rastercel apart berekend. De berekening vindt plaats voor het middelpunt van zo'n rastercel. Het modelconcept is vooral geschikt bij berekeningen gemiddeld over tijdschalen van 1 maand, jaar of gemiddeld over een aantal jaren. Voor de GCN-kaarten van fijn stof worden berekeningen gedaan op basis van meteorologische gegevens van het betreffende jaar. Voor scenarioberekeningen maakt het OPS-model standaard gebruik van een statistiek van meteorologische gegevens. Deze langetermijnstatistiek is gebaseerd op meteorologische gegevens voor meer jaren (1990-1999).

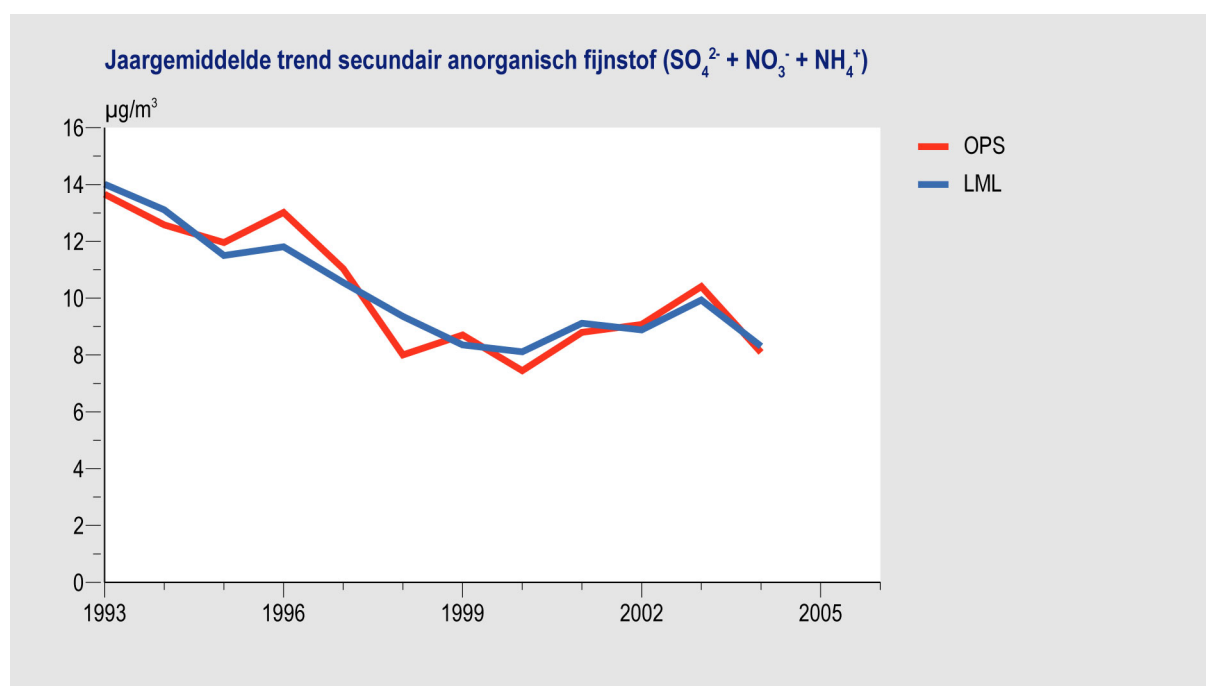
De berekeningen zijn lineair, dat wil zeggen dat een verandering in bronsterkte leidt tot een verandering, in gelijke mate, van de bijdrage van die bron aan de concentratie en depositie in een rastercel. Verschillende verwijderingsprocessen zijn echter beschreven met behulp van achtergrondconcentraties. Deze achtergrondconcentraties kunnen van jaar tot jaar verschillen. Het model is dus lineair met betrekking tot emissies, gegeven een bepaalde set (jaar) van achtergrondconcentraties.

De berekening van sulfaat, nitraat en ammonium vindt in het OPS-model plaats op basis van de precursor-gas-concentraties. De omzetting van SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub> en NH<sub>3</sub> tot hun secundaire zouten (SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup> en NH<sub>4</sub><sup>+</sup>) is een complex mechanisme dat in het OPS-model is geparаметriséerd met een netto omzettingssnelheid. Bij de bepaling van de netto chemische omzettingssnelheid van een stof wordt in het OPS-model rekening gehouden met meteorologische parameters en concentraties van andere relevante stoffen. Naast chemische omzetting vindt er depositie plaats (droog en nat). Voor primair fijn stof is depositie het enige verdwynproces. Een droge-depositie-flux wordt berekend, gebruik makend van een weerstandsmodel voor de atmosferische grenslaag. Natte depositie vindt plaats op basis van verwijdering door wolkendruppels in en beneden wolken.

De verspreiding en depositie van fijn stof is afhankelijk van de deeltjesgrootte. Andere stoffeigenschappen worden verondersteld geen invloed te hebben op de verspreiding en depositie van fijn stof. In het OPS-model wordt stof onderverdeeld in verschillende deeltjesgrootteklassen. De emissie van primair fijn stof wordt vooraf verdeeld over een aantal deeltjesgrootteklassen. De precieze verdeling hangt af van brontype en sector. Zo bestaat het

verbrandingsgerelateerde primaire fijn stof voor het overgrote deel uit deeltjes met een diameter kleiner dan  $2.5 \mu\text{m}$ . De secundaire anorganische zouten kennen in het OPS-model geen onderverdeling in deeltjesgrootte en zijn in hun geheel bevat in  $\text{PM}_{10}$ .

Het OPS-model is voor wat betreft de totale  $\text{PM}_{10}$ -concentratie niet onafhankelijk te valideren met metingen. De validatie op onderdelen (secundair anorganisch aerosol:  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ , en  $\text{NH}_4^+$  en precursor gassen  $\text{SO}_2$ ,  $\text{NO}_x$  en  $\text{NH}_3$ ) is wel mogelijk en is vastgelegd in Van Jaarsveld (2004). De modelresultaten voor deze componenten komen voor wat betreft trend en absolute waarden goed overeen met de metingen. Het OPS-model is dus goed in staat om de gemiddelde bijdrage en trend van secundair anorganisch fijn stof voor Nederland te beschrijven. De ruimtelijke verdeling is uiteraard minder nauwkeurig echter, met een afwijking van 2 tot  $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$  te hoog of te laag tussen modelwaarden en metingen voor individuele stations is de performance van het OPS-model nog zeer redelijk te noemen (zie ook Figuur 2.5).



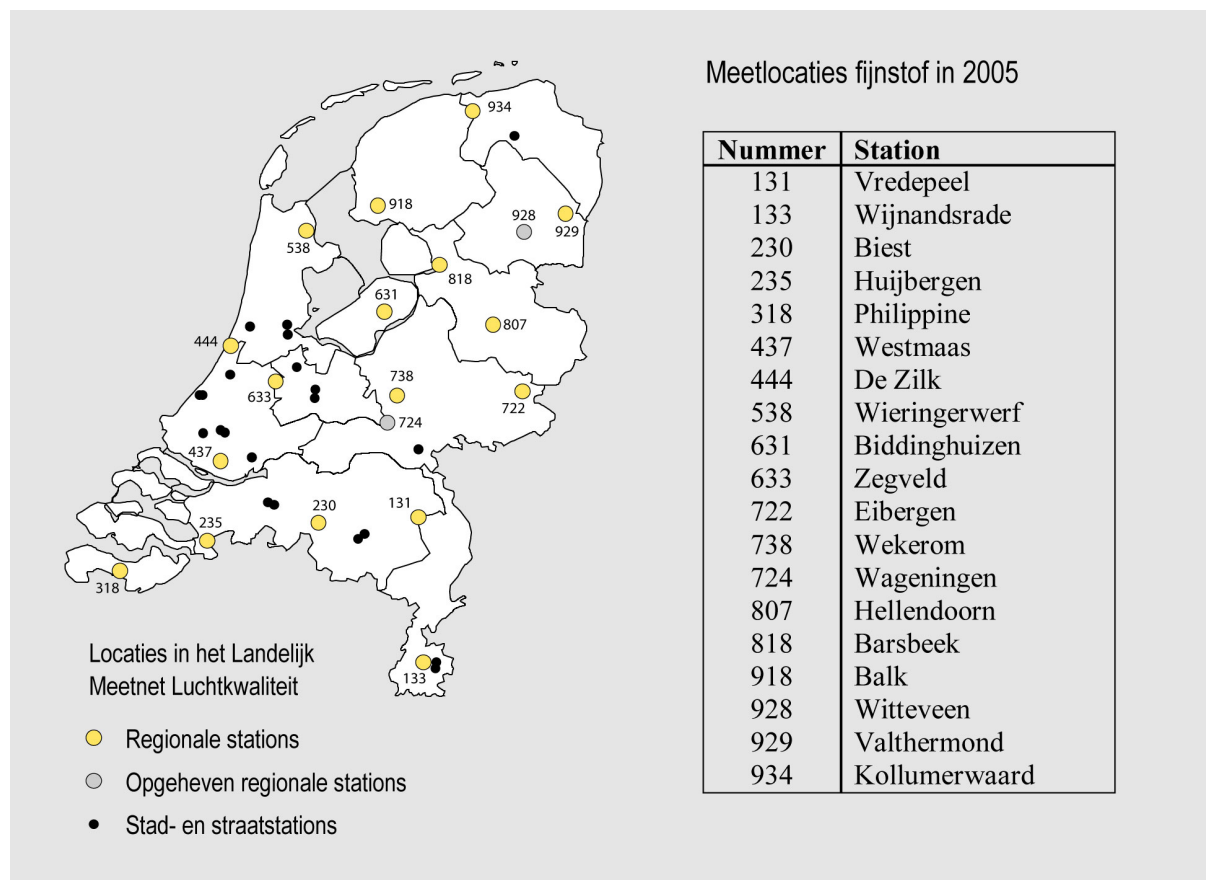
*Figuur 2.5 Trend jaargemiddelde concentratie secundair anorganisch fijn stof ( $\text{SO}_4^{2-} + \text{NO}_3^- + \text{NH}_4^+$ ) gemiddeld voor een zestal locaties in Nederland; berekend met het OPS-model (OPS) en gemeten (LML).*

Op basis van emissiegegevens zoals besproken in paragraaf 2.2 en Bijlage A en meteorologische invoergegevens voor elk jaar van de periode 1993 t/m 2005 zijn OPS-berekeningen uitgevoerd voor primair fijn stof,  $\text{SO}_2$ ,  $\text{NO}_x$  en  $\text{NH}_3$ . Figuur 2.7 geeft voor zowel de resultaten van de berekeningen als de metingen voor de jaargemiddelde  $\text{PM}_{10}$ -concentratie op de locaties regionale achtergrondstations uit het LML. Omdat op deze punten de ijking van model en meting wordt verricht, staan ze centraal in de rekenmethodiek.

## 2.4 Metingen in het LML

Fijn stof wordt in het landelijk meetnet luchtkwaliteit (LML) operationeel gemeten sinds 1992. Het RIVM beheert en verzorgt de metingen in het LML. Vóór 1992 waren er alleen metingen van total suspended matter (TSP). In 1992 werd in het LML begonnen met operationele PM<sub>10</sub>-metingen op vijftien tot twintig locaties. De PM<sub>10</sub>-metingen worden uitgevoerd met een zogenaamde bèta-stof-monitor (Venema et al., 1992; Elzakker et al., 1992). Het meetprincipe van deze automatische fijnstofmonitoren berust op de verzwakking van bèta-straling door fijn stof, dat aangezogen uit de buitenlucht, achterblijft op een filter. De verzwakking is een maat voor de hoeveelheid fijn stof op het filter en daarmee in de buitenlucht. Fijnstofmetingen in het LML worden gecorrigeerd voor verlies van fijn stof tijdens de meetprocedure. Bij automatische meetopstellingen zijn dit soort verliezen in de praktijk onvermijdelijk. Het verlies van fijn stof in de meetprocedure varieert in ruimte en tijd. In heel Europa wordt gemiddeld een verlies van ongeveer 30% geschat. Daarom is de advieswaarde voor de correctiefactor 1.3 (Williams en Bruckmann, 2002).

Voor de GCN-kaarten van fijn stof zijn de concentraties op achtergrondlocaties relevant. Op deze locaties worden de OPS-modelberekeningen gekalibreerd aan de metingen. In 2003 is begonnen met een uitbreiding van het aantal meetpunten conform de Europese 1<sup>e</sup> dochterrichtlijn luchtkwaliteit (EU, 2001b). Er zijn nu 39 operationele meetpunten van fijn stof (december 2005), waarvan 17 op regionale achtergrondlocaties (Figuur 2.6).

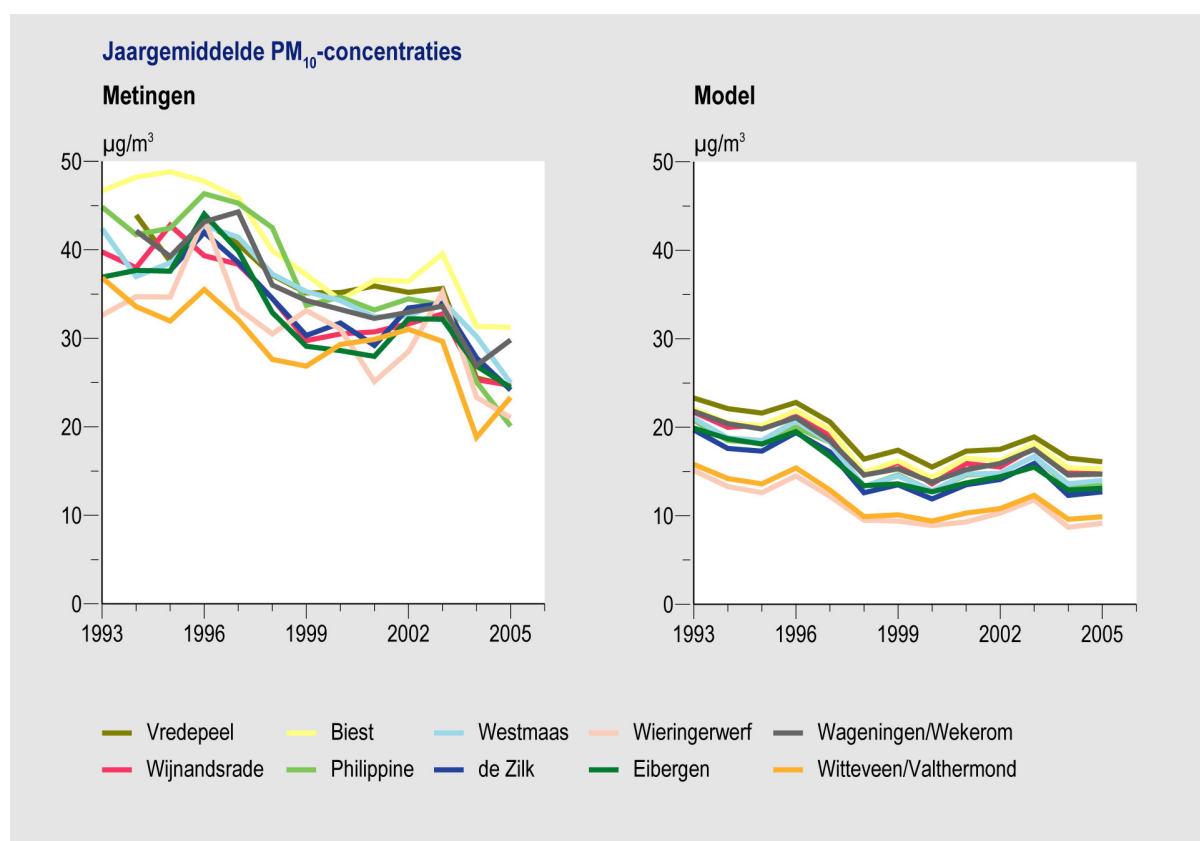


Figuur 2.6 Meetlocaties fijn stof (LML) in 2005. De twee grijze punten geven de positie van de stations die in de periode 1993-2005 zijn opgeheven, maar waarvan wel fijnstofgegevens zijn gebruikt.

De uitbreiding heeft vooral de ruimtelijke dekking in het noorden van Nederland verbeterd.

Voor het bepalen van een trend in de metingen, modelresultaten en het verschil tussen beide is een zo lang mogelijk consistente reeks noodzakelijk (tenminste 10 jaar). Een analyse voor de periode 1993-2005 is uitgevoerd voor een set van fijnstofmeetgegevens (10 stations) waarvan de meetreeks aan dit criterium voldoet. Om het aantal meetreeksen (stations) te maximaliseren zijn twee meetreeksen samengesteld uit metingen van stations bij elkaar in de buurt. Deze gegevens zijn in de tijd complementair. Het gaat hierbij om de stationkoppels: Witteveen (928) met Valthermond (929) en Wageningen (724) met Wekerom (738). De overige 8 meetreeksen zijn van de stations: Vredepeel (131), Wijnandsrade (133), Biest (230), Philippine (318), Westmaas, (437), De Zilk (444), Wieringerwerf (538) en Eibergen (722). Figuur 2.6 geeft de locatie van deze stations.

Figuur 2.7 geeft de trend in de metingen en de OPS-modelresultaten op de geselecteerde regionale achtergrondstations voor de periode 1993-2005.



*Figuur 2.7 Gemeten (links) en berekende (rechts) jaargemiddeld PM<sub>10</sub>-concentraties (µg/m<sup>3</sup>) op locaties van regionale achtergrondstations uit het LML. De resultaten van het OPS-model zijn de gridconcentraties van die cellen waarin de betreffende regionale achtergrondstations liggen.*

- In de metingen is van 2003 op 2004 een grote daling waarneembaar die zich in de modelresultaten slechts zeer beperkt voordoet.
- Het algemene patroon, een dalende trend en piek in 1996 en 2003, is herkenbaar in zowel de metingen als modelresultaten.
- PM<sub>10</sub>-metingen vertonen een veel grotere variabiliteit dan de modelresultaten, zowel in tijd als in ruimte.
- PM<sub>10</sub>-metingen zijn ongeveer 2 keer zo hoog als de modelresultaten, die gebaseerd zijn op bekende antropogene bronnen.

Net als de berekeningen hebben de fijnstofmetingen een bepaalde onzekerheid. Hier worden alleen de resultaten weergegeven. In hoofdstuk 5 worden de onzekerheden behandeld.

## 2.5 Bepaling ‘Overige bronnen PM’

‘Overige bronnen PM’ (OBP) is het deel dat niet gemodelleerd is op basis van de vastgestelde antropogene emissies. De definitie van OBP is het verschil tussen metingen en modelresultaten op regionale achtergrondlocaties (zie paragraaf 2.1). De bijdrage door ‘overige bronnen PM’ omvat zo de bijdrage van zeezout, bodemstof, biostof, secundair organisch aerosol (SOA) en water en van bronnen die buiten Europa liggen (hemisferische bijdrage). Hoofdstuk 6 geeft een uitgebreidere beschrijving van deze fracties. Naast ‘echte’ fijnstofbestanddelen omvat de bijdrage ‘overige bronnen PM’ ook onbekende systematische meet- en modelafwijkingen.

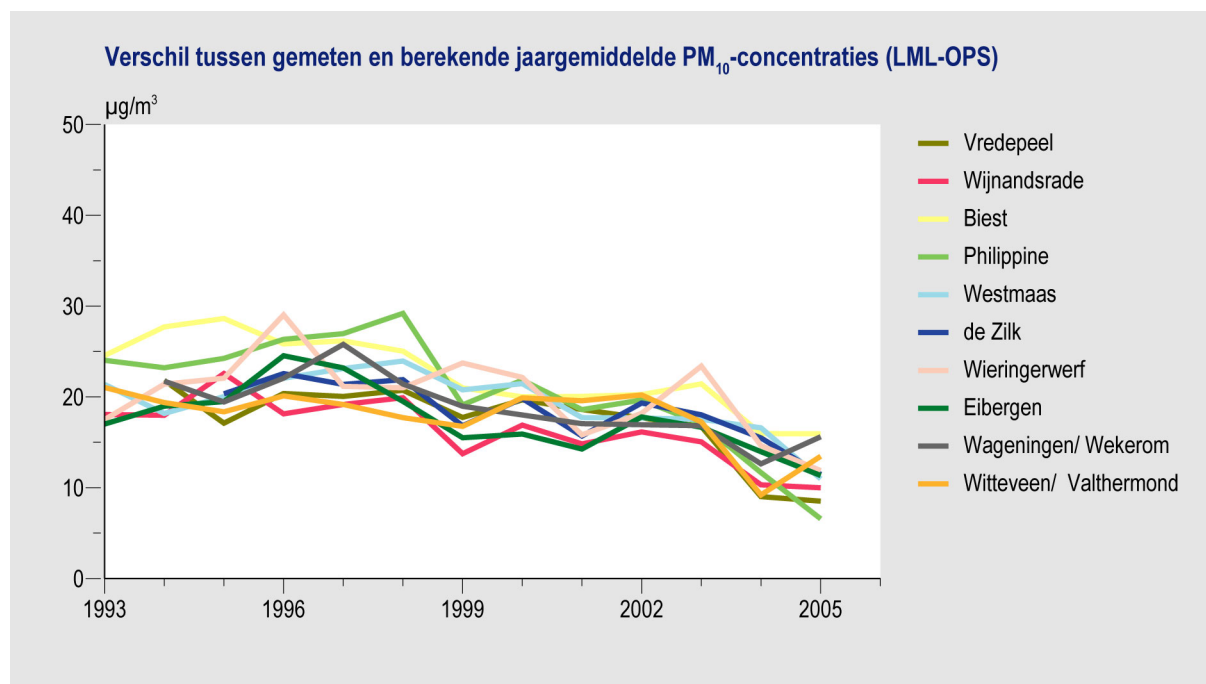
De bijdrage door ‘overige bronnen PM’ voor jaren in de periode 1993-2005 wordt behandeld in paragraaf 2.5.1. Vervolgens wordt in paragraaf 2.5.2 beschreven hoe een schatting is gemaakt voor de bijdrage door ‘overige bronnen PM’ in de toekomst, voor verkenningen van fijn stof.

### 2.5.1 Periode 1993-2005

De fractie ‘overige bronnen PM’ volgt direct uit de kalibratie van fijnstofberekeningen aan metingen zoals beschreven in paragraaf 2.1. Figuur 2.8 laat de trend zien in de fractie ‘overige bronnen PM’ voor de geselecteerde stations (conform Figuur 2.7).

De bijdrage door ‘overige bronnen PM’ blijkt variabel in tijd en plaats. De grootte ligt gemiddeld op 22  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  in de periode 1993-1998. In de jaren 1999 tot 2003 is dit ongeveer 18  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . Tot 2004 is er dus een dalende trend van ongeveer 0.4  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ /jaar. Van 2003 naar 2004/2005 is een grote daling waar te nemen naar gemiddeld 14  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . In 2005 blijft de waarde vergelijkbaar laag als in 2004.

De samenstelling en trend van de bijdrage door ‘overige bronnen PM’ zijn onvoldoende begrepen. De onzekerheden in metingen en modelberekeningen en andere relevante variabelen zijn nog zo groot dat het doortrekken van een trend in de fractie ‘overige bronnen PM’ ten behoeve van verkenningen niet is te rechtvaardigen (zie paragraaf 2.5.2).



Figuur 2.8 OBP ('overige bronnen PM') verschil tussen gemeten en berekende jaargemiddeld  $PM_{10}$ -concentraties (LML-OPS), op locaties van regionale achtergrondstations uit het LML.

Er is een dalende trend waarneembaar in het deel 'overige bronnen PM' zelfs als de grote daling tussen 2003 en 2004/2005 buiten beschouwing wordt gelaten. Deze trend is echter niet statistisch significant voor projecties voor 2010 en later. Algemeen wordt aangenomen dat de natuurlijke fractie in OBP, waaronder zeezout, gemiddeld over lange termijn constant is. Een trend in de natuurlijke fractie is echter mogelijk bij grootschalige en/of geo-ecologische veranderingen zoals klimaatverandering. Klimaatverandering kan aanleiding geven tot een wijziging in de heersende grootschalige wind- en neerslagpatronen, die vervolgens tot een blijvende toename of een afname van bijvoorbeeld de zeezoutbijdrage kunnen leiden.

OBP bevat ook, impliciet, het netto-effect van systematische afwijkingen in zowel de metingen als het model. Deze systematische afwijkingen zijn per definitie (nog) onbekend dan wel niet geïdentificeerd. De bestaande trend wordt waarschijnlijk veroorzaakt door een combinatie van verschillende systematische afwijkingen. Hieronder worden een aantal van deze systematische afwijkingen genoemd die mogelijk hebben bijgedragen aan de waargenomen trend. Ook in de toekomst kunnen deze oorzaken aanleiding geven tot veranderingen in de bijdrage door 'overige bronnen PM'.

### Modelmatige systematische afwijkingen

Niet- of verkeerd gemodelleerde bronnen: zowel antropogene als natuurlijke bronnen die niet of verkeerd worden beschreven maar wel substantieel bijdragen aan de  $PM_{10}$ -concentraties. Als de bijdrage van deze bronnen daalt zoals de bijdrage van de meeste antropogene bronnen, dan zal dit resulteren in een daling van de fractie 'overige bronnen PM'.

- Water vormt een belangrijke *niet-gemodelleerde* bron. Fijn stof in de atmosfeer bevat een substantiële hoeveelheid water die afhankelijk is van temperatuur en relatieve

vochtigheid. Water dat zich op de deeltjes bevindt, wordt afhankelijk van de voorbehandeling bij de monsternamen, gemeten als fijn stof. Water hecht zich aan deeltjes onder andere door de hygroscopische werking van vooral het anorganische secundair fijn stof ( $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{NH}_4^+$ ), maar ook zeezout is water aantrekkend. De bijdrage van anorganisch secundair fijn stof is ongeveer 50% gedaald sinds 1993. Het is daarom aannemelijk dat ook de bijdrage van water aan  $\text{PM}_{10}$  sinds 1993 is gedaald.

- Een andere *niet-gemodelleerde* antropogene bron van fijn stof is de chemische vorming in de lucht van deeltjes uit organische stoffen (secundair organisch aerosol, SOA). Veranderingen van antropogene en biogene (natuurlijke) emissies van organische stoffen kunnen leiden tot een wijziging in de bijdrage door 'overige bronnen PM'. Wijziging in het gebruik van brandstoffen, bijvoorbeeld door grotere productie en toepassing van biobrandstoffen, kan ook weer leiden tot een andere bijdrage door SOA.
- Atmosferische chemische veranderingen kunnen leiden tot andere omzettingssnelheden dan worden toegepast in het huidige OPS-model. Zo zijn bijvoorbeeld de ozonconcentratie en de vorming van  $\text{SO}_4^{2-}$  uit  $\text{SO}_2$  gekoppeld (Unger et al., 2006). Het gevolg is dat als het gemiddeld grootschalige ozonconcentratieveld verandert, dan ook de secundaire bijdrage aan fijn stof verandert. Mondiale ontwikkelingen zoals de economische opgang van China en India kunnen door een sterke veranderende uitstoot van ozonvormende stoffen van invloed zijn op de ozonconcentratie in Europa.
- Een ander voorbeeld van *niet-gemodelleerde* bronnen is de bijdrage aan fijn stof door bewerking van het land (ploegen, eggen, oogsten et cetera) in combinatie met winderosie. Het gaat hier veelal om substantiële hoeveelheden. Zo is naar schatting ongeveer 70% van de totale landbouwemissie in Oostenrijk het gevolg van landbewerking (6.7 kton/jaar). Voor Nederland hebben Chardon en Van der Hoek (2002) een ruwe schatting gemaakt voor de emissie als gevolg van winderosie (10 tot 20 kton/jaar). Opgeteld bij de huidige schatting voor fijnstofemissie door landbouw van ongeveer 10 kton/jaar komt deze schatting overeen met een bijdrage van ongeveer 50% tot 65%.
- Een voorbeeld van *verkeerd gemodelleerde* bronnen zijn condenseerbare emissies. De emissies uit bijvoorbeeld schoorstenen bestaat uit een filtreerbaar deel (vast en vloeibaar) en een gasvormig deel. Het condenseerbare deel bestaat uit gassen die onder de koelere omstandigheden in de buitenlucht zullen condenseren tot deeltjes. De grootte van deze condenseerbare emissies hangt af van hoe emissies worden gemeten. Voor de methodiek zoals toegepast door de US-EPA blijkt dat ongeveer driekwart van de emissie condenseerbaar is bij de onderzochte sites, grote fabrieksinstallaties (Corio en Sherwell, 2000). Welke rol condenseerbare emissies spelen in de vastgestelde emissies in Europa, is onbekend.

### Meettechnische systematische afwijkingen

Een meettechnische systematische afwijking kan constant zijn in de tijd maar ook afhankelijk van de samenstelling van fijn stof en daarmee mogelijk van invloed op de trend:

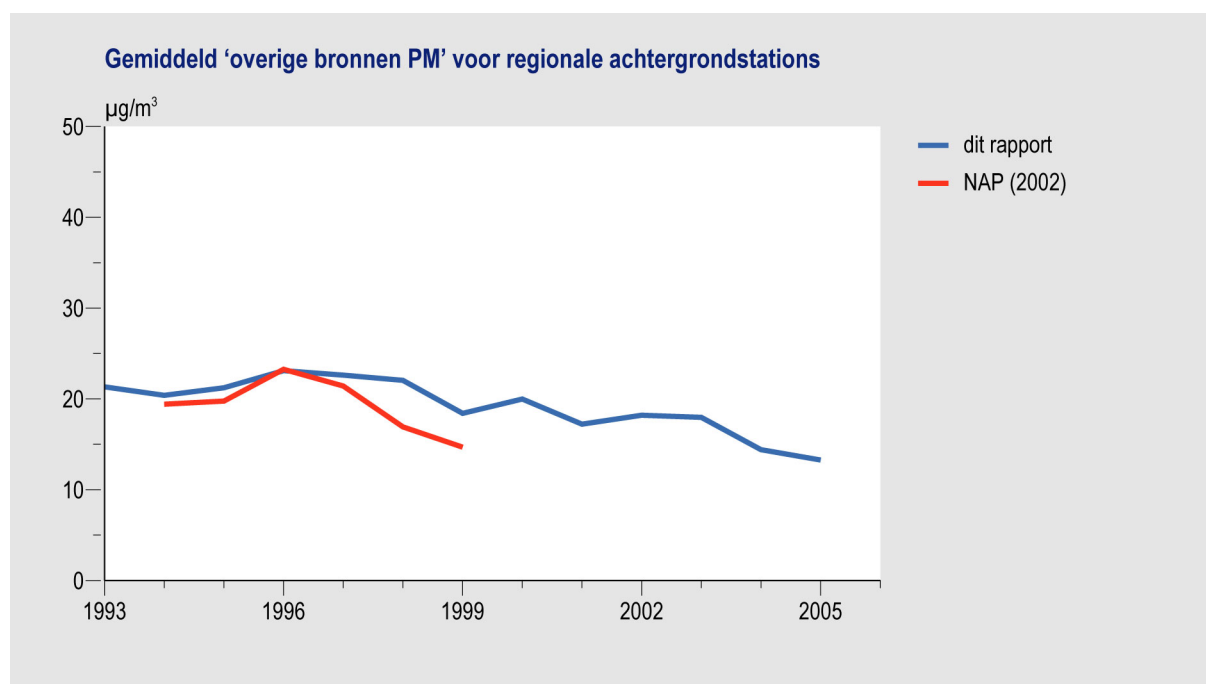
- Er is een sterke daling waargenomen in de metingen tussen 2003-2004 die naar alle waarschijnlijkheid gerelateerd is aan veranderingen in de wijze van meten (zie hoofdstuk 3). De hoeveelheid water op deeltjes zou hierbij een belangrijke rol kunnen spelen.
- Verder is er een sterke daling geweest in de bijdrage van lood op deeltjes (concentraties zijn sinds begin jaren negentig tot nu gedaald met circa 80%). Lood absorbeert bètastraling en kan ondanks geringe bijdrage aan de totale fijnstofconcentratie een



verstorende rol spelen in de trend van bèta-stof-metingen. Correctie voor het absorptie-effect van lood zal de trend in de bijdrage 'overige bronnen PM' afvlakken. Of dit om een substantieel effect gaat, dient verder te worden onderzocht. Eerder vond Vrins (1996) aanwijzingen dat de samenstelling van fijn stof (los van de massa) een effect heeft op de bèta-stof-meting.

## 2.5.2 Verkenningen

'Overige bronnen PM' draagt ongeveer de helft bij aan de PM<sub>10</sub>-concentratie. Daarom is het noodzakelijk een schatting te maken van de OBP-bijdrage bij scenarioberekeningen om een uitspraak te kunnen doen over de haalbaarheid van grenswaarden in de toekomst. Uit Figuur 2.8 en Figuur 2.9 blijkt dat de bijdrage door 'overige bronnen PM' variabel is in tijd en plaats. Een schatting voor de bijdrage van 'overige bronnen PM' voor verkenningen is bij voorkeur gebaseerd op een reeks meet- en modelgevens van meer jaren. Zo worden jaarspecifieke variaties door bijvoorbeeld meteorologische omstandigheden uitgemiddeld.



*Figuur 2.9 Fractie 'overige bronnen PM' (OBP), gemiddeld voor regionale achtergrondlocaties. De rode lijn geeft de cijfers die de basis zijn voor de schatting in NAP (2002). De blauwe lijn geeft OBP volgens de analyse in dit rapport. De OBP-waarde is het gemiddelde van de OBP-waarden per station, Figuur 2.8).*

In dit rapport komen drie schattingen aan de orde van de bijdrage door ‘overige bronnen PM’ voor verkenningen:

- 1) NAP (2002) is gebaseerd op een lange termijn analyse van de jaren 1994-1999 in het kader van het Nederlands Aërosol Programma. Volgens deze analyse bedraagt OBP gemiddeld over Nederland  $17.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Deze schatting is gebruikt tót de recente GCN-levering van 2006.
- 2) Velders et al. (2006b) gebaseerd op de OBP-bijdrage van de laatste twee jaar (2004 en 2005). De keuze om alleen gegevens van de laatste twee jaar te gebruiken is ingegeven door een significant verschil tussen de meetreeks tot 2003 en die erna (zie hoofdstuk 3). Volgens deze analyse bedraagt OBP gemiddeld over Nederland  $14.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Dit is de huidige beste schatting en is toegepast bij de verkenningen van fijn stof uit de 2006-levering van GCN-kaarten.
- 3) Matthijsen en Visser (2006), dit rapport, gebaseerd op een lange-termijn-analyse van de jaren 1993-2005. Deze is het resultaat van een trendanalyse waarbij alle model- en meetgegevens even waarschijnlijk worden verondersteld. Volgens deze analyse bedraagt OBP gemiddeld over Nederland  $16.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Deze schatting is gebruikt als ‘alternatieve kalibratie’ en is uitgewerkt in hoofdstuk 4.

#### **Ad 1)**

De schatting in NAP (2002) is gebaseerd op de metingen en berekeningen voor de jaren 1994-1999 (Figuur 2.9). De emissiegegevens voor de jaren 1994 t/m 1999 zijn uit 2000 of van vroegere datum. De schatting van het deel ‘overige bronnen PM’ voor scenario’s is eenvoudigweg het gemiddelde van de delen berekend voor de afzonderlijke jaren. De keuze voor een *constante* schatting is ingegeven door, enerzijds, de grote onzekerheid in de emissie-, model- en meetgegevens en, anderzijds, de kennis dat het deel ‘overige bronnen PM’ wordt gedomineerd door de bijdrage van min of meer natuurlijk bronnen zoals zeezout en bodemstof. Deze fracties zijn gemiddeld in de tijd constant verondersteld.

Voor de analyse (1993-2005) zijn betere emissiegegevens beschikbaar dan gebruikt bij NAP (2002). Bovendien is er nu een langere meetreeks voorhanden. De herziene OBP-reeks geeft voor de jaren 1994-1999 een ander beeld dan de eerdere schatting. De variatie van jaar tot jaar is minder groot dan bij de NAP-schatting. Bovendien hebben verbeterde emissiegegevens voor deze periode geleid tot een lagere berekende bijdrage waardoor de bijdrage OBP voor de periode 1994-1999 hoger uitvalt (gemiddeld  $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) dan volgens de NAP-studie. Het verschil is het grootst in de jaren 1998 en 1999. Een belangrijke oorzaak van de gevonden verschillen ligt in herzieningen van zowel bronsterkte als ruimtelijke verdeling van de EMEP-gegevens. De herziene bijdrage van primair fijn stof uit Duitsland gaf als grootste verandering een afname van ongeveer  $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ .

#### **Ad 2)**

Voor de OBP-schatting voor de verkenningen in de recente GCN-levering (Velders et al., 2006b) wordt onderscheid gemaakt tussen de meetreeks 1992-2002 en 2004/2005. Het jaar 2003 wordt door de grote uitbreidingsactiviteiten in het LML buiten beschouwing gelaten. Aan de meetgegevens van de laatste twee jaar (2004 en 2005) wordt de grootste betrouwbaarheid toegekend. Hoofdstuk 3 gaat verder in op achtergronden van deze keuze. De gegevens van 2004 en 2005 worden gebruikt om een schatting te maken voor de bijdrage door ‘overige bronnen PM’ bij de verkenningen voor 2010-2020. Omdat de modelresultaten tussen 2003 en 2005 weinig verschillen werkt de sterke daling in de metingen van de recente

jaren 2004 en 2005 door in een substantieel kleinere bijdrage door ‘overige bronnen PM’ (Figuur 2.9).

Een schatting van het deel ‘overige bronnen PM’ voor verkenningen is verkregen door de afzonderlijke OBP-kaarten voor 2004 en 2005 te middelen. Vóór middeling zijn de OBP-kaarten van het jaar 2004 en 2005 afzonderlijk gecorrigeerd voor meteo invloeden. Dit is gedaan omdat de middeling slechts twee jaar beslaat. Hierdoor is de resulterende kaart mogelijk niet representatief voor lange termijn gemiddelde meteorologische omstandigheden. Een meteorologisch gemiddelde OBP-kaart is een vereiste, omdat de scenarioberekeningen ook voor meteorologisch gemiddelde omstandigheden zijn uitgevoerd. Specifieke meteorologische omstandigheden in een jaar kunnen tot concentraties leiden die hoger of lager uitvallen dan gemiddeld. Toepassing van deze meteo-correctie wordt in hoofdstuk 3 behandeld. De methodiek zelf is beschreven in Visser en Noordijk (2002).

Uit meteo-analyse blijkt dat de gemeten concentratie in 2004 gemiddeld  $1.42 \mu\text{g}/\text{m}^3$  lager is dan volgens een meteorologisch gemiddeld jaar. In 2005 was de gemeten concentratie  $0.42 \mu\text{g}/\text{m}^3$  lager dan ‘normaal’ (zie Tabel 3.1). Deze jaarspecifieke meteo-variatie valt uiteen in twee delen:

- het deel dat is beschreven door het OPS-model en dus is vervat in het modelresultaat voor een specifiek jaar:  $0.45 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (2004),  $0.28 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (2005);
- het andere deel, dat hier relevant is, wordt opgeteld bij de OBP-bijdrage als meteo-correctie. Dit deel volgt uit de kalibratiestap waarin OBP wordt afgeleid uit metingen en modelgegevens (stap II, paragraaf 2.1):  $0.97 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (2004),  $0.14 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (2005).

Voor het interpoleren per jaar van de OBP-bijdrage op de regionale achtergrondlocaties is zoals bij verleden jaren Ordinary Kriging gebruikt. Verder wordt een onzekerheid van 20% (2-sigma) in de metingen verondersteld en een onzekerheid van 40% (2-sigma) in de OPS-modelberekeningen. Interpolatie en middeling leveren uiteindelijk een kaart met een gemiddelde bijdrage ‘overige bronnen PM’ van  $14.4 \pm 3.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ .

### **Oude versus nieuwe kaart ‘overige bronnen PM’**

De oude OBP-kaart voor fijnstofverkenningen is de kaart volgens NAP (2002). De nieuwe OBP-kaart is de kaart zoals gepresenteerd in Velders et al. (2006b). De nieuwe kaart is gemiddeld over Nederland  $3.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$  lager dan de oude kaart. Dit verschil is het netto resultaat van een aantal wijzigingen op het gebied van OPS-modelinvoer, metingen en de methode om OBP te bepalen. Tabel 2.1 geeft een overzicht van deze wijzigingen.

De oude meetreeks voor stations in het landelijk gebied is met  $0.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$  verhoogd gemiddeld over 1993 t/m 2002 om de metingen aan te passen conform de meetregeling bij de EU-richtlijn (EU, 2001a). De uitgevoerde analyse van de verschillen tussen gemeten en gemodelleerde concentraties bestond uit berekeningen met verbeterde emissiegegevens (bronsterkte en ruimtelijke verdeling) en toepassen van Kriging voor interpolatie van de OBP-waarden over Nederland. Verder kan het gebruikte trendmodel veranderingen van het trendniveau over de tijd modelleren en heeft als voorspelling voor de toekomst de laatste berekende trendwaarde in 2002 of 2005 afhankelijk van de gebruikte reeks. (zie Bijlage D).

*Tabel 2.1 Overzicht veranderingen in schattingen van de bijdrage door 'overige bronnen PM' (OBP) bij verkenningen.*

<b>Methode</b>	<b>Periode</b>	<b>OBP</b>	<b>Wijziging</b>	<b>Opmerkingen</b>
			<b>(<math>\mu\text{g}/\text{m}^3</math>)</b>	
Gemiddelde	1994-1999	<b>17.9</b>	+0.4	NAP (2002)
			+1.9	Herziening <sup>1</sup>
Trendanalyse, Kriging	1993-2002	<b>20.2</b>		Herziening <sup>2</sup>
			-3.9	Lange datareeks <sup>3</sup>
Trendanalyse, Kriging	1993-2005	<b>16.3</b>		Alternatieve kalibratie
			-1.9	Korte datareeks <sup>4</sup>
Gemiddelde, metecorrectie, Kriging	2004-2005	<b>14.4</b>		Velders et al. (2006b)

<sup>1)</sup> Herziening meetgegevens die het gevolg is van het een kwaliteitsslag waarbij de gehele meetreeks in overeenstemming is gebracht met de omgevingstemperatuur. Verder is een correctiefactor van 1.3 (i.p.v. 1.33) toegepast op alle meetgegevens (zie ook hoofdstuk 3).

<sup>2)</sup> Herziening emissiegegevens; verbeterde methode OBP-schatting op basis van trendanalyse met tijdreeksmodel (hoofdstuk 4 en Bijlage D); toepassing kriging voor interpolatie van OBP-waarden.

<sup>3)</sup> Analyse uitgebreid met gegevens van de jaren 2004 en 2005.

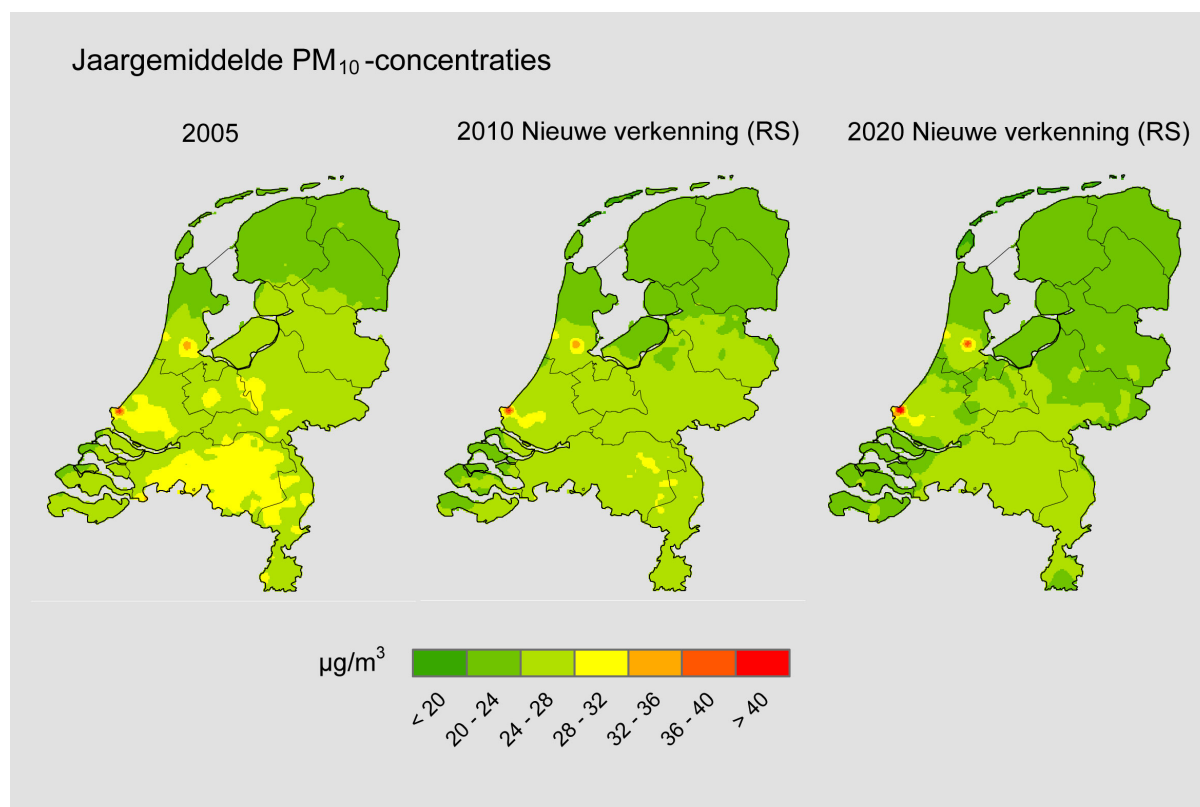
<sup>4)</sup> Analyse beperkt tot alleen de jaren 2004 en 2005.

Al met al heeft dit heeft geresulteerd in een toename in de OBP-kaart van  $1.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . De OBP-kaart bepaald over de jaren 1993-2002 is daarmee  $20.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . De OBP-kaart bepaald over de jaren 1993-2005 is  $16.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (alternatieve kalibratie). Deze daling van  $3.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$  is veroorzaakt door het meenemen van jaren 2004-2005 met lagere  $\text{PM}_{10}$ -metingen. Aan de metingen uit 2004-2005 wordt een hogere betrouwbaarheid toegekend. De OBP-kaart voor verkenningen bepaald op basis van deze laatste twee jaren alleen is gemiddeld over Nederland  $14.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ .

## 2.6 GCN-kaarten fijn stof 2005, 2010 en 2020

Het resultaat van de verschillende stappen beschreven in dit hoofdstuk levert een lange reeks met fijnstofkaarten. De levering voor GCN-kaarten zoals beschreven in Velders et al. (2006b) bevat een deel van deze kaarten voor fijn stof. Voor de volledigheid worden de GCN-kaarten voor 2005, 2010 en 2020 hieronder afgebeeld (Figuur 2.10). Tabel 2.2 geeft een overzicht van de bijdrage van de verschillende bronnen aan de concentratie in 2005. Velders et al. (2006b) geven een korte beschrijving.

De verkenningen in Figuur 2.10 zijn gebaseerd op het Referentiescenario en de bijschatting voor de bijdrage ‘overige bronnen PM’ is gebaseerd op gegevens uit de jaren 2004 en 2005. Een verkenning op basis van een alternatieve kalibratie wordt behandeld in hoofdstuk 4. De berekeningen zijn identiek, maar de bijschatting is gemaakt op basis meet- en modelgegevens voor de gehele reeks 1993-2005 (als ware de trendbreuk niet significant).



*Figuur 2.10 GCN-levering 2006. Jaargemiddelde  $PM_{10}$ -concentraties voor het jaar 2005 en verkenningen voor de jaren 2010 en 2020 volgens het referentiescenario (RS). Deze kaarten kunnen worden bekeken en geladen via de site <http://www.mnp.nl/mnc/i-nl-0506.html>.*

Tabel 2.2 Opbouw van het gemodelleerde deel van de  $PM_{10}$ -concentratie ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) in Nederland gemiddeld en zes agglomeraties<sup>1)</sup> in 2005, concentraties zijn onderverdeeld naar Nederlandse bronbijdragen, internationale scheepvaart, bronnen in het buitenland, zeezout en bodemstof en overig.

	Nederland	Amsterdam Haarlem	Den Haag Leiden	Utrecht	Rotterdam Dordrecht	Eindhoven	Heerlen Kerkrade
Industrie	0.3	0.9	0.5	0.3	0.7	0.3	0.3
Raffinaderijen	0.1	0.1	0.1	0.1	0.2	0.1	0.1
Energiesector	0.1	0.2	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
Afvalverwerking <sup>2)</sup>	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
Wegverkeer	1.4	2.2	2.1	3.1	2.3	1.9	1.2
Overig verkeer	0.8	1.3	1.2	1.5	1.3	1.0	0.7
Landbouw	0.9	0.6	0.8	0.9	0.8	1.7	0.4
Huishoudens	0.5	1.2	1.5	1.2	1.4	0.8	0.7
HDO <sup>3)</sup> /Bouw	0.3	1.2	0.9	0.5	1.6	0.3	0.3
Internationaal scheepvaart	1.1	1.3	1.4	1.2	1.4	0.9	0.7
Buitenland	7.0	5.9	6.4	6.5	7.0	8.7	10.8
Zeezout	4.5	6.1	6.4	4.5	5.5	3.1	2.9
Bodemstof en overig	8.8	6.3	6.1	8.2	7.2	9.9	9.6
<b>Totaal</b>	<b>25.7</b>	<b>27.3</b>	<b>27.4</b>	<b>28.0</b>	<b>29.4</b>	<b>28.7</b>	<b>27.5</b>

<sup>1)</sup> Agglomeraties zoals genoemd in het Besluit Luchtkwaliteit

<sup>2)</sup> Bijdrage is in elke agglomeratie en gemiddeld voor Nederland is  $0.01 \mu\text{g}/\text{m}^3$ .

<sup>3)</sup> HDO = Huishoudens, Diensten en Overheid

### 3. Trendbreuk metingen

Metingen van fijn stof uit het LML vormen een essentieel onderdeel in de GCN-kaarten methodiek (hoofdstuk 2). De  $PM_{10}$ -metingen op regionale achtergrondlocaties worden door het MNP gebruikt voor het kalibreren van de  $PM_{10}$ -berekeningen. Er zijn sterke aanwijzingen dat de gemeten achtergrondconcentratie van  $PM_{10}$  in Nederland de laatste twee jaar (2004, 2005) structureel 10-15% lager is dan een trendschatting voor 2004 en 2005, gebaseerd op de jaren vóór 2004.

Recentelijk hebben deze nieuwe inzichten geleid tot een bijstelling (verlaging) van verkenningen voor fijn stof (Velders, 2006b). Op basis van deze lagere concentraties is de omvang van het fijnstofprobleem kleiner dan tot nu toe werd aangenomen. Dit hoofdstuk beschrijft de significantie van de waargenomen trendbreuk in de fijnstofconcentratie. De betekenis van de trendbreuk voor de rekenmethodiek en fijnstofconcentraties is uitgewerkt en er wordt een onderbouwing gegeven voor de hiermee samenhangende keuze. Verder wordt kort ingegaan om de mogelijke oorzaken van de waargenomen trendbreuk.

#### 3.1 $PM_{10}$ -metingen

Het RIVM voert sinds 1992  $PM_{10}$ -metingen uit in het LML met automatische monitoren. De monitoren geven uurgemiddelde concentraties per meetstation die online worden gepresenteerd. Op deze wijze voorziet het RIVM in zijn wettelijke taak om de bevolking tijdig te informeren op het gebied van luchtkwaliteit c.q. fijn stof. Het  $PM_{10}$ -meetnet is tussen 2003 en 2005 uitgebreid met nieuwe stations en andere meetapparatuur in straten, in de stadsachtergrond en in het landelijke gebied. Deze uitbreiding is noodzakelijk (Van Breugel en Buijsman, 2001) om landelijke voldoende dekking te verkrijgen volgens de regels vastgelegd in de 1<sup>o</sup> dochterrichtlijn (EU, 2001b). Sinds 2003 bevat het LML naast het oude type meetinstrument ook een nieuw type.

Het aantal fijnstofmeetpunten in het LML is in de laatste drie jaar grofweg verdubbeld van 20 stations in 2002 tot 39 in 2005. Het aantal meetpunten op regionale achtergrondstations is uitgebreid van ongeveer 10 tussen 1992 en 2003 tot 17 meetpunten in 2005.

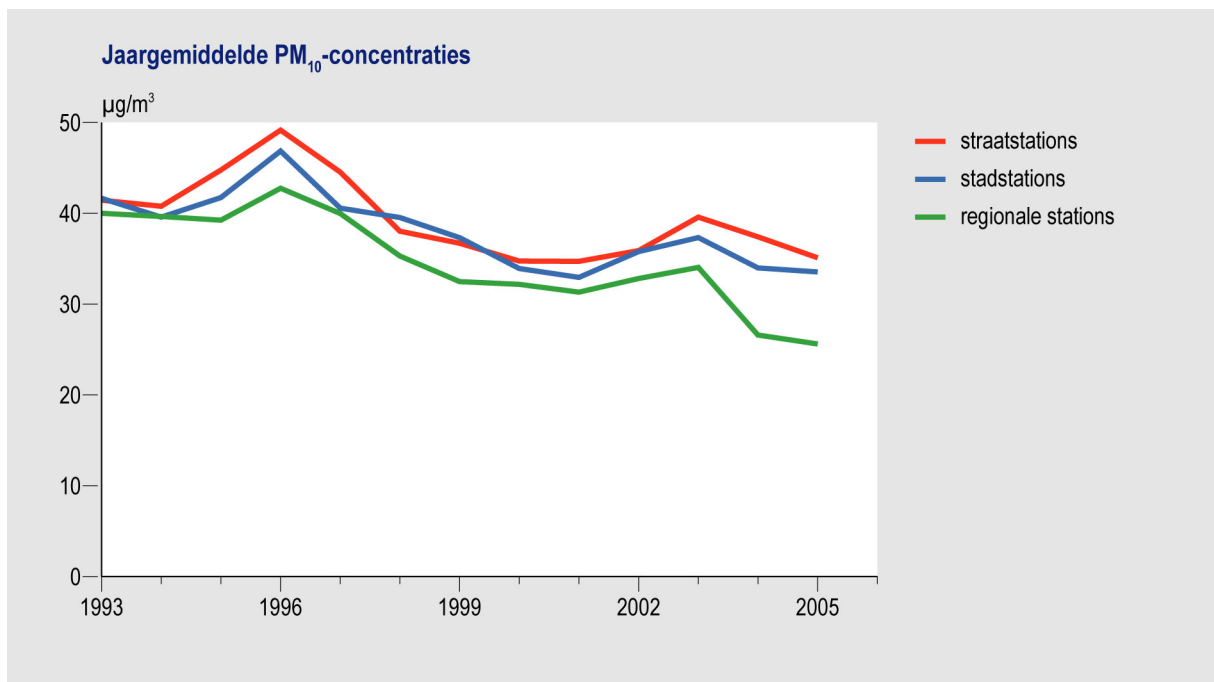
Er zijn verschillen in de meetreeks 1992-2004/2005 van het LML zoals die enerzijds in 2005, en anderzijds in 2006 is geleverd. De concentratie in de periode 1993-2002 is gemiddeld  $0.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$  hoger in de nieuwe meetreeks ten opzichte van de oude meetreeks, de 2003 waarden zijn  $0.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$  lager en de 2004 waarden zijn  $1.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$  hoger. Deze verschillen zijn het netto gevolg van de volgende punten:

- gebruik van nieuwe correctiefactor gelijk aan de Europese advieswaarde van 1.3. Deze waarde wordt aanbevolen bij gebrek aan voldoende nationale gegevens om de correctiefactor op te baseren (Williams en Bruckmann, 2002). Op dit moment voert het RIVM een meetcampagne uit die tot doel heeft om de fijnstofmetingen te herijken met behulp van referentiemetingen (De Jonge et al., 2005). De fijnstofmeetreeks die tot en met vorig jaar is gebruikt is bepaald met een correctiefactor van 1.33. Deze waarde werd toegepast sinds 1992;

- bijstelling gehele meetreeks conform de meetregeling bij de EU-richtlijn (EU, 2001a). Deze regeling schrijft voor dat de metingen worden uitgevoerd met een aanzuigvolume van lucht bij omgevingstemperatuur. De fijnstofmeetreeks die tot en met vorig jaar is gebruikt, is bepaald voor een aanzuigvolume van lucht bij standaard temperatuur en druk (20°C en 1013 hPa);
- hervalidatie meetgegevens 2003, 2004 en 2005. Meetgegevens zijn opnieuw geanalyseerd en gevalideerd in het licht van de herziene meetregeling (EU, 2001a). Zo bleek dat meetwaarden systematisch te laag werden vastgelegd (7% te laag) en daarnaast, specifiek voor het jaar 2003, bleek een aantal lage waarden ten onrechte afgekeurd in de validatieprocedure.

Bij afwezigheid van een complete meetreeks voor de jaren 1993-2005 waarin deze wijzigingen zijn door gevoerd, heeft het MNP een van schatting gemaakt van jaargemiddelde concentraties op basis van etmaalgemiddelde concentraties waarbij de genoemde veranderingen zijn verwerkt. De MNP-schattingen zijn identiek aan de meetgegevens uit het LML die reeds zijn aangepast.

De nieuwe meetreeks die zo is afgeleid (Figuur 3.1), is daarmee consistent voor wat betreft aanzuigvolume en correctiefactor. Mogelijke variaties in ruimte en tijd van de correctiefactor, die nu constant is gesteld, zullen gevolgen hebben voor de hieronder gepresenteerde meetreeks.



*Figuur 3.1 PM<sub>10</sub>-concentraties jaargemiddeld (1992 t/m 2005), gemiddeld voor straat- en stad- en regionale achtergrondstations na doorvoering van de bovengenoemde wijzigingen.*

Het verloop van de PM<sub>10</sub>-concentraties (Figuur 3.1) laat op alle stationstypen gemiddeld een daling van tussen de 0.5 en 1.0 µg/m<sup>3</sup> per jaar. Variaties in de concentratie van jaar tot jaar worden voor een groot deel veroorzaakt door verschillen in de meteorologische omstandigheden (Visser en Noordijk, 2002).



## 3.2 Trendbreuk

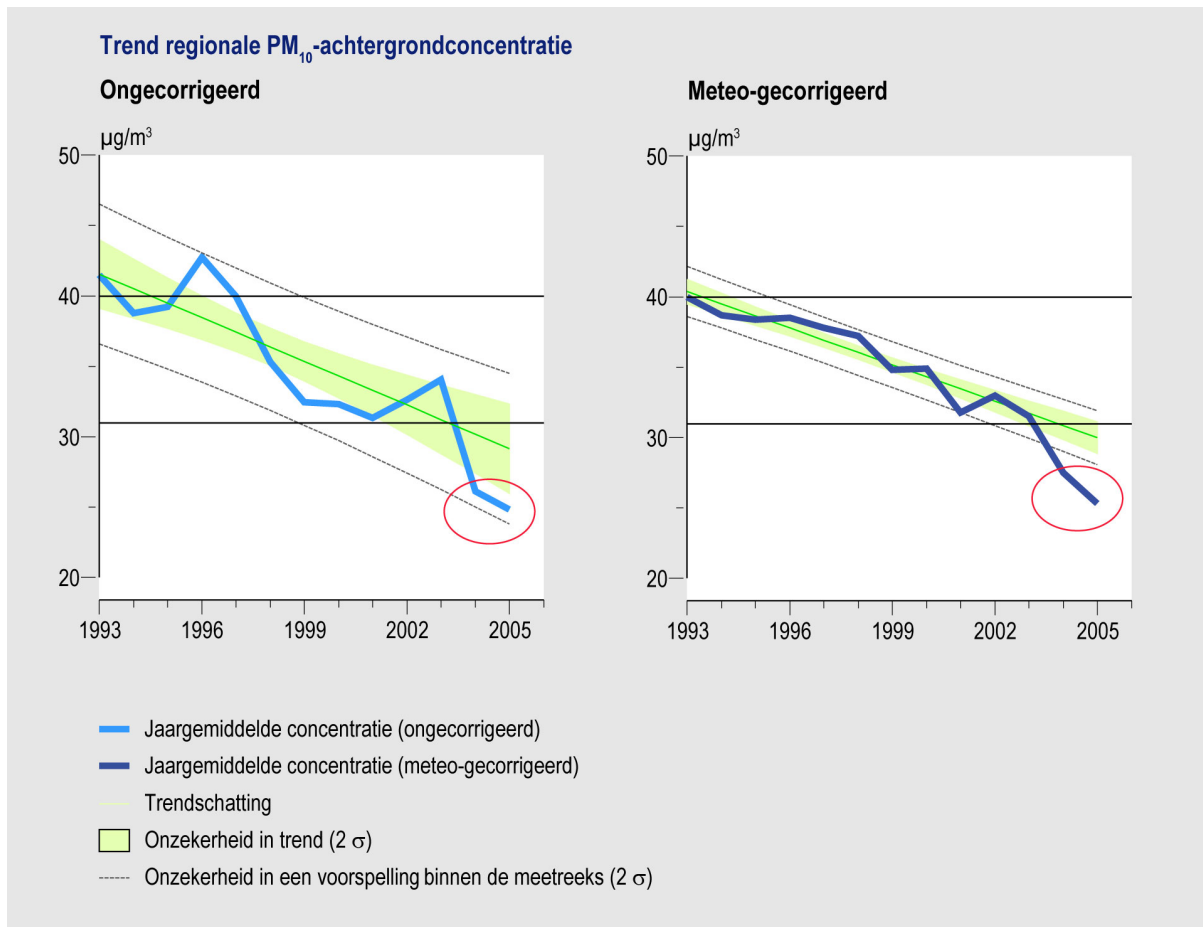
De concentraties op regionale achtergrondstations vertonen een dalende trend tot en met 2003 van  $0.9 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{jaar}$ . Van 2003 op 2004 vindt er een significante trendbreuk plaats. Een sprong tussen twee verschillende jaren wordt significant genoemd als deze groter is dan tweemaal de standaard fout (2-sigma). Zo is dan kans dat de waargenomen lage concentraties in 2004 en 2005 optreden door toevallige omstandigheden, kleiner dan eens per 1600 jaar.

De verdeling van fijnstofconcentraties in ruimte en tijd wordt bepaald door enerzijds verspreiding en vorming in de lucht van deeltjes en anderzijds van de bronsterkte van deeltjes en precursorgassen. Variatie in de gemeten concentratie kent daarom als oorzaak variaties in meteorologische parameters en variaties in parameters die van invloed zijn op de bronsterkte van de relevante stoffen. Hiernaast kunnen variaties die het gevolg zijn van de manier van meten uiteraard ook een rol spelen in de gemeten concentraties.

Een groot deel (60-70%) van de variatie in de jaar tot jaar concentraties komt gewoonlijk voor rekening van de wisselende meteorologische omstandigheden (Visser en Noordijk, 2002). Voor beleidsanalyses is het daarom noodzakelijk te corrigeren voor deze meteo-gerelateerde variaties om er achter te komen wel deel van de trend het gevolg is van (structurele) emissiereducties.

Zonder correctie voor meteo-gerelateerde variaties (Figuur 3.2, links) valt de trendbreuk niet waar te nemen. De trend en corresponderende onzekerheden zijn berekend voor de periode 1993-2003 en daarna geëxtrapoleerd voor de jaren 2004 en 2005. Op deze manier is aan te tonen of de laatste jaren passen in het patroon van alle voorafgaande jaren. Als metingen niet worden gecorrigeerd voor meteo-gerelateerde variaties, kunnen de lage waarden in 2004 en 2005 (in de ellips) ook wel door toeval ofwel gunstige meteorologische condities hebben plaatsgevonden. Gemiddeld eens in de 20 jaar zal door het toeval een jaargemiddelde concentratie buiten de grijze stippellijn liggen. Maar zowel de 2004- als de 2005-concentratie ligt nog ruim binnen de brede onzekerheidsband.

Echter met correctie voor meteo-gerelateerde variaties is er een duidelijk significante trendbreuk tussen de meetreeks tot en met 2003 en de meetcijfers van 2004 en 2005 (Figuur 3.2, rechts). Het rechterfiguur uit Figuur 3.2 laat de cijfers uit het linkerfiguur zien op een andere manier. Voor alle 10 regionale stations is met Regressieboom-analyse een meteo-correctie berekend op basis van maandgemiddelde concentraties over de periode 1993-2005 (zie Visser en Noordijk, 2002). Deze correcties zijn per jaar gemiddeld en toegepast op de hierboven getoonde data (zie ook Tabel 3.1). Als opnieuw een lineaire regressielijn wordt geschat op de meteo-gecorrigeerde concentraties, dan volgt de Figuur 3.2, rechts.



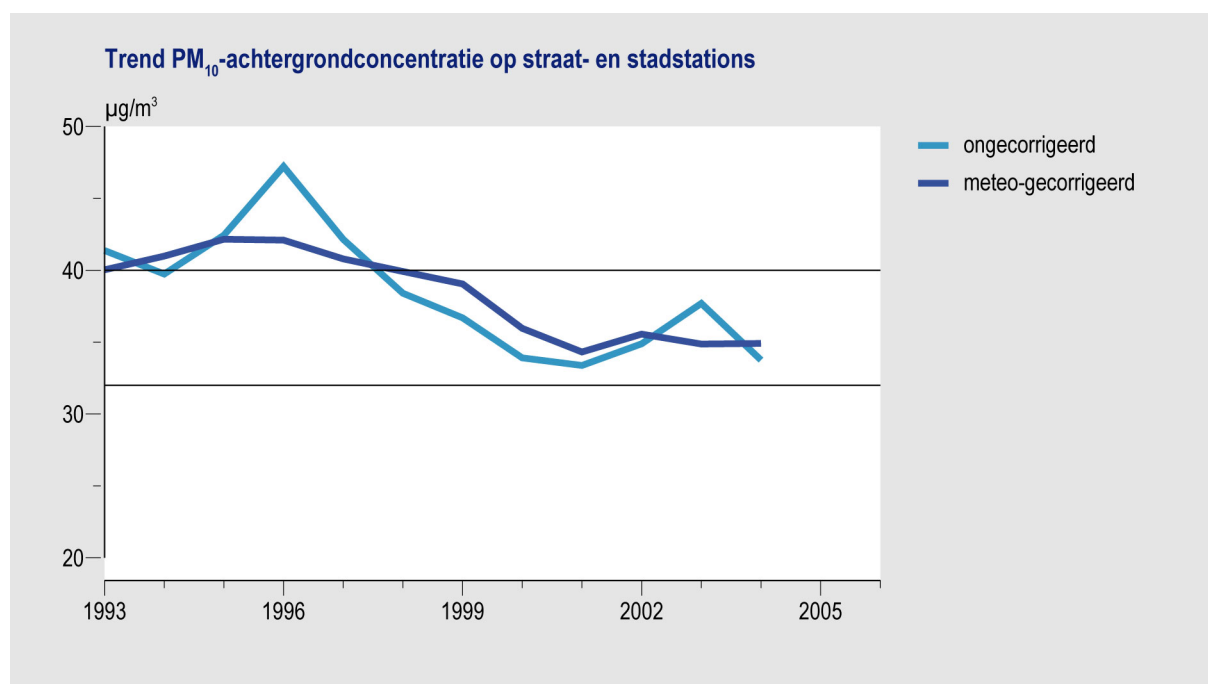
*Figuur 3.2 Jaargemiddelde concentratie op basis van PM<sub>10</sub>-metingen op 10 regionale achtergrondstations: ongecorrigeerd (links) en gecorrigeerd (rechts) voor meteo-gerelateerde variaties van jaar tot jaar.*

De dunne groene lijn geeft de trendschatting die is gemaakt met behulp van een trendmodel. De smalle onzekerheidsband (groen) geeft de onzekerheid in de trendschatting, terwijl de brede onzekerheidsbanden (begrensd door de grijze stippellijnen) de onzekerheid geeft als een meetwaarde binnen de reeks met het trendmodel moet worden beschreven, of beter gezegd 'voorspeld'. Voorspellen betekent hier dus niet een waarde in de toekomst maar een waarde binnen de reeks, op basis van het trendmodel. De dunne horizontale lijnen geven de jaargemiddelde grenswaarden weer: 40  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  voor het jaargemiddelde en 32  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  voor de omgerekende daggrenswaarde.

Door de meteorocorrectie zijn de variaties rond de regressielijn veel kleiner zijn geworden. Dit is natuurlijk logisch, omdat een groot deel van de jaar tot jaar-variates in de concentraties te verklaren is uit meteorologische verschillen van jaar tot jaar. Maar doordat de onzekerheidsbanden nu veel smaller zijn geworden, vallen de waarden in 2004 en 2005 ruim buiten het onderste 2-sigma-betrouwbaarheidsinterval. De kans dat concentraties buiten deze grenzen liggen, is 5%, anders gezegd: dat zal gemiddeld eens in de 20 jaar optreden. De kans dat dit door het toeval tweemaal achterelkaar zou optreden, is slechts 0.25% (~ eens in de 400 jaar). De kans dat de concentraties zo ruim onder de grootste 2-sigma band liggen is daarmee ruim kleiner dan eens in de 1600 jaar.

Op basis van deze analyse is in 2004 de sprong (ten opzichte van de trendvoorspelling)  $-3.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$  ( $30.9 \rightarrow 27.5$ ) en in 2005 is de sprong  $-4.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$  ( $30.0 \rightarrow 25.3$ ). Gemiddeld over beide jaren bedraagt de sprong naar beneden dus  $4.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ .

Een vergelijkbare analyse van de meetgegevens op straat- en stadsachtergrond laat zien dat er hier geen trendbreuk bestaat in de concentraties die zijn gecorrigeerd voor de meteorologische omstandigheden (Figuur 3.3). De gemiddelde meteo-gecorrigeerde concentraties van 2001 t/m 2004 blijven ongeveer gelijk.



*Figuur 3.3 Fijnstofconcentraties gemiddeld voor straat- en stadsachtergrondlocaties uit het LML die niet (lichtblauw) en wel (donkerblauw) gecorrigeerd zijn voor meteo-gerelateerde variaties van jaar tot jaar. De dunne horizontale lijnen geven de jaargemiddelde grenswaarden weer:  $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$  voor het jaargemiddelde en  $32 \mu\text{g}/\text{m}^3$  voor de omgerekende daggrenswaarde.*

Er heeft zich een significante daling van  $3.5$  à  $4.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$  voorgedaan in de  $\text{PM}_{10}$ -concentraties op het landelijk gebied in Nederland die niet wordt veroorzaakt door meteo-gerelateerde processen. Een modelanalyse van metingen op een viertal individuele regionale achtergrondlocaties ondersteunen deze conclusie (Bijlage B). Verder laat deze analyse zien dat de daling op al deze vier stations significant is, hoewel de grootte van de daling varieert per station.

## Meteocorrectie

De meteocorrectie beschreven door Visser en Noordijk (2002) corrigeert voor variaties als gevolg van maandgemiddelde meteorologische omstandigheden. Ook bronsterktevariaties die gecorreleerd zijn met meteorologische parameters, worden verdisconteerd. Zo wordt bijvoorbeeld in de meteocorrectie automatisch rekening gehouden met een extra hoge emissie door verwarming bij een buitengewoon lage temperatuur. Toepassing van deze methodiek zal vooral wijzigingen met een grote impact op concentraties zichtbaar maken zoals structurele emissieveranderingen. De meteocorrectie is namelijk gebaseerd op een lange reeks gegevens die kleine variaties uitmiddelt.

Tabel 3.1 geeft een overzicht van de meteocorrectie gemiddeld voor 10 regionale achtergrondstations waarvoor de reeks 1993-2005 beschikbaar is. Correctie voor meteorologische variabiliteit per jaar en per regionaal station. Negatieve correcties betekenen dat de gemeten concentraties lager zijn dan verwacht mag worden op basis van gemiddelde meteorologie. Dit zijn jaren met gemiddeld hogere windsnelheden, meer neerslag dan gemiddeld en minder dagen met wind uit oostelijke richtingen. De jaargemiddelde waarden voor 2004 en 2005 (-1.42 en -0.42  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) zijn eerder gebruikt om een meteocorrectie toe te passen op gemeten concentraties in de jaren 2004 en 2005 (paragraaf 2.5).

*Tabel 3.1 Jaargemiddelde concentratiecorrectie ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) voor meteo-gerelateerde variaties op regionale achtergrondstations voor de periode 1992-2005. Meteo-correctie methodiek conform Visser en Noordijk (2002).*

Station/jaar	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003	2004	2005
Vredepeel	3.63	-0.88	0.94	4.67	2.28	-2.06	-3.22	-3.80	0.59	-0.56	3.02	-1.27	-0.10
Wijnandsrade	-0.23	-1.13	1.69	0.58	3.16	0.57	-3.04	-2.95	-1.79	0.60	3.59	-1.28	-0.06
Biest	2.40	0.36	3.46	4.63	4.27	-3.46	-3.13	-6.61	0.45	-0.92	3.44	-2.44	-0.52
Philippine	3.83	0.17	-1.00	4.53	0.83	-1.97	-4.09	-1.04	-1.50	0.05	3.92	-0.60	0.59
Westmaas	3.10	0.73	1.37	3.06	1.61	-2.21	-0.60	-2.12	0.16	-1.84	2.04	-0.15	-1.82
de Zilk			1.98	5.23	1.74	-1.07	-3.29	-1.67	-1.89	-0.42	1.98	-1.19	-0.62
Wieringerwerf	-3.35	0.68	-0.02	6.32	2.18	-3.26	-1.38	-1.91	-0.93	0.01	2.36	-1.00	-0.01
Eibergen	2.20	-0.44	0.46	3.55	2.15	-0.36	-1.89	-2.46	0.98		2.03	-1.56	-0.97
Wageningen <sup>1)</sup>	1.81	-0.60	-0.35	3.22	2.60	-1.15	-1.04	-0.80	-0.40		2.47	-2.72	-0.87
Witteveen <sup>2)</sup>	-0.18	1.87	0.21	6.52	1.38	-3.78	-1.49	-2.67	-0.02	0.03	1.14	-2.00	0.15
<b>Gemiddelde</b>	<b>1.47</b>	<b>0.08</b>	<b>0.87</b>	<b>4.23</b>	<b>2.22</b>	<b>-1.87</b>	<b>-2.32</b>	<b>-2.60</b>	<b>-0.44</b>	<b>-0.38</b>	<b>2.60</b>	<b>-1.42</b>	<b>-0.42</b>

1) Stationreeks Wageningen gekoppeld met complementaire reeks voor station Wekerom.

2) Stationreeks Witteveen gekoppeld met complementaire reeks van station Valthermond.

## 3.3 Betekenis van de trendbreuk

De betekenis van deze trendbreuk met een daling van 3.5 à 4.0  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  gemiddeld voor regionale achtergrondlocaties is verstrekkend. Dit komt omdat de  $\text{PM}_{10}$ -concentraties in Nederland in de buurt van de strengste grenswaarde liggen. De strengste grenswaarde is die voor het aantal dagen overschrijding van 50  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  daggemiddeld (maximaal 35 keer). Deze grenswaarde komt overeen met een jaargemiddelde concentratie van ongeveer 32  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  (inclusief de aftrek van zeezout).

Verder is de reikwijdte van het nationale en/of lokale beleid om PM<sub>10</sub> te reduceren beperkt. Hieronder enkele cijfers ter indicatie van de reikwijdte van het nationale beleid:

- 1 µg/m<sup>3</sup> is de potentiële afname op lokale knelpunten door emissiereducties als gevolg van recentelijk vastgesteld beleid: Euro-5 norm voor verkeer en de maatregelen van het 'Prinsjesdagpakket' (Hammingh et al., 2005);
- 2.2 µg/m<sup>3</sup> is ongeveer de bijdrage in 2005 van alle Nederlandse geregistreerde bronnen van primair fijn stof (Velders et al., 2006b);
- 4.4 µg/m<sup>3</sup> is ongeveer de totale Nederlandse antropogene bijdrage aan fijn stof (primair + secundair) in 2005 (Velders et al., 2006b).

Overigens moet opgemerkt worden dat systematische veranderingen van de orde van de trendbreuk binnen de banden van onzekerheid vallen die fijn stof omgeven. Zo ontstaat de situatie dat een relatief kleine concentratiedaling, in termen van onzekerheid, resulteert in een overgang van knellende overschrijdingen in een groot deel van Nederland (met alle gevolgen voor de ruimtelijke ordening van dien), naar een toestand waar overschrijdingen van de grenswaarde zich grotendeels beperken tot stedelijke agglomeraties en snelwegen.

De doorwerking van de trendbreuk in de PM<sub>10</sub>-kaartenmethodiek is tweërlei. Enerzijds worden berekende concentraties voor verstreken jaren gekalibreerd aan metingen op regionale achtergrondlocaties (zie paragraaf 2.1). Hierdoor zijn de PM<sub>10</sub>-kaarten van de verstreken jaren automatisch aangepast aan de mogelijk structureel gewijzigde concentratieniveaus in de achtergrond. Anderzijds worden verkenningen van PM<sub>10</sub> gekalibreerd op basis van een combinatie van meetgegevens en berekeningen voor een reeks jaren. Hierbij is consistentie van de gebruikte meetreeks en berekeningen essentieel. Ook is het van belang om een zo lang mogelijke reeks te gebruiken, hoe langer de reeks des te kleiner de onzekerheid in de verkenningen. Variaties van jaar tot jaar door onder andere wisselende meteorologische omstandigheden worden zo uitgemiddeld. Een significante trendbreuk dwingt tot het maken van een keuze voor het gebruik van ofwel de lange consistente meetreeks 1992-2003 dan wel de korte consistente meetreeks 2004-2005.

Er is gekozen voor de korte consistente meetreeks 2004-2005. Bij de GCN-levering 2006 is voor PM<sub>10</sub>-verkenningen gebruik gemaakt van de meetgegevens en berekeningen voor 2004 en 2005 die gecorrigeerd zijn voor meteo-gerelateerde variaties (paragraaf 2.6). De argumenten voor deze optie zijn het overtuigendst (zie paragraaf 3.4). De methode waarmee de meteocorrecties wordt berekend is wel bepaald aan de hand van de gehele meetreeks, omdat een meetreeks van twee jaar hiervoor te kort is. De sprong in 2003 is hierbij als *ex-ante*-informatie meegenomen. Daarmee is de methode niet meer afhankelijk van de sprong. Wel is de meteocorrectiemethode een benadering, omdat niet precies bekend is of de maand tot maand-variabiliteit van het oude type meetinstrument afwijkt van die van het nieuwe type.

Naast de meest aannemelijke schatting voor de bijdrage van 'overige bronnen PM' aan de verkenningen voor PM<sub>10</sub> is er ook een alternatieve OBP-schatting gemaakt als gevoeligheidsstudie (zie hoofdstuk 4). De alternatieve schatting is op basis van de gehele reeks (1992-2005) als ware er geen significante trendbreuk.

### 3.4 Onderbouwing keuze 2004/2005

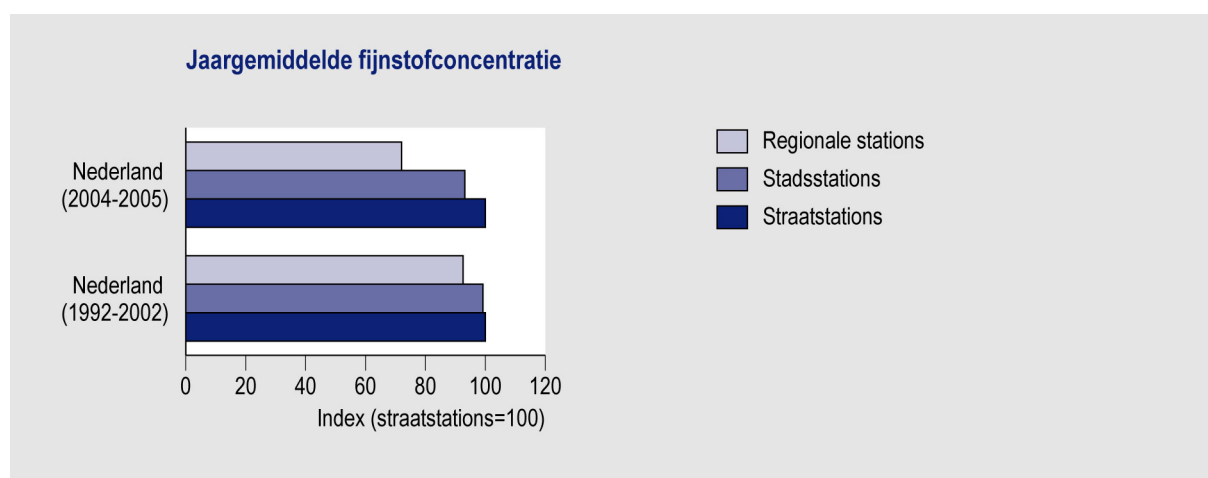
De discontinuïteit in de meetreeks leidt ertoe dat de metingen tussen 1992 en 2003 enerzijds en die van de jaren 2004–2005 anderzijds van elkaar onderscheiden moeten worden. Aan de meetreeks van de recente jaren wordt de meeste betekenis toegekend. Hieronder volgen de belangrijkste argumenten hiervoor.

#### 1. 2004-2005 verschil regio en stad/straat komt het best overeen met referentiemetingen.

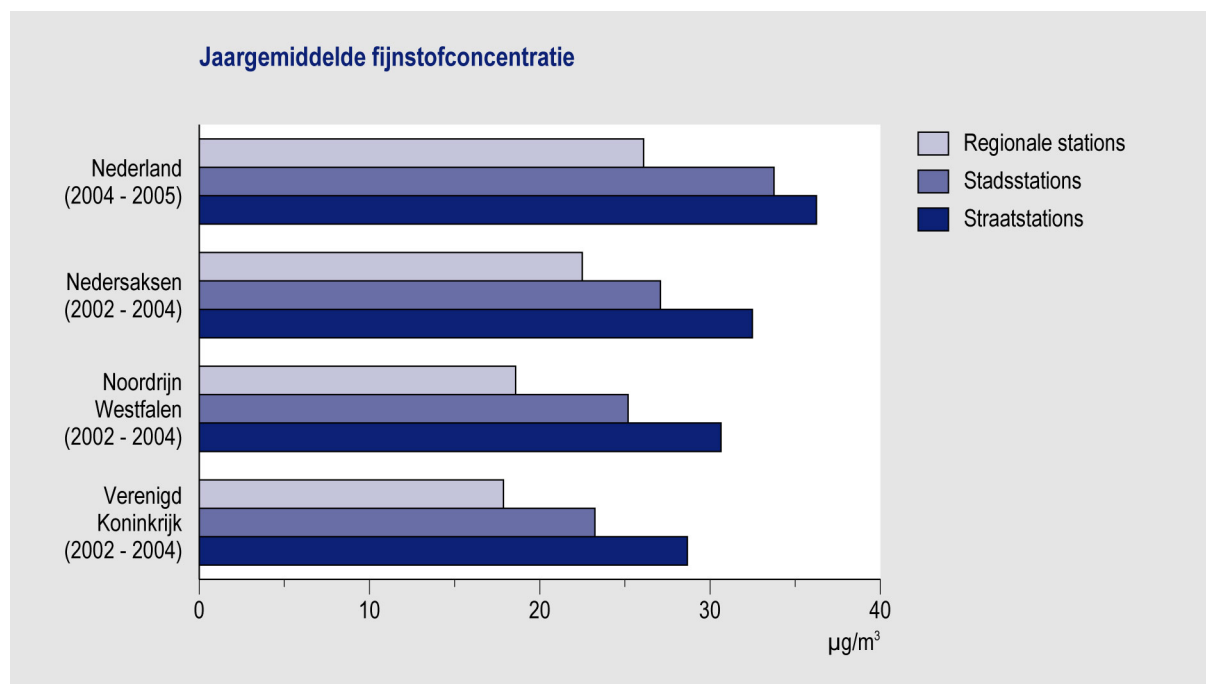
Het over de afgelopen twee jaar gevonden concentratieverschil tussen de stedelijke omgeving en het landelijk gebied wordt geborgd door vergelijkingen met Europese referentieapparatuur. Vanaf 2004 is de systematische vergelijking van de automatische metingen in het LML met referentiemetingen gestart. Tot nu zijn voor 7 van de 39 locaties (3 regionaal en vier stad/straat) volledig gevalideerde vergelijkingsmetingen voorhanden. De referentiemetingen uitgevoerd volgens NEN (1998) vormen *de facto* een definitie van fijn stof. Op basis van de zeven reeksen referentiemetingen blijkt dat de fijnstofconcentraties op stad/straat stations ongeveer  $7 \mu\text{g}/\text{m}^3$  hoger zijn dan op de regionale achtergrondstations (persoonlijke communicatie R. Hoogerbrugge). Dit getal komt beter overeen met het gemiddelde verschil dat wordt waargenomen met de automatische bèta-stof-monitoren uit het LML over de periode 2004-2005 ( $8\text{-}10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) dan over de periode 1992-2003 ( $2\text{-}5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ). De vergelijkingstudies van vóór 2004 zijn te beperkt om een vergelijkbare conclusie over de metingen uit die periode te kunnen maken. De resultaten uit eerdere vergelijkingen geven wel aanwijzingen die de verschilgrootte in 2004-2005 tussen regio en stad/straat ondersteunen (Van Putten et al., 2002b).

#### 2. 2004-2005 verschil regio en stad/straat strookt met de waarnemingen in het nabije buitenland

Het beeld dat de laatste twee jaren in Nederland gevonden wordt (Figuur 3.4), komt beter overeen met de waarnemingen in buitenlandse meetnetten (Figuur 3.5).



*Figuur 3.4 Gemiddelde fijnstofconcentraties voor de stad-, straat- en regionale meetlocaties in Nederland op basis van dezelfde stationset. Weergegeven is de gemiddelde situatie in de jaren 1992 tot en met 2002 en die in de jaren 2004 en 2005. Bron: LML.*



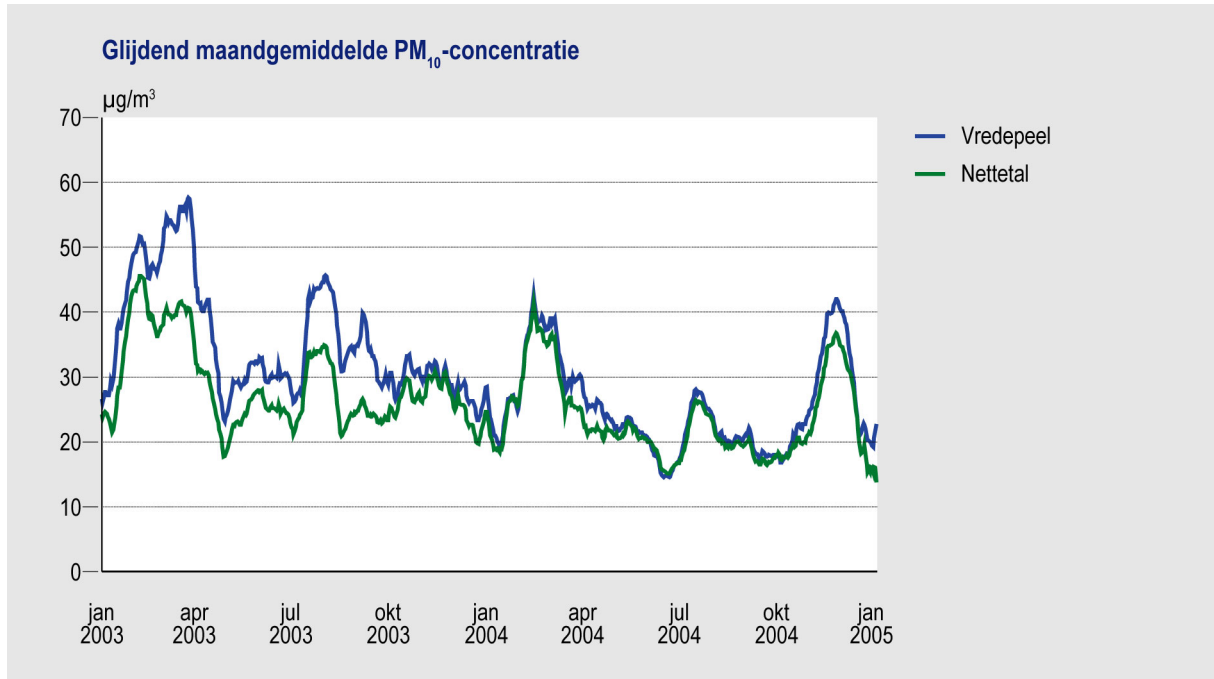
*Figuur 3.5 De concentratieverschillen tussen fijnstofmetingen in stad/straat en regionale omgevingen in Nederland, Duitsland en het Verenigd Koninkrijk. Bron: AIRBASE, LML.*

### **3. Voor de recente jaren is er meer overeenstemming tussen de metingen in het landelijk gebied in Nederland en in Duitsland**

Figuur 3.5 geeft aan dat de Nederlandse metingen vanaf 2004 op regionale stations beter in overeenstemming zijn met de waarnemingen in het Duitse landelijk gebied in de aangrenzende deelstaten Noordrijn-Westfalen en Nedersaksen. In meer detail blijkt dat metingen op stations aan weerszijden van de Nederlands-Duitse grens in 2004 beter overeenstemmen dan in 2003. Figuur 3.6 geeft bijvoorbeeld een vergelijking voor de concentraties op Vredepeel (NL) en Nettetal (D). Niet alleen komen de concentraties in absolute zin dicht bij elkaar in de buurt, ook neemt de correlatie toe tussen de dagwaarden in 2004 in vergelijking met 2003. Hetzelfde geldt voor andere combinaties van grensstations. Een bredere vergelijking met eerdere jaren is voor deze stations niet mogelijk omdat  $PM_{10}$ -cijfers op deze Duitse stations pas beschikbaar zijn vanaf 2003 in Noordrijn-Westfalen.

### **4. Voor de recente jaren komen modelberekeningen meer overeen met de metingen**

Voor de meest recente jaren zijn de metingen op regionaal niveau, de stedelijke agglomeraties en lokale, verkeersrijke omgevingen meer in overeenstemming met de bijdragen van de verschillende bronnen op deze respectievelijke schaalniveaus dan in de eerdere jaren. De modelberekeningen (CAR) waarmee uitgaande van het grootschalige niveau (GCN-kaart) de lokale  $PM_{10}$ -concentraties geschat worden, sporen dan ook voor deze recente jaren beter met de metingen. Voor  $NO_2$  was dit altijd al het geval en nu dit in de recente jaren voor  $PM_{10}$  is verbeterd, ondersteunt het daarmee de keuze voor de jaren 2004-2005.



*Figuur 3.6 Glijdend maandgemiddelde PM<sub>10</sub>-concentratie op nabijgelegen stations in de regionale omgeving in Nederland (Vredepeel) en Duitsland (Nettetal) in de periode 2003-2004. Bron: AIRBASE, LML. De afstand tussen de stations Vredepeel en Nettetal is ongeveer 35 km.*

##### **5. In recente jaren komt verschil meting-model beter overeen met eerdere analyse**

Tabel 3.2 geeft de drie schattingen voor OBP. Dit rapport geeft een gemiddeld verschil meting-model voor de jaren tót de trendbreuk 1993-2002 van 20.2 µg/m<sup>3</sup> (paragraaf 2.5). Het gemiddelde verschil (inclusief meteocorrectie) voor de jaren ná de trendbreuk 2004/2005 is 14.4 µg/m<sup>3</sup> (paragraaf 2.5). De marge voor de totale concentratiebijdrage door zeezout, bodemstof, bronnen buiten Europa, water, biostof en secundair organisch aërosol is 12 tot 18 µg/m<sup>3</sup>. Visser et al. (2001) geven hiervoor de basis met een gemiddelde bijdrage van zeezout, bodemstof en de bijdragen van bronnen buiten Europa van 9 tot 12 µg/m<sup>3</sup> afhankelijk van de lage dan wel hoge schatting voor zeezout.

Over de gemiddelde bijdrage van water, biostof en secundair organisch aërosol (zie hoofdstuk 6) is nog weinig bekend. Een bereik van 3 tot 6 µg/m<sup>3</sup> is een ruwe schatting voor deze bijdrage aan PM<sub>10</sub> in Nederland (zie paragraaf 6.4). Samen levert dit dus de genoemde marge van 12 tot 18 µg/m<sup>3</sup>. Hiermee komt de OBP-schatting van 14.4 µg/m<sup>3</sup> (ná de trendbreuk) beter overeen dan de schatting van 20.2 µg/m<sup>3</sup> (vóór de trendbreuk).



*Tabel 3.2 Schattingen voor de bijdrage door 'overige bronnen PM' voor fijnstofverkenningen op basis van: gegevensreeks (1993-2002), meteo-gecorrigeerde gegevens voor 2004/2005 en de som van samenstellinggegevens.*

<b>OBP, 'Overige bronnen PM'</b>	<b><math>\mu\text{g}/\text{m}^3</math></b>	<b>Opmerking</b>
OBP 1993-2002 (LML – OPS)	20.2	paragraaf 2.5
OBP 2004-2005 (LML – OPS), meteo-gecorrigeerd	14.4	paragraaf 2.5
OBP	12 - 18	schatting*

\* Zeezout, bodemstof en bronnen buiten Europa: 9-12  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  (Visser et al., 2001) + Water, biostof en SOA: 3-6  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  (dit rapport; paragraaf 6.4).

De metingen over de recente jaren 2004 en 2005 vormen dus een betere basis voor GCN-kaarten dan de metingen van de eerdere jaren. De GCN-kaart 2005 en de verkenningen kunnen daarom gezien worden als de wetenschappelijk meest verantwoorde schatting van het grootschalige niveau van  $\text{PM}_{10}$  in Nederland.

### 3.5 Mogelijke verklaringen trendbreuk

Hiervoor is vastgesteld dat de trendbreuk niet te verklaren is door variaties in de meteorologische omstandigheden of hiermee gecorreleerde processen. Daarvoor zijn meteorologische gegevens gebruikt met een tijdschaal van 1 maand en een ruimtelijke schaal van ongeveer 80 km.

Als verklaring blijven de volgende vier punten over in volgorde van plausibiliteit:

1. Verandering in de metingen en/of de meetmethode van fijn stof.
2. Variaties in meteorologische omstandigheden en vluchtig fijn stof met een ruimtelijke schaal kleiner dan 80 km en/of met een tijdschaal kleiner dan 1 maand.
3. Een sterke onbekende en onverklaarde verandering in de emissie van fijn stof en/of van precursorgassen.
4. Een tot nu toe nog onbegrepen verandering in de chemie van de atmosfeer. Hierdoor zou het fijn stof dat in de lucht gevormd wordt uit ammoniak, stikstofdioxide, zwaveldioxide en in mindere mate chloride in de lucht plotseling en ingrijpend veranderd zijn.

De punten 3 en 4 zijn nog niet uit te sluiten maar de plausibiliteit ervan is gering. Verklaring 3 is slechts plausibel als de uitstoot van fijn stof in binnen- en buitenland in een kort tijdsbestek sterk en structureel is gedaald. Tegelijkertijd moet de fijnstofemissie van het verkeer in de stedelijke omgeving sterk zijn toegenomen om de concentratiedaling in het landelijk gebied te compenseren (zie Figuur 3.1). De concentraties in de stedelijke omgeving worden immers bepaald door een verhoging van het achtergrondniveau door lokale verkeersemmissies.

De gemiddelde antropogene bijdrage van Nederland aan de fijnstofconcentratie is ongeveer 5  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  en die van het buitenland is ongeveer 10  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . De omvang van emissieveranderingen moet buitengewoon groot zijn geweest om het gevonden concentratieverloop te verklaren. Zo'n emissieverandering zou ook zichtbaar moeten zijn in het nabije buitenland. Een vergelijking met buitenlandse metingen leert dat zich elders geen vergelijkbare discontinuïteit heeft voorgedaan (bijvoorbeeld Figuur 3.6).

Verklaring 4 is het minst plausibel. Fysisch en atmosferisch-chemische veranderingen met de specifieke concentratiewijzigingen als gevolg zullen een grootschalig karakter hebben en daarom ook buiten Nederland waarneembaar moeten zijn. Dit is zoals hiervoor besproken niet het geval.

### **Meest waarschijnlijke hypothese voor de trendbreuk**

De meest waarschijnlijke verklaringshypothese voor de trendbreuk in de fijnstofconcentraties in het landelijk gebied is de wijziging in de voorverwarmingsinstelling bij het nieuwe type meetinstrument eind 2003. Vóór de wijziging was namelijk nog vastgesteld dat de resultaten van het oude- en nieuwe type meetinstrument gelijkwaardig waren. De relatief kleine wijziging heeft waarschijnlijk geleid tot een onverwacht grote toename in de hoeveelheid fijn stof, die verdampt tijdens de voorverwarming van het luchtmonster. Dat de trendbreuk zich vooral op stations in het landelijk gebied heeft gemanifesteerd, komt waarschijnlijk omdat het nieuwe type meetinstrument om praktische redenen bijna alleen op regionale achtergrondstations is geplaatst. De verdampingstoename bij het nieuwe type meetinstrument, als gevolg van de wijziging in de voorverwarmingsinstelling, is mogelijk versterkt door specifieke omstandigheden in het landelijk gebied. De hoeveelheid vluchtige bestanddelen in fijn stof wordt vooral bepaald door de temperatuur, relatieve vochtigheid en ammoniumnitraatconcentratie. Deze grootheden verschillen waarschijnlijk ruimtelijk zodanig dat de hoeveelheid vluchtige bestanddelen in fijn stof in het landelijk gebied groter is dan in de stedelijke omgeving. De hoeveelheid water op deeltjes en in de lucht speelt in het verdampingsproces mogelijk een sturende rol.

Hoewel de hierboven genoemde hypothese het meest waarschijnlijk wordt geacht, zijn er nog veel vragen onbeantwoord. Hierdoor is er nog geen sluitende verklaring voor de waargenomen trendbreuk met een beschrijving van het mechanisme. In Bijlage C wordt de hypothese verder onderbouwd op basis van een gedetailleerdere analyse van de meetgegevens, de veranderingen in het fijnstofmeetnet en gegevens uit de literatuur.

## Wat als de hypothese juist is?

Als bovenstaande hypothese voor de verklaring van de waargenomen trendbreuk juist is dan leidt dit tot de volgende conclusies:

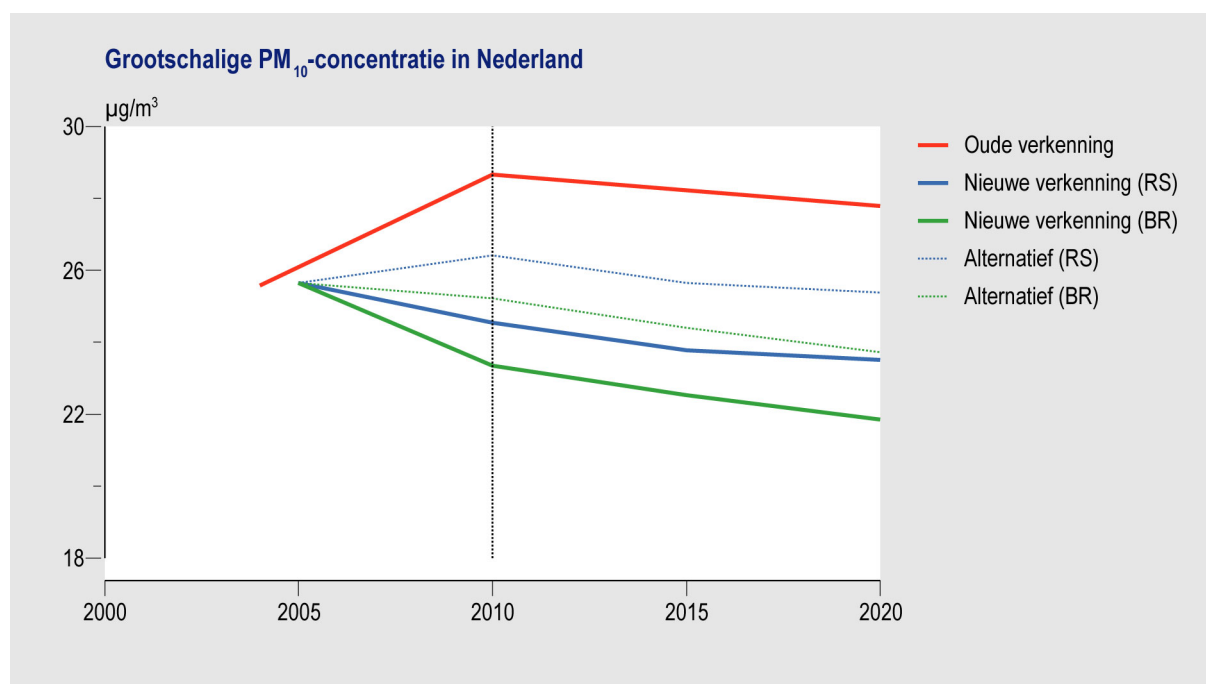
- In het landelijk meetnet luchtkwaliteit wordt  $PM_{10}$  gemeten met een mix van twee verschillende typen automatische meetinstrumenten. Equivalentie en vergelijkbaarheid van beide typen zijn op dit moment niet vastgesteld.
- Trendanalyse van de bestaande meetreeks is omgeven met een grotere onzekerheidsband dan tot nu toe is aangenomen.
- Het verschil in de gemeten  $PM_{10}$ -concentraties tussen beide typen meetinstrument wordt waarschijnlijk veroorzaakt door verschillen, per type, in de voorverwarmingsmethode van het luchtmonster. Voorverwarming kan er toe leiden dat de  $PM_{10}$ -massa in het luchtmonster afneemt, door verdamping van vluchtige  $PM_{10}$ -bestanddelen zoals water, maar onder bepaalde omstandigheden kan de  $PM_{10}$ -massa juist toenemen.
- De correctiefactor, die corrigeert voor de vervluchtigde  $PM_{10}$ -massa, verschilt per type meetinstrument. Bovendien is de correctiefactor afhankelijk van grootheden die sterk kunnen verschillen per meetlocatie als temperatuur, relatieve vochtigheid en de hoeveelheid vluchtig  $PM_{10}$  (bijvoorbeeld ammoniumnitraat) en precursors van vluchtige  $PM_{10}$ -bestanddelen (bijvoorbeeld ammoniak). Ook deze afhankelijkheid van omgevingsfactoren verschilt weer per type meetinstrument.
- De huidige correctiefactor van 1.3 is gemiddeld te hoog voor  $PM_{10}$ -concentraties gemeten met het *oude* type meetinstrument. Omstandigheden typisch voor het landelijk gebied, relatief lage temperatuur en hoge luchtvochtigheid met gemiddelde of hoge ammoniumnitraatconcentratie, spelen hierbij mogelijk een rol. Ook de correctiefactoren voor het nieuwe type meetinstrument verschillen in de tijd en per locatie. Hiervoor is nog geen verklaring.
- Het heeft geen zin om ruimte- en/of tijdsafhankelijke correctiefactoren te bepalen als de mate waarin de correctiefactor afhangt van lokale omstandigheden onbekend is. Dit betekent dat, naast het regelmatig uitvoeren van referentiemetingen volgens de EU-voorschriften, er zal moeten worden onderzocht welke rol variaties van temperatuur en vocht en  $PM_{10}$ -samenstelling in ruimte en tijd spelen bij de vervluchtiging van  $PM_{10}$  tijdens het meten.
- Uitbreiding van automatische  $PM_{10}$ -metingen met gelijktijdige metingen van temperatuur en de relatieve vochtigheid kan de nauwkeurigheid van correctiefactoren verhogen.
- Ook zal meer informatie over de samenstelling van fijn stof op een meetlocatie tot een nauwkeuriger schatting van de correctiefactor leiden. In deze lijn vindt in het buitenland uitbreiding van meetactiviteiten plaats om de onzekerheden rond fijn stof te reduceren. Catalonië, bijvoorbeeld, rapporteert overschrijdingen alleen op basis van metingen met referentieapparatuur en voorziet in z'n publieke informatieplicht voor wat betreft de luchtkwaliteit met behulp van geijkte automatische monitoren. Ook Italië is bezig om zijn 350 automatische monitoren geleidelijk aan te vervangen door referentieapparaten.



## 4. Alternatieve verkenningen

De GCN-verkenningen voor 2010, 2015 en 2020 zijn gebaseerd op het Referentiescenario (afgekort met RS; Velders et al., 2006b) en maken gebruik van een bijschatting voor 'overige bronnen PM' op basis van de jaren 2004/2005. In Velders et al. (2006b) is een aantal alternatieve PM<sub>10</sub>-concentratiekaarten gemaakt bij wijze van gevoeligheidsanalyse. Zo zijn in plaats van het referentiescenario verkenningen voor de jaren 2010, 2015 en 2020 PM<sub>10</sub>-kaarten gemaakt met het zogenaamde Beleidsrijke Scenario (afgekort met BR), waarbij een aantal potentiële emissiereducties verondersteld wordt te zijn geïmplementeerd. Daarnaast is als tweede gevoeligheidsstudie een andere schatting toegepast voor de bijdrage door 'overige bronnen PM'. Zo is in plaats van de jaren 2004/2005 de kalibratie uitgevoerd op basis van de reeks 1993 t/m 2005.

De emissiescenario's RS en BR worden beschreven in Velders et al. (2006). Figuur 4.1 geeft een overzicht van de resultaten gemiddeld voor Nederland. Ter vergelijking zijn de gemiddelde waarden van de GCN-levering van 2005 opgenomen, gemaakt voor 2004, 2010-2020 (oude verkenning). In dit hoofdstuk wordt verder de methodiek voor een alternatieve kalibratie op basis van de gehele reeks 1993-2005 behandeld.



Figuur 4.1 Grootschalige concentratie (gemiddeld over Nederland).

Oude verkenning is de verkenning volgens de referentieraming (de GCN-levering 2005), Alternatief (RS) is de nieuwe verkenning volgens het Referentiescenario met alternatieve kalibratie, Alternatief (BR) is de nieuwe verkenning met aanvullend beleid en alternatieve kalibratie, Nieuwe verkenning (RS) is de nieuwe verkenning volgens het Referentiescenario (de GCN-levering 2006) en Nieuwe verkenning (BR) is de nieuwe verkenning met aanvullend beleid. De waarden voor de jaren 2004 en 2005 zijn gekalibreerd aan de metingen uit dat specifieke jaar, terwijl voor de toekomstige jaren een kalibratie op basis van een langere meetreeks heeft plaats gevonden. Voor 2010 zijn de concentratiekaarten gegeven in Figuur 4.2.

## 4.1 Alternatieve verkenningen PM<sub>10</sub>

De PM<sub>10</sub>-kaart voor 2010-2020, die is gekalibreerd aan de hele meetreeks van 1993 t/m 2005, is gemiddeld ongeveer 2 µg/m<sup>3</sup> hoger dan de GCN-kaart die is gekalibreerd aan de PM<sub>10</sub>-metingen uit 2004 en 2005. Deze alternatieve PM<sub>10</sub>-kaart is daarmee nog wel ongeveer 2 µg/m<sup>3</sup> lager dan de kaarten die vorig jaar zijn gemaakt. De verkenningen van dit jaar voor 2010-2020 zijn dus ongeveer 4 µg/m<sup>3</sup> lager dan die van vorig jaar als gevolg van de bijstelling van de bijdrage 'overige bronnen PM' op basis van de trendbreuk 2003-2004. Verder zijn de scenario's voor nationale emissies van primair fijn stof en NO<sub>x</sub> voor 2010 t/m 2020 iets naar beneden bijgesteld door nieuwe inzichten. Daarnaast heeft er een verbetering plaatsgevonden van de ruimtelijke verdeling van emissies door verkeer en is de berekening van emissies door op- en overslag aangepast. Deze wijzigingen zijn uitgewerkt in Velders et al. (2006b).

Alternatieve verkenningen volgens het Beleidsrijke Scenario (BR) laten tussen 2010 en 2020 een extra daling zien, ten opzichte van het Referentiescenario (RS), van 1 à 2 µg/m<sup>3</sup>.

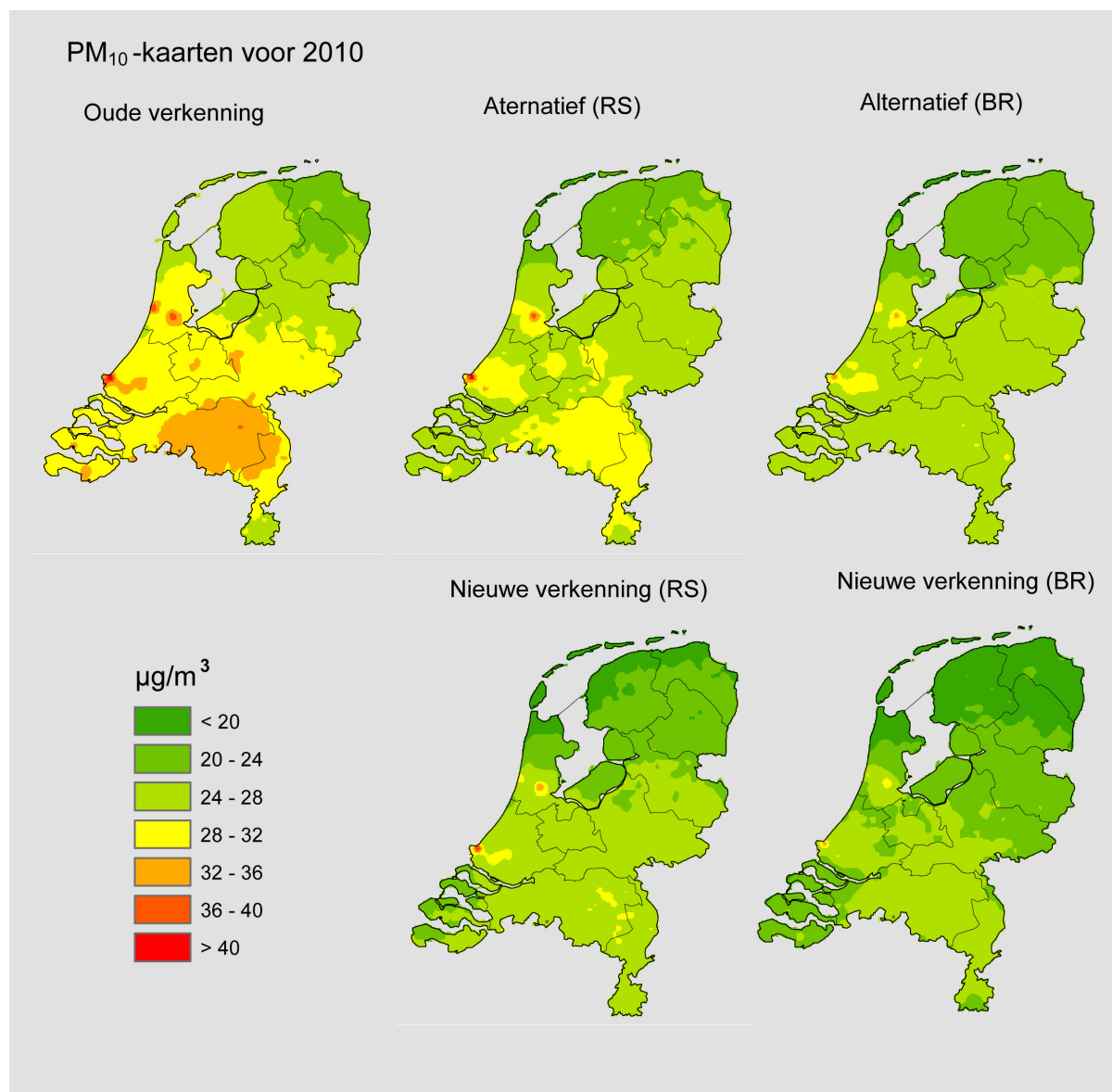
Alternatieve verkenningen die worden gevormd door een alternatieve kalibratie toe te passen (zie paragraaf 4.2) geven een gemiddeld hogere concentratie van bijna 2 µg/m<sup>3</sup>. Deze verhoging ten opzichte van de waarden bij de GCN-verkenning (kalibratie op basis van 2004/2005 gegevens) weerspiegelt de trendbreuk.

De ruimtelijke verdeling van de verschillende verkenningen is getoond voor het jaar 2010. (Figuur 4.2). De kaart, Nieuwe verkenning (RS), is de nieuwe verkenning voor 2010 bij GCN-levering 2006 (Velders et al., 2006b).

## 4.2 Methode alternatieve kalibratie

In plaats van op basis van 2004/2005 gegevens wordt de kalibratie uitgevoerd op basis van de hele meetreeks van 1993 t/m 2005. Dit betekent dat de significantie van de trendbreuk 2003/2004 wordt genegeerd en de gehele meetreeks als consistent wordt beschouwd. De afleiding van een schatting voor de bijdrage door 'overige bronnen PM' voor verkenning op basis van de gehele meetreeks wordt in drie stappen gedaan conform de beschrijving in paragraaf 2.1.

- Bereken OPS-waarde op de regionale achtergrondstations waarvoor de hele reeks data beschikbaar is.
- Bereken op dezelfde locaties OBP = LML - OPS. Interpoleer OBP naar een 5×5-km<sup>2</sup>-grid over Nederland.
- Bereken PM<sub>10</sub>-totaal op een 5×5-km<sup>2</sup>-grid door het optellen van de waarden voor OPS en OBP die beiden nu op een 5×5-km<sup>2</sup>-grid beschikbaar zijn.



*Figuur 4.2 PM<sub>10</sub>-kaarten voor 2010 (zie ook gemiddelde waarde in Figuur 4.1).*

Oude verkenning is de verkenning volgens de referentieraming (de GCN-levering 2005), Alternatief (RS) is de nieuwe verkenning volgens het referentiescenario met alternatieve kalibratie, Alternatief (BR) is de nieuwe verkenning met aanvullend beleid en alternatieve kalibratie, Nieuwe verkenning (RS) is de nieuwe verkenning volgens het referentiescenario (de GCN-levering 2006) en Nieuwe verkenning (BR) is de nieuwe verkenning met aanvullend beleid.

Deze methode leidt tevens tot een schatting van de onzekerheid in de fijnstofconcentraties (zie hoofdstuk 5). Omdat er verkenningen voor de toekomst worden gemaakt en waarbij ook schattingen van onzekerheden horen, is de procedure zoals in paragraaf 2.1 iets aangepast. De reden is dat concentraties per jaar niet alleen behept zijn met meetruis, maar ook met variabiliteit door wisselende meteorologische omstandigheden van jaar tot jaar. Voor elk jaar is het gemiddeld vlak over Nederland gezocht, dus gecorrigeerd voor meetruis en meteorologie. Deze twee invloeden worden verdisconteerd in de onzekerheidsberekeningen.

Meer in detail zijn de drie stappen als volgt:

1. Bepaal met het OPS-model voor elk jaar uit de periode 1993-2005 en voor elk van de 10 beschikbare regionale achtergrondstations de jaargemiddelde concentratie ten gevolge van antropogene emissies. Dit levert dus 10 reeksen  $OPS_{i,j,t}$ , met  $t = 1993, \dots, 2005$ , en  $(i,j)$  de coördinaten van de 10 stations. Hierbij worden voor de OPS-berekeningen per jaar gegevens van de heersende meteorologie van dat jaar gebruikt.
2. Bepaal voor elk van de 10 regionale achtergrondstations een trendmodel over de periode 1993-2005 op het verschil  $OBP = (LML - OPS)$ . Anders gezegd op de 10 reeksen  $OPB_{i,j,t} = LML_{i,j,t} - OPS_{i,j,t}$ , met  $t$  lopend van 1993 tot en met 2005. Bepaal hierbij de trend, de onzekerheid in de trend en de onzekerheid als voor een gegeven jaar een voorspelling voor de concentratie wordt gedaan. De berekeningen zijn voor de toekomstjaren 2010, 2015 en 2020. Daarna worden voor dezelfde drie jaren met de geostatistische techniek Ordinary Kriging de 10 stationswaarden geïnterpoleerd naar een  $5 \times 5$ -km<sup>2</sup>-grid over Nederland. Tevens geeft deze statistische methode de onzekerheden op de interpolatiepunten. Nu is er dus de reeks  $OBP_{i,j,t}$  waarbij  $(i,j)$  de coördinaten zijn van het  $5 \times 5$ -km<sup>2</sup>-grid over Nederland, en  $t = 2010/2015/2020$ . Tevens is er, na enkele correcties, de onzekerheid in het trendvlak  $OBP_{i,j,t}$  en de onzekerheid als actuele concentraties in de toekomstjaren voorspelt worden.
3. Bepaal de  $PM_{10}$ -concentratie op het  $5 \times 5$ -km<sup>2</sup>-grid via de relatie  $PM_{i,j,t} = OBP_{i,j,t} + OPS_{i,j,t}$  met  $t = 2010/2015/2020$ . De waarden  $OPS_{i,j,2010}$ ,  $OPS_{i,j,2015}$  en  $OPS_{i,j,2020}$  worden berekend door OPS te draaien met twee emissiescenario's voor deze jaren, en invoergegevens op basis van langjarig-gemiddelde meteorologie. Doordat de geschatte onzekerheden in de metingen en door de jaar tot jaar-variabiliteit van de meteorologische condities bekend zijn, kan de onzekerheid in het  $PM_{10}$ -vlak en de onzekerheid bij een voorspelling van de  $PM_{10}$ -concentratie in de toekomstjaren worden bepaald.

In Bijlage D zijn de drie stappen meer in detail behandeld.



## 5. Onzekerheden

De verschillende disciplines die opereren op het gebied van fijn stof, kampen elk met grote onzekerheden: van effecten en mechanismen (epidemiologie en toxicologie) tot de concentratieniveaus zelf (de atmosferische chemie door middel van modellen en metingen). Met het oog op de haalbaarheid van de Europese grenswaarden ligt hier de focus op de onzekerheden in de berekende concentratieniveaus en in de methodiek die gebruikt wordt om een ruimtelijk beeld te maken van fijn stof in Nederland. Omdat de rekenmethodiek meetgegevens van fijn stof als referentie gebruikt, zal meetonzekerheid meespelen. De belangrijkste uitkomst van dit hoofdstuk is de bepaling van de onzekerheid in de fijnstof-GCN-kaarten voor 2005 en toekomstige jaren tot aan 2020. Deze uitkomst levert samen met een onzekerheidsanalyse van de verkeersbijdrage aan fijn stof in straten, een methode om de kans op overschrijding van grenswaarden tot op knelpuntniveau te bepalen. Velders et al. (2006b) geven een overzicht van de factoren die een rol spelen in de onzekerheid van historische concentraties en van scenarioconcentraties.

De onzekerheid wordt getalsmatig uitgedrukt als een toevallige fout die het gevolg is van variaties met stochastisch karakter. Zowel het 68%- als 95%-betrouwbaarheidsinterval (bi) wordt gebruikt. Deze intervallen zijn éénmaal de standaardafwijking (1-sigma) voor het 68% bi en 2-sigma voor het 95% bi. De relatieve fout wordt getalsmatig uitgedrukt als de verhouding tussen de 2-sigma-waarde en de concentratie.

De toevallige fouten in het instrumentarium komen dus aan bod, terwijl de systematische afwijkingen niet expliciet in de onzekerheidsbepaling zijn meegenomen. Dit is onvermijdelijk omdat systematische fouten meestal onbekend zijn en in ieder geval niet in grootte geïdentificeerd. Op het moment dat een systematische fout geïdentificeerd is, en de oorzaak begrepen, dan wordt er voor gecorrigeerd. Een voorbeeld van zo'n systematische fout zijn de verdampingsverliezen bij de continu-metingen van fijn stof. Hiervoor wordt gecorrigeerd door middel van een correctiefactor.

### 5.1 Inleiding

Kaarten voor Nederland met jaargemiddelde PM<sub>10</sub>-concentraties worden gemaakt op basis van modelberekeningen met OPS die vervolgens zijn gekalibreerd aan jaargemiddelde PM<sub>10</sub>-metingen op regionale achtergrondstations. Deze kalibratie geeft een correctie voor de luchtkwaliteitzones en agglomeraties van 40-60%. Van dit deel, 'overige bronnen PM', wordt gemiddeld een derde toegekend aan zeezout. Het ruimtelijke beeld dat op deze wijze is gegenereerd wordt gebruikt voor GCN met een resolutie van 5×5-km<sup>2</sup> dan wel van 1×1-km<sup>2</sup>. De onzekerheid in jaargemiddelde PM<sub>10</sub>-concentraties voor een specifiek jaar is 15-30% (2-sigma ~ 95% betrouwbaarheidsinterval). Deze onzekerheid is de toevallige fout die resulteert na doorwerking van de fouten in de onderdelen van de PM<sub>10</sub>-kaartenmethodiek.

De standaarddeviatie in de PM<sub>10</sub>-concentratie bij verkenningen is berekend op 3.5 tot 4.0 µg/m<sup>3</sup> en wordt gedomineerd door de mogelijke variaties in de meteorologie. Dit correspondeert met een onzekerheidsmarge (2-sigma) van ongeveer 30% (20% in gebieden met hoge PM<sub>10</sub>-concentraties tot 40% in het noorden van Nederland). Bij een specifieke locatie kunnen lokale bronnen significant bijdragen aan de PM<sub>10</sub>-concentratie. De invloed van lokale bronnen is niet expliciet meegenomen in de grootschalige concentraties

van de GCN-kaarten. Bij een specifieke locatie kunnen dus ook grotere afwijkingen ontstaan tussen gemeten en gemodelleerde concentraties.

Berekeningen voor lokale luchtkwaliteit zijn extra onzeker omdat een additionele berekening nodig is voor de lokale bijdrage. De onzekerheid in straten en langs snelwegen is berekend op basis van de onzekerheid in de achtergrondconcentratie (de GCN-kaart) en de onzekerheid in de lokale bijdrage berekend met CAR (Eerens et al., 1993; Jonker en Teeuwisse, 2006) .

De PM<sub>10</sub>-concentraties die volgen uit de rekenmethodiek zoals vastgelegd in dit rapport, zijn omgeven met een relatief grote onzekerheidsmarge. Dit is inherent aan de bestaande grote onzekerheden rond fijn stof in zowel de metingen als het model en de onderliggende gegevens. Lopend en gepland onderzoek zijn gericht op het reduceren van deze onzekerheden. Bijlage E geeft een overzicht van de belangrijkste ontwikkelingen op metingen- en modelgebied die kunnen bijdragen tot een nauwkeuriger bepaling van de fijnstofconcentratie.

## 5.2 Onzekerheid in de metingen

Onzekerheid in de metingen van fijn stof wordt veroorzaakt door de vluchtige bestanddelen van fijn stof en de meetmethode zelf. Daarbij gaat het vooral om water, ammoniumnitraat en vluchtige organische verbindingen en de voorverwarmingsmethode die wordt toegepast om condensvorming bij het meten zelf te voorkomen. De vluchtigheid van delen van fijn stof is ook een bron van onzekerheid in de emissies van primair fijn stof.

Meetgegevens van fijn stof op regionale achtergrondlocaties worden gebruikt om de berekende concentraties te kalibreren. Evaluatie van de haalbaarheid van de grenswaarden van fijn stof in Nederland is dus sterk gekoppeld aan de metingen. De onzekerheid in de metingen (jaargemiddelde concentratie) ligt tussen de 10% en 25%. Voor daggemiddelde concentraties ligt de onzekerheid tussen 15% en 25%. De ondergrenzen van deze onzekerheidsranges zijn gebaseerd op een studie van KEMA (Blank, 2001). Hierin zijn de bijdragen van de geïdentificeerde onzekerheidsbronnen in de meetprocedure zoveel mogelijk gekwantificeerd. Het effect van ongeveer de helft van de onzekerheidsbronnen is niet gekwantificeerd. De bovengrens is gesteld op de maximaal toegestane onzekerheid in de fijnstofmeetgegevens (25%) volgens de EU-richtlijn (EU, 2001b). Voor de onzekerheid in de jaargemiddelde fijnstofmetingen wordt een onzekerheid van 20% (2-sigma) gebruikt als beste schatting.

## 5.3 Onzekerheid in OPS-resultaten

Onzekerheid in de OPS-resultaten worden bepaald door het model zelf en de invoergegevens. In NAP (2002) is de onzekerheid in de verschillende resultaten van het OPS-model besproken. Los van de invoer heeft het model zelf een onzekerheid die, afhankelijk van de simulatieperiode, varieert tussen 10% voor langetermijngemiddelde concentraties en 20% (2-sigma) voor seizoensgemiddelden. Daarnaast speelt de nauwkeurigheid van de invoergegevens en de wijze waarop de berekeningen worden uitgevoerd een rol in de onzekerheid van de OPS-resultaten. Velders et al. (2006b) geven het volgende overzicht van de belangrijkste factoren die hierbij een rol spelen en wat de gevolgen hiervan zijn voor de berekeningen.

- De GCN-berekeningen voor het laatste kalenderjaar worden in begin van het daaropvolgende jaar uitgevoerd op basis van emissies van een voorgaand jaar. Dit omdat de emissies in het laatste jaar op dat moment nog niet bekend zijn. Verschillen in emissies tussen de twee jaren hebben een verwaarloosbaar effect hebben op de ruimtelijke verdeling van concentraties. Wel zal de hoogte van de berekende concentraties verschillend zijn. Dit effect wordt echter sterk gereduceerd door de kalibratie aan actuele metingen.
- Emissies worden bepaald op nationaal niveau. Voor OPS-berekeningen is ook de ruimtelijke verdeling van bronnen nodig. Met name in de stedelijke omgeving en voor jaren in de toekomst kan de gebruikte emissieverdeling afwijken van de feitelijke of toekomstige situatie. Ook kan niet worden uitgesloten dat emissiebronnen in de huidige verdeling onjuist gesitueerd zijn. In dat geval zal ook de locatie van de berekende bijdrage onjuist zijn.
- Emissiefactoren die worden gebruikt voor het bepalen van emissiecijfers, betreffen landelijk gemiddelde waarden. Lokale verschillen worden buiten beschouwing gelaten.
- De modelberekeningen worden uitgevoerd voor receptorpunten met een onderlinge afstand van 5 km. Voor tussengelegen punten, met een onderlinge afstand van 1 km, worden waarden geïnterpoleerd. In de gebruikte methode wordt geen nieuwe (ruimtelijke) informatie toegevoegd en is het niet mogelijk om emissiebronnen exacter te situeren binnen een gebied van  $5 \times 5\text{-km}^2$ . De locatie van de berekende bijdrage kan hierdoor 1 à 2 km afwijken. Omdat bij de interpolatie van een grid van  $5 \times 5\text{-km}^2$  naar  $1 \times 1\text{-km}^2$  geen nieuwe informatie wordt toegevoegd, is de invloed op de nauwkeurigheid gering.

Voor de OPS-resultaten wordt als beste schatting van de totale onzekerheid een waarde 40% (2-sigma) gebruikt.

## 5.4 Onzekerheid in $\text{PM}_{10}$ -concentratie

De gemiddelde onzekerheid in de GCN-kaarten van fijn stof voor 2005 bedraagt gemiddeld  $6.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (2-sigma); voor de GCN-verkenningen is dit gemiddeld  $7.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (2-sigma).

Paragraaf 5.4.1 geeft de afleiding van de onzekerheid in de GCN-kaart voor 2005.

Paragraaf 5.4.2 behandelt de afleiding voor de onzekerheid in de verkenningen (2010-2020). In paragraaf 5.4.3 wordt met kaarten de ruimtelijke verdeling van de onzekerheid getoond in perspectief van de GCN-kaarten zelf. Kaarten met de kans op overschrijding van de dagnorm (vertaald als jaargemiddelde grenswaarde van  $32 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) geven een geïntegreerd beeld van concentratie en onzekerheid.

De onzekerheden in de metingen en OPS-resultaten afzonderlijk zijn 'expert judgements' op basis van de beschikbare gegevens: 20% voor de metingen en 40% voor de OPS-resultaten (2-sigma). Voor wat betreft OPS is 40% mogelijk een conservatieve schatting. Voor wat betreft de metingen lijkt 20% een redelijke en gemiddelde schatting. De schatting voor metingen houdt echter geen rekening met systematische afwijkingen zoals de mogelijkheid dat een meetpunt als regionaal achtergrondstation niet representatief is voor zijn omgeving.

### 5.4.1 Onzekerheid in $\text{PM}_{10}$ -concentratie 2005

De doorwerking van de onzekerheid in metingen en OPS-resultaten tot in de  $\text{PM}_{10}$ -concentratiekaart vindt plaats bij de kalibratie van de OPS-resultaten (zie paragraaf 2.1). De methode om de trend te analyseren zoals beschreven in paragraaf 4.2 en Bijlage D geeft in principe een bruikbare schatting voor de onzekerheid in de fijnstofconcentratie.

Deze methodiek is echter alleen toepasbaar bij een consistente reeks gegevens en dat is door de aanwezigheid van een trendbreuk niet het geval. De onzekerheid in GCN-kaart voor 2005 is als volgt bepaald.

Onzekerheid in de bijdrage door ‘overige bronnen PM’, OBP, op een regionaal achtergrondstation  $i$  volgt uit de afleiding:  $OBP_i = LML_i - OPS_i$ . Hierbij zijn  $LML_i$  en  $OPS_i$ , respectievelijke de meting het OPS-resultaat op regionaal achtergrondstation  $i$ .

De bij de  $OBP_i$  behorende standaardafwijking  $S_{OBP_i}$  wordt vervolgens gedefinieerd door:  $S_{OBP_i}^2 = S_{LML_i}^2 + S_{OPS_i}^2$ . Volgens de ‘expert judgements’ voor de 2-sigma in LML- en OPS-waarden is de standaardafwijking,  $S_{LML_i}$  10% van de LML-waarde en  $S_{OPS_i}$  20% van de OPS-waarde voor station  $i$ .

Interpolatie met Ordinary Kriging geeft een OBP-kaart. Kriging houdt rekening met de onzekerheid in de waarde op de 17 stations: gemiddelde standaardafwijking op de stations:  $S_{OBP} = 3.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Deze OBP-kaart geeft op een  $5 \times 5\text{-km}^2$ -grid waarden met daarin een standaardafwijking van 3.9 tot  $4.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (gemiddeld 4.0).

Sommatie van de kaarten OBP en OPS levert vervolgens de  $PM_{10}$ -kaart voor, in dit geval, het jaar 2005. De standaardafwijking van de  $PM_{10}$ -concentratie in een gridcel  $(x,y)$  volgt uit:  $S_{PM10_{x,y}}^2 = S_{OBP_{x,y}}^2 - S_{OPS_{x,y}}^2$ . Met  $S_{OBP_{x,y}} = 4.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$  en  $S_{OPS_{x,y}} = 2.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$  geeft dit een gemiddelde standaardafwijking van  $3.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$  in de  $PM_{10}$ -concentratie. Figuur 5.1 toont de ruimtelijke verdeling van de onzekerheid ( $2 \times S_{PM10}$ ). Deze varieert tussen 6.0 en  $6.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ .

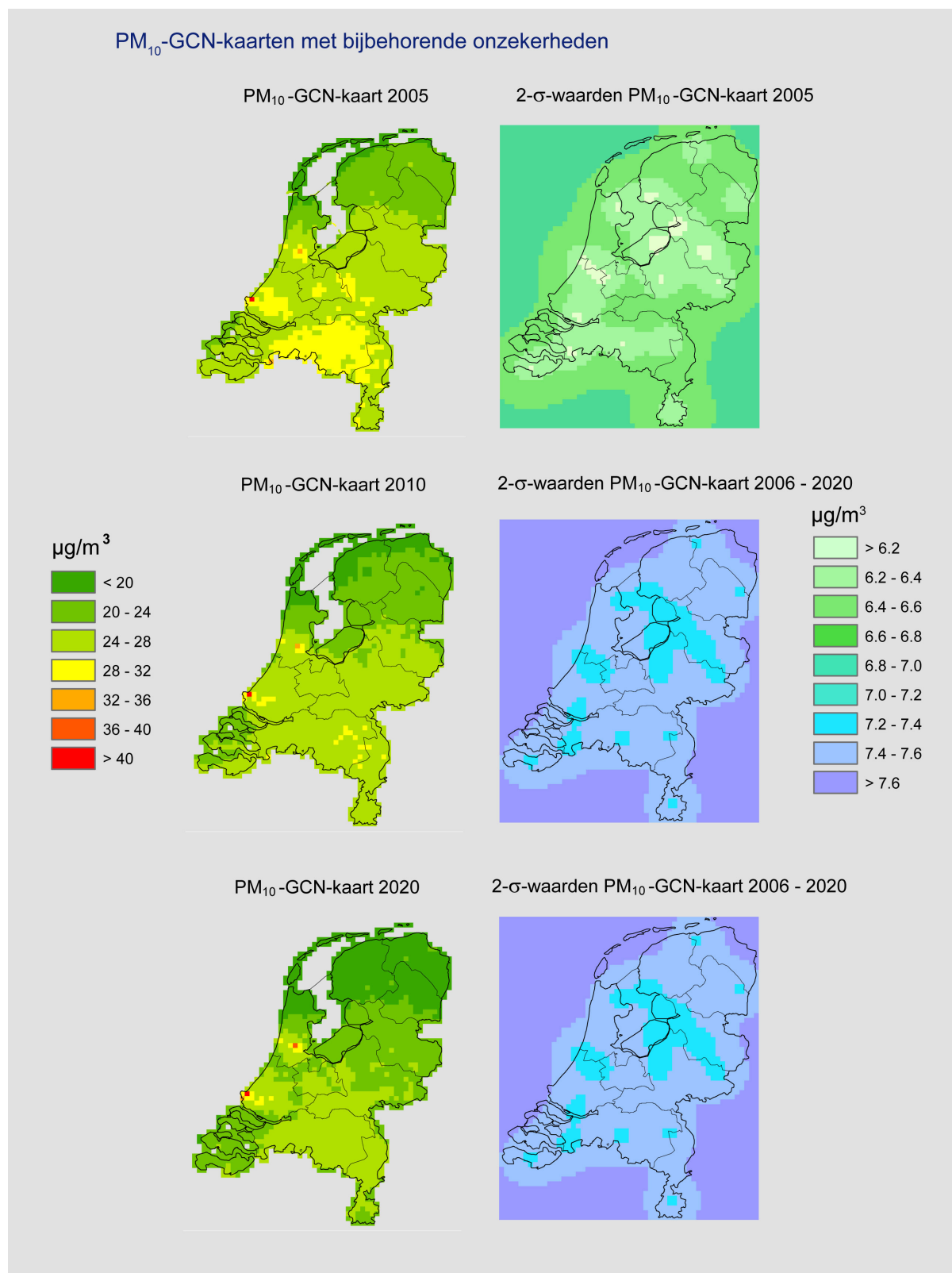
De waarden  $OBP_{x,y}$  en  $OPS_{x,y}$  zijn gecorreleerd. De mate van correlatie is echter niet exact vastgesteld. Uit de overeenkomst tussen geïnterpoleerde metingen en de GCN-kaart blijkt een sterk positief correlatie. Bij de berekening van de standaardafwijking wordt daarom volledige correlatie verondersteld zodat  $S_{OPS_{x,y}}^2$  volledig afgetrokken wordt van  $S_{OBP_{x,y}}^2$ . Volledige correlatie geldt voor het grootste deel van Nederland. In de stedelijke omgeving zijn  $OBP_{x,y}$  en  $OPS_{x,y}$  mogelijk minder sterk gecorreleerd en is de berekende onzekerheid in dat geval groter dan hier berekend.

#### 5.4.2 Onzekerheid in $PM_{10}$ -verkenningen

Tabel 5.1 geeft een overzicht van de gemiddelde onzekerheid (2-sigma) in de fijnstofverkenningen. Hieronder worden deze getallen verder uitgewerkt.

Tabel 5.1 Gemiddelde onzekerheid in verkenningen van fijnstofconcentraties (2-sigma).

Verkenning	Onzekerheid 2-sigma ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )
2010, 2015, 2020 (GCN)	7.4
2010 (alternatieve kalibratie)	8.8
2015 (alternatieve kalibratie)	9.8
2020 (alternatieve kalibratie)	10.6



Figuur 5.1 PM<sub>10</sub>-GCN-kaarten voor de jaren 2005, 2010 en 2020 (linker kaarten), met bijbehorend 2-sigma-onzekerheden (rechter kaarten). De waarden van de onzekerheden in 2010 en 2020 zijn identiek.

### Onzekerheid in GCN-verkenningen

Onzekerheid in de GCN-verkenningen van fijn stof voor de jaren 2010-2020 is gemiddeld  $7.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (2-sigma). Deze waarde is afgeleid op basis van de berekeningswijze van de verkenning zelf (paragraaf 2.5) en de volgende relatie voor de standaardafwijking  $S_{\text{PM}_{10}\text{verkenning}}$  op een x,y-grid:

$$S_{\text{PM}_{10}\text{verkenning } x,y}^2 = S_{\text{OBPverkenning } x,y}^2 - S_{\text{OPSverkenning } x,y}^2 + S_{\text{meteo}}^2$$

Afwijkend van de onzekerheidsberekening voor 2005 is dat voor de GCN-verkenningen de bijdrage door ‘overige bronnen PM’ wordt gevormd door het gemiddelde van 2004 en 2005 nadat ze zijn gecorrigeerd voor meteorovariaties. De standaardafwijking hiervan is dan ook het gemiddelde van beide jaren ( $S_{\text{OBPverkenning } x,y}^2 = 0.5(S_{\text{OBP } 2004 \text{ } x,y}^2 + S_{\text{OBP } 2005 \text{ } x,y}^2)$ );  $S_{\text{OBP } 2004 \text{ } x,y} = 3.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ,  $S_{\text{OBP } 2005 \text{ } x,y} = 4.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ). Verkenningen worden berekend op basis van lange termijn meteorologische data. De OPS-resultaten geven dus een verkenning voor een meteo-gemiddelde situatie. Om toch de mogelijke variabiliteit in de fijnstofconcentratie door specifieke meteorologische omstandigheden mee te wegen wordt een extra onzekerheid meegenomen ( $S_{\text{meteo}}$ ).  $S_{\text{meteo}}$  ( $2.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) is de standaardafwijking van de normaal-verdeelde waarden voor metecorrectie op regionale achtergrondstations (Tabel 3.1) die zijn afgeleid met de methode beschreven in Visser en Noordijk (2002). Doorwerking van de verschillende onzekerheden levert vervolgens een constante waarde voor  $2 \times S_{\text{PM}_{10}\text{verkenning}}$  van  $7.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$  voor elk verkenningsjaar. Figuur 5.1 toont de ruimtelijke verdeling van onzekerheid ( $2 \times S_{\text{PM}_{10}\text{verkenning}}$ ). Deze varieert tussen 7.2 en  $7.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ .

### Onzekerheid in verkenningen met alternatieve kalibratie

De methode voor alternatieve kalibratie voor fijnstofverkenningen (hoofdstuk 4) levert ook een schatting voor de onzekerheid in de  $\text{PM}_{10}$ -concentraties (zie Bijlage D). Tabel 5.1 geeft de gemiddelde onzekerheid voor de verkenningen met alternatieve kalibratie in 2010, 2015 en 2020. De onzekerheidsmarges zijn groter dan die voor de GCN-verkenningen. Dit komt omdat de gehele meetreeks is gebruikt, waardoor de concentraties in de laatste twee jaar sterk afwijkend zijn. Verder wordt duidelijk dat de onzekerheid toeneemt in de tijd (vergelijk Figuur D.1). Dit is een realistisch kenmerk omdat de trendschatting zelf onzekerder wordt als de tijd toeneemt bij afwezigheid van nieuwe informatie.

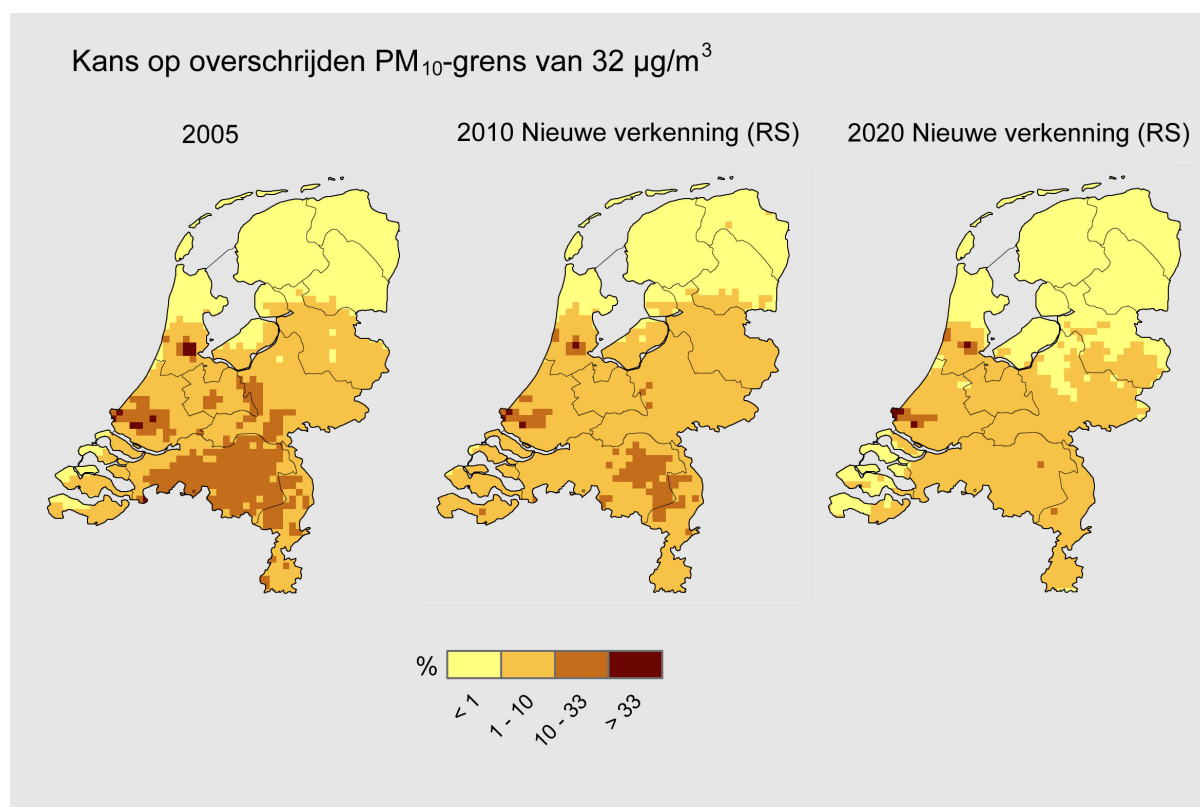
#### 5.4.3 Onzekerheidskaarten

Per gridcel (x,y) is de kans op overschrijding van een grenswaarde berekend, met als uitgangspunt dat standaardafwijkingen normaal verdeeld zijn. Zoals genoemd is de grenswaarde voor 35 dagen overschrijding van de  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$  equivalent met een jaargemiddelde concentratie van ongeveer  $32 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (inclusief zeezoutaftrek). De kans  $P_{x,y,t}$  op overschrijding van deze grenswaarde wordt als volgt uitgedrukt  $P(\text{PM}_{10x,y,t} > 32 \mu\text{g}/\text{m}^3)$ , hierbij is  $\text{PM}_{10x,y,t}$  de jaargemiddelde fijnstofconcentratie op een x,y-grid en jaar t. De overschrijdingskans is 50% als de fijnstofconcentratie gelijk is aan de grenswaarde. Bij een fijnstofconcentratie die  $1 \times$  de standaardafwijking hoger (lager) is dan de grenswaarde is de overschrijdingskans 84% (16%). Voor een verschil van  $2 \times$  de standaardafwijking hoger (lager) dan de grenswaarde is de overschrijdingskans 97.5% (2.5%). Zie Figuur 5.2. De kans op overschrijding is ook in woorden uit te drukken. Tabel 5.2 geeft de termen zoals in de Milieubalans (MNP, 2006b).

Tabel 5.2 Equivalente uitdrukkingen kansen in het Nederlands en Engels.

Nederlandse term	Engels synoniem	Kans (procent)
Nagenoeg zeker	Virtually certain	Meer dan 99%
Zeer waarschijnlijk	Very likely	> 90% kans
Waarschijnlijk	Likely	> 66% kans
Circa fifty-fifty	Medium likelihood <sup>1)</sup>	33% tot 66% kans
Onwaarschijnlijk	Unlikely	< 33% kans
Zeer onwaarschijnlijk	Very unlikely	< 10% kans
Nagenoeg uitgesloten	Exceptionally unlikely	Minder dan 1%

<sup>1)</sup> Voor het Fourth Assessment Report van het Intergovernmental Panel on Climate Change is deze categorie hernoemd als 'About as likely as not'.



Figuur 5.2 Ruimtelijke verdeling van de kans dat achtergrondconcentraties de concentratiegrens van 32 µg/m<sup>3</sup> overschrijden in 2005 (links), 2010 (midden) en 2020 (rechts). Kansen zijn uitgedrukt in procenten (voor omschrijving in woorden zie Tabel 5.2). Basis voor deze kaarten wordt gevormd door de GCN-kaarten en de onzekerheden daarin (Figuur 5.1).

## 5.5 Onzekerheid in straatbijdrage

Lokale PM<sub>10</sub>-concentraties en bijbehorende onzekerheden zijn berekend nabij snelwegen (164 locaties) en nabij lokale wegen in Amsterdam (968 straten) en Utrecht (301 straten) voor 2005, 2010, 2015 en 2020 voor het Referentiescenario en het Beleidsrijke Scenario.

Resultaten van CAR-berekeningen zijn toegevoegd aan de grootschalige concentraties berekend met OPS. Daarbij is gecorrigeerd voor dubbeltellingen.

Onzekerheden zijn berekend door de onzekerheden in de grootschalige achtergrondkaart te combineren met de onzekerheid behorend bij de lokale bijdrage volgens:

$$S_{PM10straat}^2 = S_{PM10GCN}^2 + S_{PM10CAR}^2$$

Verandering in de onzekerheid als gevolg van een dubbeltelling is verwaarloosbaar klein. De onzekerheid in de lokale bijdrage ( $S_{PM10CAR}$ ) wordt bepaald door onzekerheid in de het CAR-model door mogelijk variatie in de inputparameters. PM<sub>10</sub>-concentraties op de totaal 1433 wegvakken zijn bepaald uit 1000 (Monte Carlo) berekeningen per wegvak.

Deze 1000 'samples' vormen tezamen een empirische kansverdeling voor de grootschalige concentratie op het betreffende wegvak, waaruit verschillende grootheden konden worden afgeleid: PM<sub>10</sub>-verwachtingswaarde, standaarddeviatie en overschrijdingskans van de norm. De 1000 berekeningen zijn verricht met elke een toevallige instelling van de input parameters (Tabel 5.3) binnen de aangegeven marges. Deze methode is een variatie op de methode die eerder voor NO<sub>2</sub> is toegepast en in detail beschreven in Van de Kassteele en Velders (2006). Tabel 5.4 geeft een overzicht van de onzekerheden in de totale PM<sub>10</sub>-concentratie langs stads- of snelwegen.

Tabel 5.3 Overzicht gebruikte CAR-inputparameters en bijbehorende onzekerheid (2-sigma).

Parameter	2-sigma
Verkeersintensiteit	30%
Verkeersfracties	50%
Implementatie: Trekking op Middelzwaar- en Zwaarverkeer en percentage Lichtverkeer volgt (=100-MZ-ZW)	
Emissie factor	30%
Onzekerheid model (concept)	30%
Snelheid	30%
Bomenfactor	30%
Regiofactor	30%

Tabel 5.4 Relatieve onzekerheid in % (2-sigma/concentratie) in de totale PM<sub>10</sub>-concentratie voor stads- en snelwegen: 164 snelwegvakken en 1269 stadswegen in Amsterdam en Utrecht.

	Relatieve onzekerheid in totale PM <sub>10</sub> concentratie langs wegen (%)				
	Minimum	5-percentiel	Mediaan	95-percentiel	Maximum
Snelwegen	22%	24%	28%	34%	40%
Stadswegen*	18%	20%	23%	32%	46%

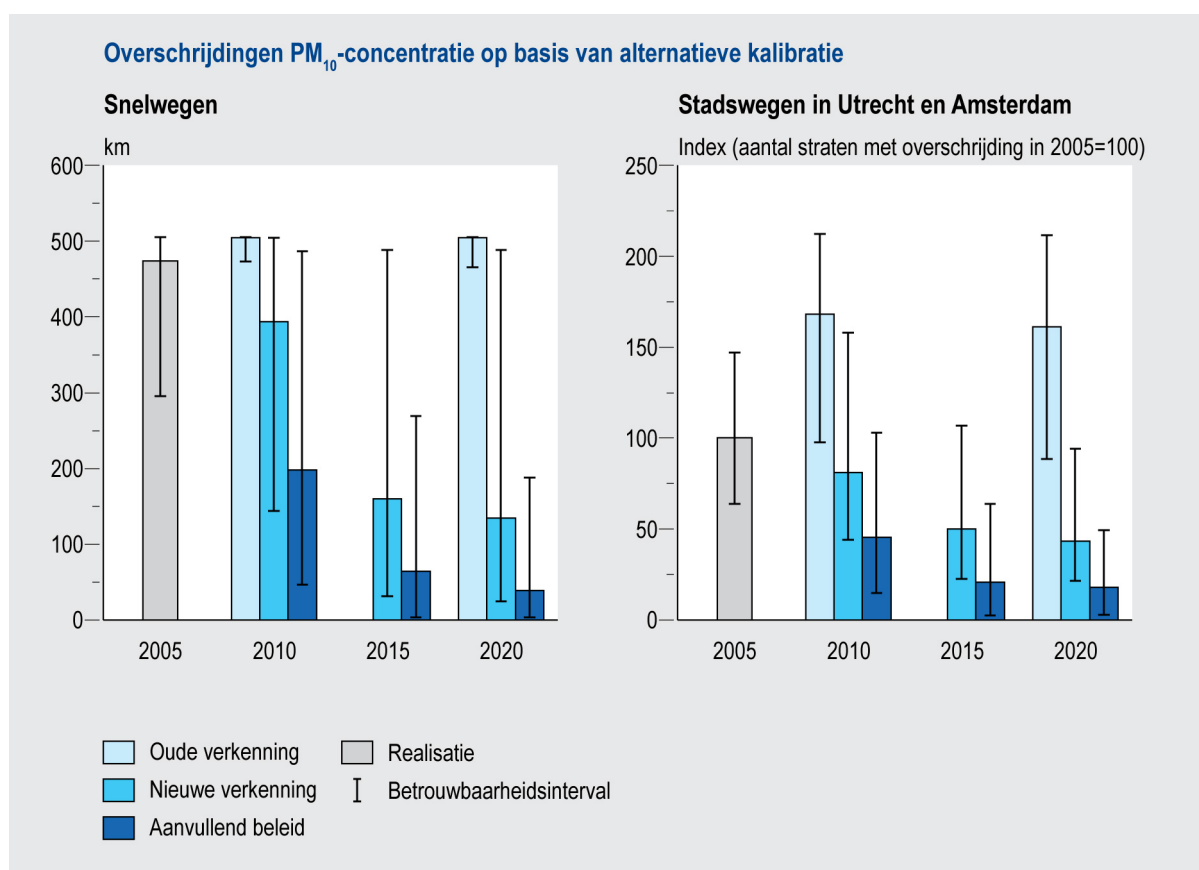
\*in Amsterdam en Utrecht



## 5.6 Normoverschrijding op knelpunten

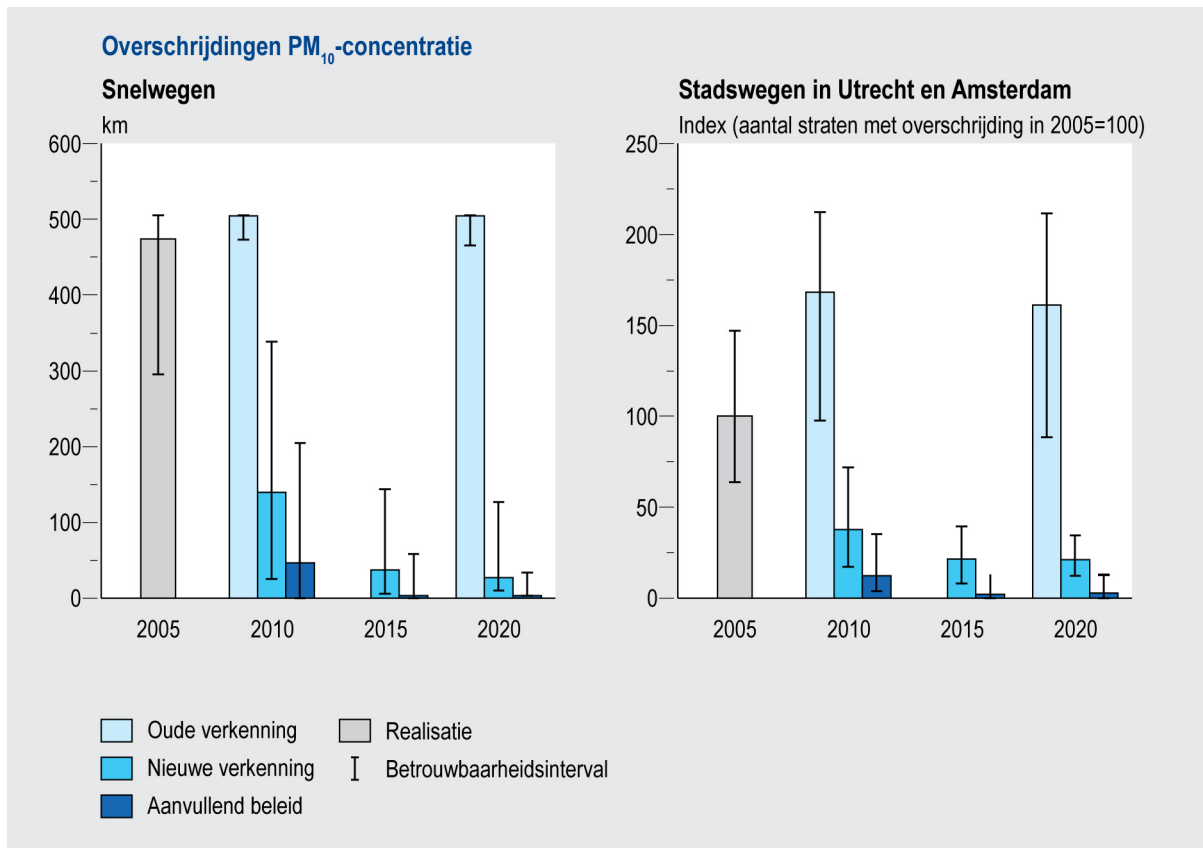
Gegeven de standaarddeviatie, normale verdeling van de verwachtingswaarde en norm ( $32 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) is de kans op overschrijding bepaald.

De nieuwe verkenning geeft een duidelijke verbetering in de situatie. Het aantal knelpunten voor de luchtkwaliteit, dat wil zeggen locaties waar een overschrijding van de grenswaarden wordt berekend, is in 2010 naar verwachting ruim de helft kleiner dan in 2005 (Figuur 5.3). Sommige beleidsmaatregelen hebben ook op langere termijn effect. Door na-ijlingseffecten zal het aantal knelpunten ook na 2010 verder dalen. Tussen 2010 en 2015 wordt het aantal knelpunten in steden ongeveer gehalveerd en bij snelwegen gereduceerd tot een kwart; daarna treedt een stabilisatie op. Figuur 5.4 geeft de situatie weer als de alternatieve kalibratie is gebruikt (zie hoofdstuk 4).



*Figuur 5.3 Overschrijdingen van de grenswaarde voor het daggemiddelde van de  $\text{PM}_{10}$ -concentratie.*

Links het aantal kilometers snelweg waarlangs overschrijding optreedt. Rechts de overschrijdingen langs stadswegen in Amsterdam en Utrecht. De grafiek toont de overschrijdingen in 2005, de oude verkenning, de nieuwe verkenning volgens de huidige GCN-kaart (Referentiescenario) en de verkenning op basis van aanvullend beleid (Beleidsrijke Scenario). De bandbreedtes geven de onzekerheidsmarge van 33-66% aan. De 'realisatie' voor 2005 is bepaald op basis van de GCN-kaart en CAR-berekeningen en niet op basis van gemeten overschrijdingen.



Figuur 5.4 Overschrijdingen van de grenswaarde voor het daggemiddelde op basis van de alternatieve PM<sub>10</sub>-concentratie waarbij de kalibratie is uitgevoerd aan de metingen uit de periode 1993-2005 (alternatieve kalibratie).

Links het aantal kilometers snelweg waarlangs overschrijding optreedt. Rechts de overschrijdingen langs stadswegen in Amsterdam en Utrecht. De grafiek toont de overschrijdingen in het afgelopen jaar, de oude verkenning, de verkenning volgens het Referentiescenario en de verkenning volgens het Beleidsrijke Scenario. De bandbreedtes geven de onzekerheidsmarge van 33-66% aan.

## 5.7 Gebruik kans op overschrijding

Hoe kan de kans op overschrijding worden gebruikt? De kans op overschrijding integreert de informatie van concentratiekaart, onzekerheidskaart en grenswaarde. Echter, bij het bepalen of een grenswaarde wordt overschreden of niet, speelt onzekerheid geen rol in de huidige wetgeving. Er wordt eenvoudigweg gekeken of er een overschrijding plaatsvindt of niet op basis van de (berekende) concentratie ongeacht de onzekerheid. De kans op overschrijding van een grenswaarde kan wel een rol spelen bij beleidsafwegingen. Ter overweging ligt dan welke kans op overschrijding nog toelaatbaar wordt geacht. In andere woorden, met welke onzekerheidsmarge rond een grenswaarde moet rekening worden gehouden om er zekerder van te zijn dat aan gestelde grenswaarden wordt voldaan.

Als voorbeeld wordt de onzekerheid in verkenningen door de variabiliteit in meteorologische omstandigheden bekeken. Zoals vermeld in paragraaf 5.5 is de standaarddeviatie door meteovariatie 2.3 µg/m<sup>3</sup>. Dit betekent dat er een kans van ongeveer 16% is dat de fijnstofconcentratie in bijvoorbeeld 2010 door de dan heersende meteosituatie 2.3 µg/m<sup>3</sup>

hoger uitvalt dan de door berekende meteorologisch gemiddelde waarde. Een kans van 16% komt overeen met een gemiddelde herhalingsstijd van eens in zes jaar. En zo is een verhoging van  $2.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$  vergelijkbaar met een gemiddelde herhalingsstijd van een op vijf jaar.

De nieuwe verkenning met het Referentiescenario met alternatieve kalibratie beschreven in paragraaf 4.1 (Alternatief (RS)) komt overeen met een integrale verhoging van de GCN-achtergrondconcentratie met ongeveer  $2.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (zie Figuur 4.2). Deze toename van de achtergrondconcentratie laat een toename zien van het aantal knelpunten met een factor 2 tot 3 (Figuren 5.3 en 5.4). In werkelijkheid is bij ongunstige meteo-omstandigheden die gemiddeld eens in de vijf jaar voorkomen het aantal knelpunten mogelijk nog hoger. Ongunstige meteo-omstandigheden kunnen namelijk een sterker effect hebben op concentraties op straatniveau dan op achtergrondconcentraties.



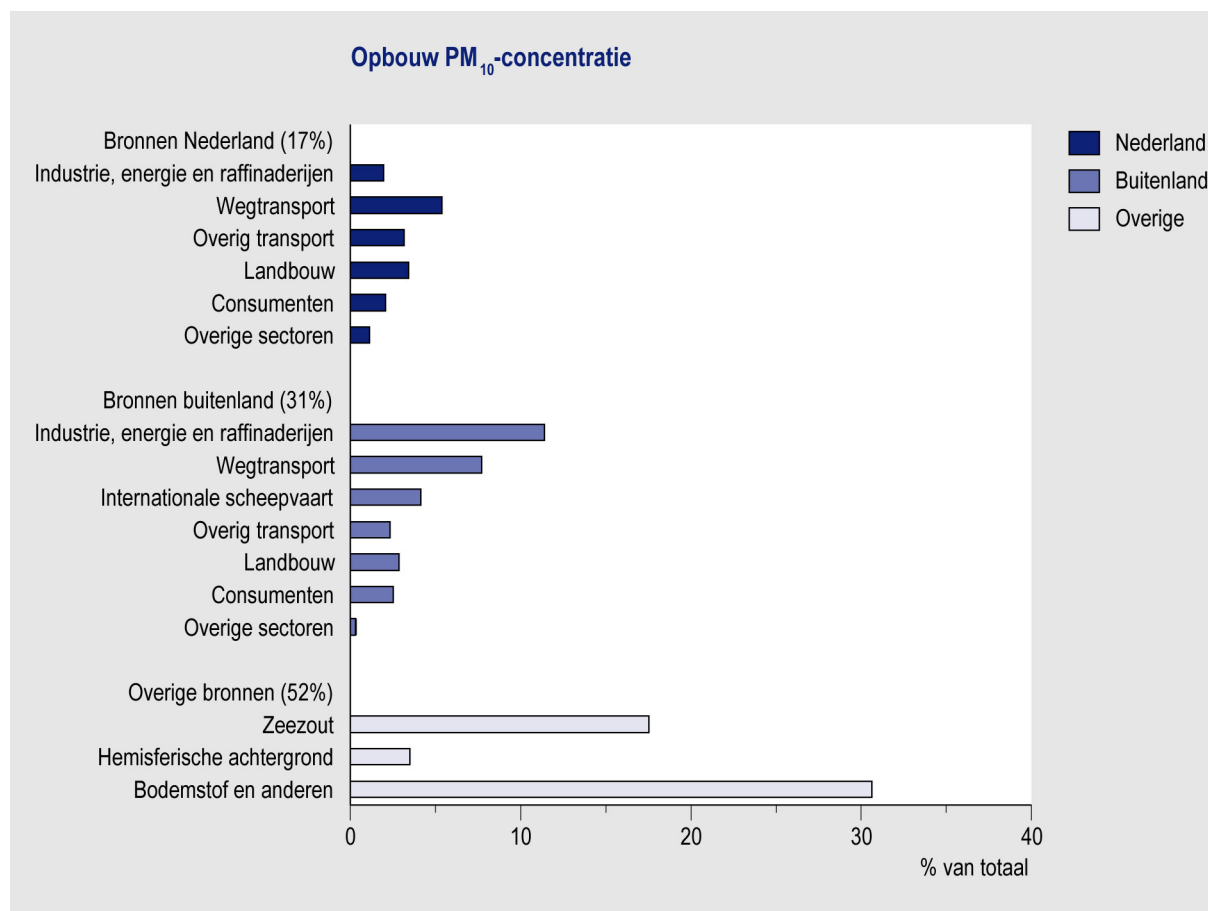
## 6. Samenstelling ‘overige bronnen PM’

Het deel ‘overige bronnen PM’ bevat voornamelijk bestanddelen van natuurlijke oorsprong. Deze emissies zijn grotendeels niet of slecht beïnvloedbaar met beleid. NAP (2002) en Buijsman et al. (2005) geven een overzicht van de studies die inzicht geven in de voor Nederland belangrijkste bijdragen van ‘overige bronnen PM’. Hier zijn de belangrijkste bijdragen samengevat:

- zeezout. In kustgebieden vormt de zee een belangrijke natuurlijke bron voor fijn stof in de vorm van zeezoutdeeltjes. 18% van de totale fijnstofconcentratie in Nederland bestaat uit zeezout;
- bodemstof. Bodemstof is gedeeltelijk van natuurlijke oorsprong. Emissie van bodemstof kan aanzienlijk worden verhoogd door menselijke activiteiten (landbouw en verkeer) en is zo als antropogeen aan te merken. 14% van de totale fijnstofconcentratie in Nederland bestaat uit bodemstof;
- hemisferische bijdrage. Dit betreft bijdragen van bronnen buiten Europa, en deels van natuurlijke en deels van antropogene oorsprong. De hemisferische bijdrage is ongeveer 4% van de totale fijnstofconcentratie in Nederland;
- overig. Dit betreft circa 16% van de totale fijnstofconcentratie in Nederland. Het deel overig bevat naast meetbare bijdragen aan fijn stof ook impliciet een rekenkundige sluitpost tussen metingen en berekeningen. Daarmee bestaat ‘overig’ uit biostof, zoals afbraakproducten van organisch materiaal en bacteriën, secundair organisch aërosol (SOA), water en, de sluitpost, het netto effect van systematische modelfouten en systematische meetfouten. Dit laatste deel, de sluitpost, wordt hier verder niet behandeld. In paragraaf 2.5 zijn hiervan enkele voorbeelden gegeven.

Figuur 6.1 geeft de opbouw van de  $PM_{10}$ -concentratie, gemiddeld voor Nederland in 2005. De bijdrage van ‘overige bronnen PM’ heeft recentelijk wat meer beleidsaandacht gekregen. De fijnstoffractie die niet door menselijk handelen in de lucht wordt gebracht kan namelijk bij de beoordeling van de luchtkwaliteit voor fijn stof buiten beschouwing worden gelaten volgens de Kaderrichtlijn luchtkwaliteit (EU, 1996) en het voorstel voor een nieuwe richtlijn luchtkwaliteit (EU, 2005b). Ook het Besluit luchtkwaliteit (Staatsblad, 2005), de meest recente toepassing hiervan in de Nederlandse wetgeving, kent een artikel met dezelfde strekking.

Echter Staatsblad (2005) heeft de bijstelling dat de aftrekbare fractie onschadelijk moet zijn voor de mens. Zo is de aftrek van zeezout, dat algemeen als onschadelijk en volledig van natuurlijke oorsprong wordt beschouwd, inmiddels geïnstrumenteerd in de meetregeling (Staatscourant, 2005) behorend bij het recente Besluit luchtkwaliteit. De achtergrond hiervoor is vastgelegd in Hoogerbrugge et al. (2005). In paragraaf 6.1 wordt de bijdrage van zeezout in meer detail bekeken en als onderdeel hiervan ook de fractie die bij het halen van de grenswaarden mogelijk buiten beschouwing gelaten zou kunnen worden.



Figuur 6.1 Gemiddelde opbouw van de concentratie van PM<sub>10</sub> in buitenstedelijke gebieden in Nederland in 2005, onderverdeeld naar bronbijdragen.

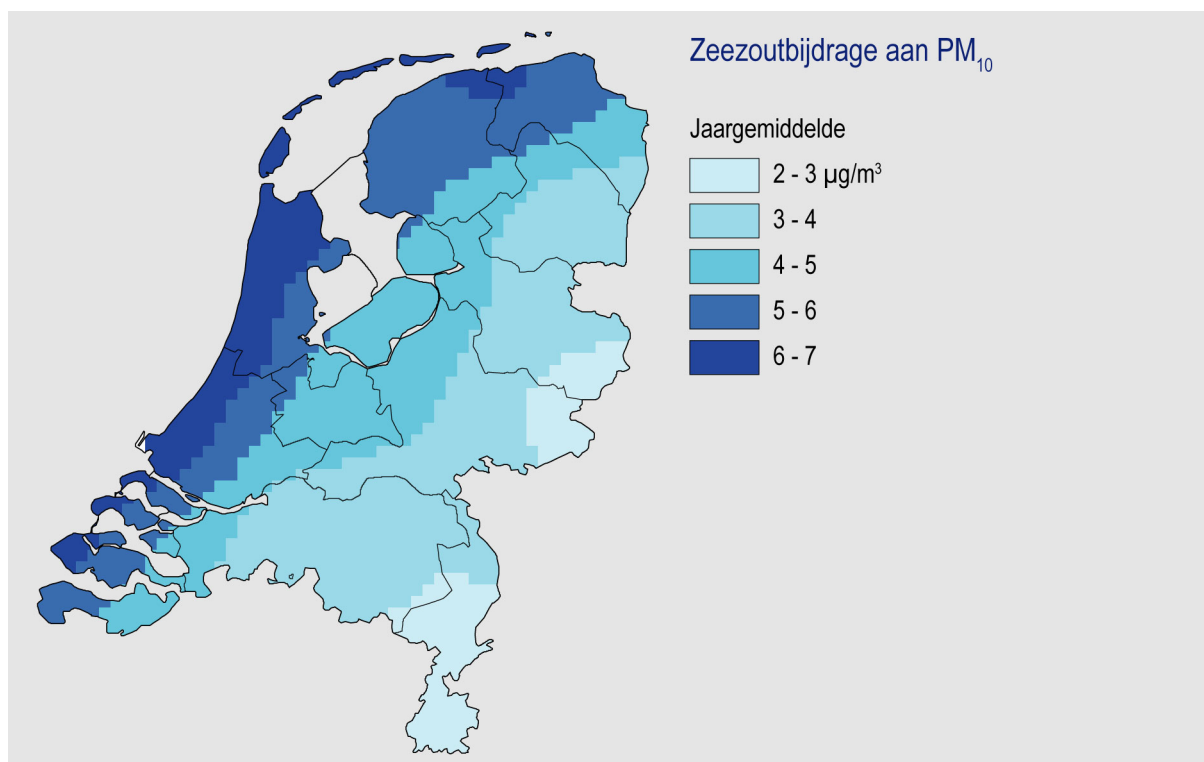
## 6.1 Zeezout

Fijn stof kan voor een aanzienlijk deel bestaan uit zeezout. In kustgebieden ligt de bijdrage van zeezout aan de jaargemiddelde fijnstofconcentratie in de orde van 5-10  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . Van het deel 'overige bronnen PM' vormt zeezout de best bekende fractie. Toch is de kennis van de zeezoutverdeling over Nederland en de bijdrage die het levert aan fijn stof nog relatief onzeker. De zeezoutconcentratie op een bepaalde plaats wordt bepaald enerzijds door de windsnelheid (de emissieterm is ongeveer evenredig met de windsnelheid tot de 3<sup>e</sup> macht) en anderzijds door de windrichting ten opzichte van de bron-receptor richting. Zeezout is afgeleid op basis van natriumconcentraties in regenwater en chlorideconcentraties op deeltjes. De bijdrage van zeezout aan de jaargemiddelde fijnstofconcentraties is niet hetzelfde als de bijdrage van zeezout op dagen waarop fijnstofconcentraties boven de 50  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  komen. Ter bepaling van de hoeveelheid zeezout die afgetrokken zou mogen worden in het kader van het Besluit luchtkwaliteit is dan ook een verschil gemaakt tussen deze twee situaties.

### Zeezout jaargemiddeld

Figuur 6.2 laat een verdeling zien van de jaargemiddelde zeezoutbijdrage aan fijn stof in Nederland voor een lange termijn situatie. De jaargemiddelde concentratie, gemiddeld over

meer jaren (lange termijn), van zeezoutaërosol wordt geschat op 4-5  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  voor Nederland, met een maximum bijdrage van bijna 7  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  aan de kust tot iets minder dan 3  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  aan de



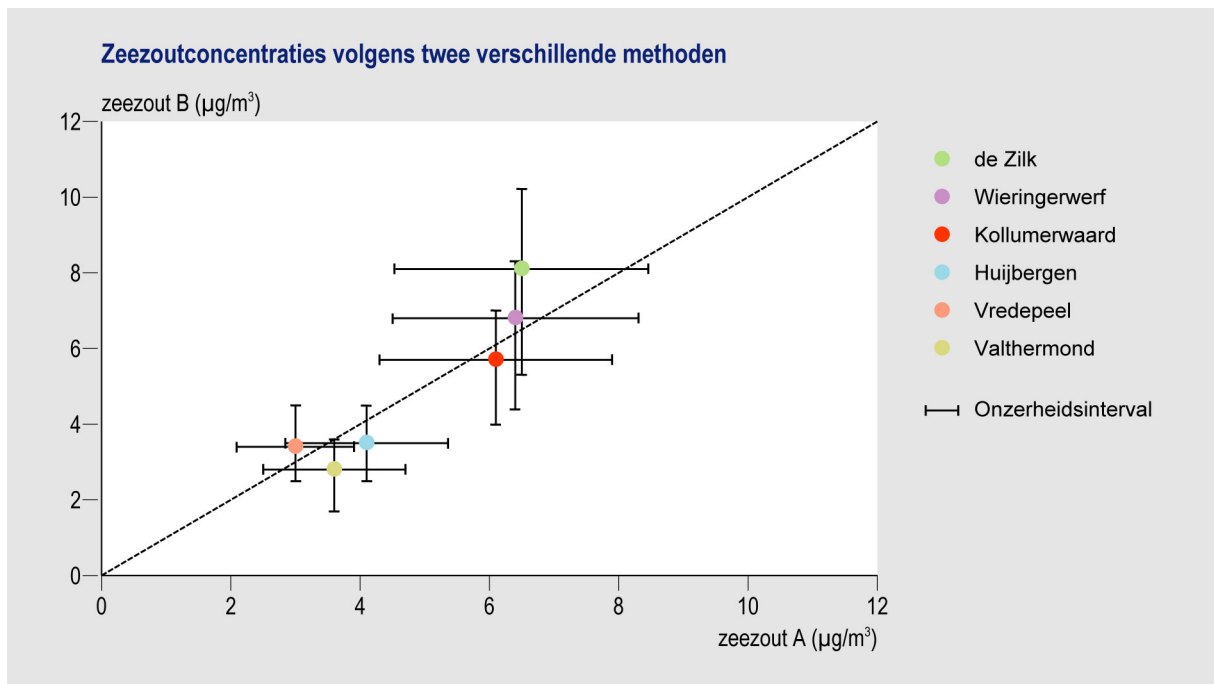
*Figuur 6.2 Jaargemiddelde (langetermijn) zeezoutconcentratiekaart voor Nederland, met een maximum bijdrage van ongeveer 7  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  aan de kust tot iets minder dan 3  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  aan de oostgrens.*

oostgrens (Limburg). Deze schatting is gebaseerd op interpolatie van natriummetingen gecombineerd met aannames over de verdeling van zeezout langs de Nederlandse kust (Eerens et al., 1998; Eerens, 1998).

De analyse van Eerens (1998) gaat uit van natriumconcentraties in regenwater die vervolgens zijn herleid tot zeezoutconcentraties op deeltjes. Deze benadering levert in principe een schatting voor zeezout met een nogal grote onzekerheidsmarge, omdat de concentratie van een stof in regenwater over het algemeen slecht zijn gecorreleerd met de (lokale) concentratie van die stof op deeltjes. Echter voor de langetermijnbijdrage en voor het specifieke geval van zeezout blijkt deze benadering wel goed te werken. Zeezoutconcentraties afgeleid op basis van chloridemetingen op deeltjes uit het LML komen overeen met de concentraties volgens Eerens (1998). Ook de ruimtelijke variabiliteit komt in beide benaderingen goed overeen. Figuur 6.3 geeft voor een zestal stations jaargemiddelde zeezoutconcentraties (over lange termijn) volgens beide benaderingen. Beide onafhankelijke benaderingen zijn vrijwel equivalent.

Om een landsdekkende kaart te maken op basis van de beschikbare (beperkte) ruimtelijke gegevens zijn kunstmatig een drietal locaties toegevoegd: Leiduin, Hoek van Holland en Domburg. Deze stations hebben 7.0  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  zeezout als waarde meegekregen. De stations Wieringerwerf en Kollumerwaard, beide op locaties iets van de zee verwijderd, hebben een van natrium afgeleide zeezoutconcentratie van 6.6 en 6.2  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ , respectievelijk.

Zeezoutconcentraties gemeten in de Duitse deelstaat Noordrijn-Westfalen liggen tussen de 1 en 2  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  en ondersteunen daarmee het ruimtelijk beeld in Figuur 6.2.



*Figuur 6.3 Lange termijn jaargemiddelde zeezoutconcentratie in  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  op een aantal stations in Nederland afgeleid volgens twee verschillende methoden gemiddeld voor 2000-2003.*

Zeezout A is de concentratie volgens Eerens et al. (1998) en gebaseerd op natriumconcentraties in regenwater. Zeezout B is de zeezoutconcentratie afgeleid van chloridemetingen op deeltjes op zes stations (Vredepeel, Huijbergen, de Zilk, Wieringerwerf, Valthermond en Kollumerwaard). De marges in de figuur zijn voor zeezout A:  $\pm 30\%$  en voor zeezout B: het minimum en maximum van de jaargemiddelden voor de periode 2000-2003.

### Zeezout daggemiddeld

De bijdrage van zeezout aan fijn stof verschilt van dag tot dag, want ze is afhankelijk van windrichting en -snelheid. Verder spelen de chemische en microfysische processen op fijn stof met zeezout ook een rol in de uiteindelijke bijdrage van zeezout aan de fijnstofconcentratie.

Zeezout op basis van chloridemetingen (LML). Uitgegaan is van gemeten chlorideconcentraties ( $[\text{Cl}^-]$ ) die op dagbasis (elke tweedagen) beschikbaar zijn voor een zevental stations. De meetmethode is de zogenaamde Low Volume Sampler (LVS). De vangstkaracteristieken van de LVS-methode zijn niet goed bekend. Aangenomen wordt dat de 50% afsnijdiameter ligt tussen 2.5 en 5  $\mu\text{m}$ .

De gemeten LVS chlorideconcentratie,  $[\text{Cl}^-]$ , is omgerekend naar de totale zeezoutbijdrage aan  $\text{PM}_{10}$ , [zeezout], via:

$$[\text{zeezout}] = [\text{Cl}^-] \times \mathbf{a} \times \mathbf{b} \times \mathbf{c}$$



Hierbij is de factor **a** de verhouding tussen het voorkomen van chloride in zeewater en het totaal aan zouten in zeewater (bijvoorbeeld Visser et al., 2001). De factor **a** bedraagt in goede benadering 1.8. De factor **b** is de omrekening van de LVS deeltjesgrootte naar PM<sub>10</sub> voor zeezout. Omdat de verwijdering van deeltjes grootteafhankelijk is, zal de factor **b** plaats- en tijdsafhankelijk zijn. Met behulp van modelberekeningen is een schatting gemaakt voor een aantal stations. De factor **b** bedraagt in 2003 ongeveer 3.5 voor het station de Zilk en 2.8 voor het station Vredepeel. De factor **c** is een correctie voor de eventuele omzetting van chloride in zeezout naar gasvormig zoutzuur (HCl). De waarde ligt naar schatting tussen 1.0 en 1.4 waarbij hogere waarden zullen gelden op locaties ver van zee.

Beide factoren **b** en **c** introduceren een relatief grote onzekerheid. Voor de schatting ten behoeve van de meetregeling in het recente Besluit luchtkwaliteit is gekozen voor een middenschatting voor alle locaties:  $b \times c = 3.75$ . De aldus berekende concentraties zijn op dagbasis afgetrokken van gemeten PM<sub>10</sub>-concentraties en vervolgens is gekeken hoe vaak de 50 µg/m<sup>3</sup> dan nog wordt overschreden.

### **Zeezoutaftrek**

Effect van zeezoutaftrek op de jaargemiddelde concentratie is gedifferentieerd per gemeente en is vastgelegd in de meetregeling behorend bij het recente Besluit luchtkwaliteit (Staatscourant, 2005). Het effect van zeezoutaftrek op het aantal dagen overschrijding van de 50 µg/m<sup>3</sup> is met 6 dagen gemiddeld voor geheel Nederland (Staatscourant, 2005) kleiner dan de jaargemiddelde concentratie doet vermoeden. Dit komt omdat de zeezoutconcentratie over het algemeen laag is op de dagen dat zich een overschrijding voordoet. De zeezoutaftrek die nu is geïnstrumenteerd, is gebaseerd op de afleiding voor de daggemiddelde zeezoutconcentratie zoals hierboven beschreven. Duidelijk is dat deze benadering slechts ten dele recht doet aan de gecompliceerde chemische en fysische processen die betrekking hebben op de zeezoutconcentratie. Er is gekozen voor de eenvoudige aanpak namelijk dat de parameters **b** en **c** constant zijn in ruimte en tijd. De kennis hierover is beperkt. Hoewel de aanname in eerste benadering redelijk is zal nader onderzoek door middel van metingen en modelberekeningen moeten uitwijzen of verdere van differentiatie noodzakelijk is.

## **6.2 Bodemstof**

In de literatuur wordt veeleer van mineraal stof (mineral dust) gesproken in plaats van bodemstof. Bodemstof vormt een onderdeel van mineraal stof. Mineraal stof is al het niet-water-oplosbare, non-carbonaceous fijn stof:

mineraal stof = bodemstof + wegestof + vliegas en spore-elementen.

Deze verschillende componenten zijn over het algemeen niet of nauwelijks van elkaar te onderscheiden omdat ze veelal weer uit dezelfde elementen zijn opgebouwd (vooral silicium, calcium, kalium, ijzer, aluminium en magnesium). In deze paragraaf wordt verder de term mineraal stof gebruikt.

Mineraal stof vormt overal in Europa een belangrijke bijdrage aan PM<sub>10</sub>. Ondanks de verschillen in meetmethoden en de daar aan gepaarde onzekerheden is er een aantal duidelijke verschillen waar te nemen (van Dingenen et al., 2004; Putaud et al., 2004; Querol et al., 2004; Hueglin et al., 2005; Salvador et al., 2004). De belangrijkste verschillen zijn die tussen Noord, Centraal en Zuid Europa. De hoogste concentraties komen voor in het

noorden van Europa, Zweden: 2-36  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  (20-70%) daarna in het zuiden: Spanje: 4-18  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  (12-40%). Centraal Europa, waartoe Nederland wordt gerekend, heeft min of meer gelijke mineraal stof concentraties namelijk in een range van 1-8  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  (5-15%). Voor Nederland zijn concentraties gerapporteerd tussen 1.7-6.3  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  (7-18%). Verder is er overal in Europa een opvallend verschil tussen aan de ene kant regionale (rural) en stadsachtergrondstations en aan de andere kant straatstations.

De bijdrage van mineraal stof kan op straatstations aanzienlijk zijn verhoogd door slijtage van het wegdek en het in resuspensie brengen van mineraal stof door verkeer. De verhoging hangt af van de beschikbare hoeveelheid mineraal stof en vochtigheid. Hoe droger des te stoffiger. In Spanje zijn bijvoorbeeld de omstandigheden zodanig dat in straten mineraal stof de dominante fractie kan vormen en in ieder geval substantieel bijdraagt aan het aantal overschrijdingen van de grenswaarden. In Nederland is de rol van mineraal stof kleiner door de frequente neerslag en geringere bijdrage van uit grote brongebieden van mineraal stof zoals de Sahara.

### **Mineraal stof: natuurlijk èn antropogeen**

Mineraal stof kan een substantiële fractie ( $\geq 10\%$ ) van de  $\text{PM}_{10}$ -concentratie zijn in Nederland en in Europa. In sommige delen van Europa is mineraal stof incidenteel de dominante fractie. Afgezien van de vrij grote onzekerheden rond mineraal stof, lijkt mineraal stof langs straten en wegen een belangrijke bijdrage te leveren aan  $\text{PM}_{10}$ . De fractie mineraal stof in  $\text{PM}_{10}$  is voor een belangrijk deel door menselijk handelen in de lucht gebracht: 1) door landbouwactiviteit tijdens landbewerkings- en oogstwerkzaamheden en 2) langs straten is de bijdrage van mineraal stof aanzienlijk door slijtage van het wegdek en het in resuspensie brengen van mineraal stof door verkeer. Buiten het zuiden van Europa is de emissie van mineraal stof door alleen winderosie waarschijnlijk een orde kleiner dan de emissie als gevolg van wind in combinatie met menselijk handelen zoals landbewerking (Funk, 2005).

### **Modelstudie**

Mineraal-stofconcentraties variëren sterk binnen Europa zowel in ruimte als tijd. Gezien de oorsprong en de slecht bekende emissiegegevens (chemische samenstelling, deeltjesgrootte, hoeveelheid, plaats en tijd) zijn pogingen om mineraal stof te modelleren beperkt. In het Unified EMEP-model is recentelijk (Van Loon et al., 2005) als verkennende actie een module opgenomen om basische kationen te modelleren ( $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{K}^+$  en  $\text{Na}^+$ ) in  $\text{PM}_{2.5}$  en  $\text{PM}_{10}$ . Basische kationen vormen een deel van mineraal stof. De voorlopige resultaten geven nog weinig houvast; de onzekerheden, ook op niveau van proceskennis, zijn groot.

### **Saharastof**

Voorals in het zuiden van Europa, met name Spanje en Portugal, is er sprake van Saharastof-incidenten (16-19 keer per jaar met een duur van 1-10 dagen per keer in het zuiden, en in het noorden is de frequentie gemiddeld 6 keer per jaar gedurende minder dan 4 dagen). De daggemiddelde  $\text{PM}_{10}$ -concentraties komen tijdens deze incidenten in het zuiden (noorden) niet boven de 150 (100)  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . De Saharastof-incidenten zijn verantwoordelijk voor ongeveer een derde van alle overschrijdingen van de grenswaarde voor daggemiddelde  $\text{PM}_{10}$ -concentratie (Moreno et al., 2005). Gezien het incidentele karakter is het toegestaan in de 1<sup>e</sup> dochterrichtlijn voor luchtkwaliteit (EU, 1999) om overschrijdingen als gevolg van Saharastof buiten beschouwing te laten. De Saharastof-incidenten zijn redelijk tot goed

bekend en gekarakteriseerd in termen van chemische samenstelling, emissie en verspreiding (EU, 2004).

### **Bodemstof in Nederland**

De 'overige bronnen PM' (Velders et al., 2006b) vormen in 2005 een gemiddelde bijdrage aan PM<sub>10</sub> voor Nederland van 52%: grootschalige hemisferische achtergrond van 4% en zeezout 18% en de een restpost 'bodemstof en overig' van 30%. Het deel mineraal stof is hierin vervat. In Visser et al., (2001) wordt mineraal stof gerapporteerd (Tabel 6.1).

Gemiddeld voor de zes stations is er ongeveer 4.2 µg/m<sup>3</sup> mineraal stof in PM<sub>10</sub> gemeten (1.7-6.3 µg/m<sup>3</sup>). De schatting is dat 1.7 µg/m<sup>3</sup> de natuurlijke achtergrond is en dat het overige deel antropogeen mineraal stof is (0-4.6 µg/m<sup>3</sup>). Straatstations en industriële stations laten hoge concentraties mineraal stof zien.

De mineraal-stof-fractie in fijn stof is chemisch gezien redelijk goed te bepalen op basis van de bijdrage van vooral de elementen ijzer, aluminium, silicium en calcium. Desalniettemin laat vergelijking tussen verschillende meettechnieken en methodes verschillen tot een factor 2 zien (Putaud, 2004).

*Tabel 6.1 Bijdrage mineraal stof aan PM<sub>10</sub>-concentratie (Visser et al., 2001).*

Mineraal stof in PM <sub>10</sub> , jaargemiddelde waarden		
µg/m <sup>3</sup>	%	Stations type
5.7	18	Industrie (Nijmegen)
6.3	17	Straat (A'dam Stadhouderskade)
2.8-4.3	8-13	Stadsachtergrond (R'dam Overschie, A'dam Overtoom)
1.7-4.4	7-14	Regionaal (de Zilk, Vredepeel)

In de winter zijn de concentraties mineraal stof lager dan in de zomer (gemiddeld 1.6 µg/m<sup>3</sup>). Op de achtergrondstations zijn de mineraal-stof-concentraties in de winter bijna de helft lager dan de concentraties in de zomer (verhouding winter/zomer 0.55). Op de stationslocaties die als industrieel, respectievelijk, straatstation zijn getypeerd, Nijmegen en A'dam-Stadhouderskade, is het verschil tussen zomer en winter minder duidelijk aanwezig (winter/zomer = 0.8-0.9).

Verder is de concentratie mineraal stof afhankelijk van de heersende windrichting. Bij wind van zee is de concentratie op de regionale achtergrondstations gemiddeld lager tussen een factor 1.5 (de Zilk, aan de kust) en 3 (Vredepeel, landbouw gebied). Het grootste deel (in Nederland 70%-90%) mineraal stof bevindt zich in de grove fractie (van 2.5 tot 10 µm).

### **Emissieschattingen en bijdrage aan de PM<sub>10</sub>-concentratie**

In de huidige landbouw emissies van PM<sub>10</sub> zoals deze zijn vastgelegd in de Emissie registratie (ca. 10 kton/jaar) bevatten geen emissies agv landbewerking. De bijdrage van deze emissie aan de gemiddelde concentratie in agglomeraties in Nederland varieert tussen de 0.4

en  $1.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (zie Tabel 2.2). Schatting van mineraal stof ( $\text{PM}_{10}$ ) emissies bedragen 20-30 kton/jaar waarvan 10-20 kton/jaar door landbouw activiteiten (Chardon en Van der Hoek, 2002, Vrins en Schulze, 2000). Vrins en Schulze (2000) rapporteren een jaargemiddelde bijdrage aan  $\text{PM}_{10}$  van ongeveer  $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ; windgedreven oorsprong van wegen, opslag materiaal, landbouw(grond).

### **Schadelijkheid mineraal stof**

Er is vooralsnog onvoldoende informatie om te kunnen beoordelen of mineraal stof in Nederland schadelijk is voor de gezondheid. Wel blijkt uit toxicologisch onderzoek dat mineraal stof schadelijke effecten op de gezondheid kan hebben. Deze effecten kunnen niet een op een worden toegewezen aan een specifieke component in het mineraal stof. Echter van kristallijn kwarts en sommige andere componenten die voorkomen in mineraal stof, is wel bekend dat ze toxisch zijn.

Mineraal stof bevindt zich grotendeels in de grove fractie (van 2.5 tot  $10 \mu\text{m}$ ). Recente gezondheidsevaluaties laten zien dat deze fractie, onafhankelijk van de fractie  $\text{PM}_{2.5}$ , gerelateerd kan worden aan kortdurende gezondheidseffecten. Dit blijkt óók zo te zijn als concentraties mineraal stof hoog zijn. Studies wijzen in de richting dat mineraal stof niet zozeer tot vroegtijdig overlijden bijdraagt van mensen in risicogroepen maar meer leidt tot een verergering van bestaande ziektes waaronder astma. Of mineraal stof bijdraagt aan de gezondheidseffecten van langdurige blootstelling aan fijn stof, is nog onbekend.

Literatuur: AQEG (2005), Brunekreef en Forsberg (2005), Sandström et al. (2005), Cook et al. (2005) en US-EPA (2005).

### **Aftrek mineraal stof**

Omdat mineraal stof mogelijk een gezondheidseffect heeft, ligt aftrek van deze fractie op basis van het Besluit luchtkwaliteit (Staatsblad, 2005) niet in de rede. De Europese Commissie is in de voorgestelde richtlijn (EU, 2005a) ruimhartiger. Er wordt voorgesteld om natuurlijke bijdrage  $\text{PM}_{10}$  af te trekken (schadelijk of niet) met betrekking tot het halen van grenswaarden, omdat deze bijdrage buiten de actieradius van het beleid ligt. Door TNO is een ruwe schatting gemaakt van het effect op het aantal dagen overschrijding van de  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$  bij aftrek van mineraal stof in combinatie met aftrek van zeezout (Denier van der Gon, 2005). Dit levert mogelijk 20% tot 50% minder dagen overschrijding. Aftrek van bepaalde  $\text{PM}_{10}$ -fracties is *de facto* een versoepeling van de norm, omdat bij het afspreken van de norm is uitgegaan van de  $\text{PM}_{10}$ -concentratie inclusief de natuurlijke bijdragen. Waar aftrek tot concentraties ruim onder de normstelling leidt, is risico van maximalisering tot grenswaarde aanwezig met bijdragen van meer schadelijke antropogene  $\text{PM}_{10}$ -fracties.

## **6.3 Hemisferische bijdrage**

De hemisferische bijdrage aan  $\text{PM}_{10}$  bestaat uit de bijdrage van bronnen buiten Europa (dus inclusief Saharastof). Weijers et al. (2000) schatten deze bijdrage voor Nederland op ongeveer  $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ .

## **6.4 Overig (biostof, SOA en water)**

Belangrijke bestanddelen van de overige delen  $\text{PM}_{10}$  zijn biostof, secundair organisch aërosol (SOA) en water.

## Biostof

Wat is biostof? Biostof is de verzamelnaam voor deeltjes die hun oorsprong kennen in biologisch materiaal en dat bijvoorbeeld door mechanische slijtage in de lucht kan komen. Biostof bevat: dood celmateriaal, bacteriën, vezels, sporen, pollen of delen ervan. Het omvat zo een veelheid aan verschillende bronnen. Over de bijdrage aan PM<sub>10</sub> is over het algemeen weinig bekend. Jaenicke (2005) geeft aan dat biostof tussen 10% en 50% bijdraagt aan de totale primaire aerosolfractie. De bijdrage aan de PM<sub>10</sub> lijkt echter beperkt. Ruwe schattingen voor de bijdrage aan PM<sub>10</sub> geven aan dat de biostofconcentraties in de buitenlucht 0.5 µg/m<sup>3</sup> zouden kunnen zijn.

## SOA

Secundair Organisch Aërosol (SOA) is een fractie van PM<sub>10</sub> die bestaat uit afbraakproducten van vluchtige organische stoffen (VOS). Omdat VOS-emissies zowel van antropogene als natuurlijke oorsprong kunnen zijn, is SOA dat ook: antropogeen (ASOA), biogeen (BSOA). Modelstudies geven aan dat de ASOA in Nederland de dominante fractie vormt (> 70%). Elders in Europa, bijvoorbeeld in Zweden, vormt BSOA de grootste fractie. Even en Ten Brink (2000) geven een ruwe schatting van SOA-concentraties in Nederland met een marge van ongeveer 0-4 µg/m<sup>3</sup>. Modellen die SOA-concentraties berekenen zijn nog in de ontwikkelingsfase (e.g. Tsigaridis en Kanakidou, 2003). De berekende SOA-bijdrage aan de PM<sub>10</sub>-concentratie in Nederland ligt tussen de 0.1 en 0.9 µg/m<sup>3</sup> afhankelijk van het seizoen.

## Water

Water wordt als onderdeel van PM<sub>10</sub> zelden apart gemeten. De hoeveelheid water op de deeltjes in de buitenlucht varieert sterk als functie van de temperatuur en relatieve vochtigheid. Juist deze twee grootheden spelen een rol bij metingen van fijn stof. De hoeveelheid water die zich op gemeten PM<sub>10</sub>-deeltjes bevindt is daarom sterk afhankelijk van het meetproces. Er moet dan ook onderscheid worden gemaakt tussen het water op deeltjes in de buitenlucht en op deeltjes die worden gemeten. Het verhaal hier is beperkt tot water op deeltjes die worden gemeten.

Schattingen voor de grootte van de fractie water op PM<sub>10</sub>-deeltjes in Nederland zijn typisch tot ongeveer 4 µg/m<sup>3</sup> (e.g. Tsyro, 2005). De relatieve bijdrage van water aan PM<sub>10</sub> is geschat op 10% tot 15% (Ten Brink, persoonlijke communicatie). Deze waarden zijn op basis van metingen onder standaard condities (20°C en 50% RH) conform de meetvoorschriften voor PM<sub>10</sub>-referentiemetingen. De hoeveelheid water op deeltjes gemeten met automatische monitoren zoals de bèta-stof-monitor wijken hier meestal van af door de invloed van voorverwarming van de lucht (Van Arkel et al., 2002). Dit kan een afname maar ook een toename tot gevolg hebben van de gemeten concentraties ten opzichte van de concentraties gemeten volgens de referentiemetingen (zie ook Bijlage C). Water speelt ook een rol bij het vervluchtigingsproces van andere vluchtige fijnstoffracties zoals ammoniumnitraat. Het combineren van temperatuur- en relatieve-vochtigheidsmetingen met automatische meetmethoden lijkt een sterke verbetering op te leveren om equivalentie te voorspellen met de referentiemethode (Gehrig et al., 2005). De rol van water op deeltjes voor en tijdens het (automatische) meetproces is tot dusver onderbelicht terwijl het mogelijk een sleutelrol speelt bij de bepaling van PM<sub>10</sub>-concentraties.



## 7. Conclusie

Dit rapport geeft achtergrondinformatie bij grootschalige fijnstofkaarten (de zogenaamde GCN-kaarten voor fijn stof). De volgende onderwerpen zijn uitgewerkt: rekenmethodiek, nieuwe inzichten fijn stof, onzekerheid fijnstofconcentraties en samenstelling van ‘overige bronnen PM’. De bijdrage door ‘overige bronnen PM’ is het deel van de gemeten fijnstofconcentratie, dat niet door modelberekeningen is verklaard. Hieronder de belangrijkste resultaten en conclusies per onderwerp.

### Rekenmethodiek

- De huidige rekenmethodiek leidt tot landsdekkende PM<sub>10</sub>-kaarten met grootschalige achtergrondconcentraties. Gemiddeld de helft van de concentraties wordt berekend met het OPS-model op basis van bekende antropogene bronnen in Europa. De andere helft wordt via kalibratie aan metingen toegekend aan ‘overige bronnen PM’.
- De GCN-kaarten voor fijn stof zijn het optimale resultaat van modelberekeningen, met veel ruimtelijk detail, en metingen die als referentieniveau gelden.
- Een nadeel van het combineren van model en meting is dat zo systematische afwijkingen in model en meting automatisch in het eindresultaat doorwerken. Validatie van de resultaten aan onafhankelijke metingen is slechts beperkt mogelijk.
- De bijdrage door ‘overige bronnen PM’ laat een dalende trend zien van ongeveer 0.4 µg/m<sup>3</sup>/jaar. Er is onvoldoende informatie voor een sluitende verklaring voor deze dalende trend. Bestaande hypothesen sluiten een stijgende trend in de toekomst niet uit.

### Nieuwe inzichten fijn stof

- Er is vastgesteld dat zich eind 2003 een significante trendbreuk voordoet in de metingen op regionale achtergrondstations. Concentraties op dit type station zijn vrij plotseling gemiddeld 10% tot 15% gedaald (3 tot 4 µg/m<sup>3</sup>).
- Metingen op stadsachtergrond- en straatstations laten eind 2003 geen trendbreuk zien.
- De oorzaak van de trendbreuk is waarschijnlijk een wijziging in de voorverwarmingsinstelling van een nieuw type meetinstrument. Dit type instrument is om praktische redenen vooral op regionale achtergrondstations geplaatst. Een sluitende verklaring voor de waargenomen trendbreuk is nog niet gevonden.
- Het effect van deze instrumentele wijziging op de gemeten concentraties is mogelijk versterkt door temperatuur-, vocht- en PM<sub>10</sub>-samenstellingsomstandigheden die specifiek zijn voor regionale achtergrondstations.
- Het gevolgen van de trendbreuk zijn:
  - GCN-kaarten voor 2004 en 2005 kennen geen grootschalige overschrijdingen meer van de PM<sub>10</sub>-grenswaarden. Overschrijdingssituaties zijn beperkt tot de stedelijke omgeving en snelwegen.
  - De daling werkt ook door in de verkenningen voor fijn stof waardoor de haalbaarheid van de PM<sub>10</sub>-grenswaarden mogelijk rond 2015 in zicht komt.

### **Onzekerheid fijnstofconcentratie**

- De gemiddelde onzekerheid (het 95%-betrouwbaarheidsinterval) in de fijnstofconcentraties voor de historische jaren is gemiddeld  $\pm 6.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , verkenningen zijn onzekerder ( $\pm 7.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ).
- Het grootste deel ( $\pm 4.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) van de genoemde onzekerheid in de verkenningen wordt veroorzaakt door de natuurlijke meteorologische variabiliteit van jaar tot jaar. Verkenningen zijn namelijk berekend voor meteorologisch gemiddelde omstandigheden. Ongunstige omstandigheden die tot hogere concentraties leiden zullen dus geregeld voorkomen.
- De onzekerheid in de fijnstofconcentraties op straatniveau is afhankelijk van de verkeers- en straatsituatie ter plekke. Berekende onzekerheden variëren tussen 18% en 46%.
- De onzekerheden zijn berekend op basis van schattingen van alleen de bekende toevallige fouten. Door grote kennisleemtes in het fijnstofdossier kunnen onbekende fouten en systematische afwijkingen nog belangrijk zijn en leiden tot bijstellingen in de toekomst.

### **Samenstelling 'overige bronnen PM'**

- 'Overige bronnen PM' bestaat uit zeezout, bodemstof, water, secundair organisch aërosol, biostof en de bijdrage van bronnen buiten Europa.
- Ruwe schattingen voor het totaal lopen uiteen van 12 tot 18  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ : 9-12  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  voor zeezout, bodemstof en de bijdrage van bronnen buiten Europa en 3-6  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  voor het slechtst bekende deel dat bestaat uit water, secundair organisch aërosol en biostof.
- Omdat 'overige bronnen PM' een rekenkundige sluitpost is in de fijnstofrekenmethodiek, bevat het naast de genoemde 'echte' bronbijdragen ook het netto effect van (onbekende) systematische afwijkingen in model en meting.

### **Verbeterpunten**

- De relatief grote  $\text{PM}_{10}$ -onzekerheidsmarge kan alleen worden verkleind als de nauwkeurigheid van de zowel emissies, als metingen als modellen wordt verbeterd. Het gaat dan om het nauwkeurigere emissiegegevens van antropogene  $\text{PM}_{10}$ -bronnen zoals landbouw en het kwantificeren van natuurlijke bronnen van bijvoorbeeld zeezout en bodemstof. Verder kunnen de modelberekeningen worden verbeterd door de samenstelling te bepalen van het deel 'overige bronnen PM' door middel van modelonderzoek in combinatie met nauwkeurigere metingen van  $\text{PM}_{10}$  (totaal en samenstelling). Verder kan, door vooral een betere beschrijving in ruimte en tijd van verkeersemisies, de lokale bijdrage aan de  $\text{PM}_{10}$ -concentratie nauwkeuriger worden berekend.
- Om de belangrijkste verbeterpunten op te kunnen pakken wordt er naast het lopende onderzoek in Nederland een door het Ministerie van VROM gefinancierd onderzoeksprogramma gestart (BOP: Beleidsgeoriënteerd Onderzoeksprogramma Pm).



## Literatuur

AQEG, 2005. Air Quality Expert Group Report on Particulate Matter in the United Kingdom – Chapter 3. What is causing health effects of particles?

(<http://www.defra.gov.uk/environment/airquality/aqeg/particulate-matter/pdf/ch3.pdf>)

Arkel, F.Th. van, E.M. van Putten, H.J.Th. Bloemen en A. van der Meulen, 2002a. Vergelijkende PM<sub>10</sub>-metingen in Nederland, deel A: laboratoriumexperimenten. RIVM-rapport 650010023, Bilthoven. (<http://www.rivm.nl/bibliotheek/rapporten/650010023.pdf>)

Arkel, F.Th. van, E.M. van Putten, H.J.Th. Bloemen en A. van der Meulen, 2002b. Vergelijkende PM<sub>10</sub>-metingen in Nederland, deel B: landelijke omgeving. RIVM-rapport 650010024, Bilthoven. (<http://www.rivm.nl/bibliotheek/rapporten/650010024.pdf>)

Blank, F., 2001. Meetonzekerheid Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit (LML), KEMA-rapport 50050870-KPS/TCM 01-3063, Arnhem.

Breugel, P. van en E. Buijsman, 2001. Preliminary assessment of air quality for sulfur dioxide, nitrogen dioxide, nitrogen oxides, particulate matter, and lead, in the Netherlands under European Union legislation. RIVM-rapport 725601005, Bilthoven.

Brunekreef, B. en B. Forsberg, 2005. Epidemiological evidence of effects of coarse airborne particles on health. Eur. Respir. J., 26, 2, 309-318.

Buijsman, E., J.P. Beck, L. van Bree, F.R. Cassee, R.B.A. Koelemeijer, J. Matthijsen, R. Thomas en K. Wieringa, 2005. Fijn stof nader bekeken. MNP-rapport 500037008, Bilthoven. (<http://www.rivm.nl/bibliotheek/rapporten/500037008.pdf>)

CEPMEIP, 2001. Emission estimates for particulate matter. Berdowski J., A. Visschedijk, E. Creemers and T. Pulles TNO-MEP. Co-ordinated European Programme on Particulate Matter Emission Inventories, Projections and Guidance (CEPMEIP). (<http://www.air.sk/tno/cepmeip/>)

Chardon, W.J. en K.W. van der Hoek, 2002. Berekeningsmethode voor de emissie van fijn stof vanuit de landbouw, Wageningen, Alterra (rapport 682), RIVM-rapport 773004014, Bilthoven. (<http://www.rivm.nl/bibliotheek/rapporten/773004014.pdf>)

Cook, A.G., P. Weinstein en J. A. Centeno, 2005. Health Effects of Natural Dust: Role of Trace Elements and Compounds, Biological Trace Element Research, 103, 1, 1-16.

Corio, L. A. en J. Sherwell, 2000. In-Stack Condensable Particulate Matter Measurements and Issues, J. Air & Waste Manage. Assoc. 50, 207-218.

Daniëls, B.W. en J.C.M. Farla, 2006. Potentieelverkenning klimaatdoelstellingen en energiebesparing tot 2020, Analyses met het Optiedocument energie en emissies 2010/2020, Energieonderzoek Centrum Nederland en Milieu- en Natuurplanbureau, ECN-rapport ECN-C--05-106 en MNP-rapport 773001039.

(<http://www.ecn.nl/library/reports/2006/c05106.html>).

De Jonge, D., A. van der Meulen, S. van den Elshout, J van der Laan, P. Kumm, J. Visser, E. Weijers, J. van Loon en M. Severijnen, 2005. Overzicht van onderzoek naar correctiefactoren voor automatische PM<sub>10</sub> metingen in Nederland, RIVM-rapport 680500 002, Bilthoven.

Denier van der Gon, H.A.C., 2005. Contribution of crustal material to annual average PM levels and PM limit exceedance days in the Netherlands and the potential impact of a combined correction for sea salt and crustal material on the number of PM exceedance days. TNO notitie dd. 20 april 2005.

Dingenen, R. van, F. Raes, J.-P. Putaud, U. Baltensperger, A. Charron, M.-C. Facchini, S. Decesari, S. Fuzzi, R. Gehrig, H.-C. Hansson et al., 2004. A European aerosol phenomenology—1: physical characteristics of particulate matter at kerbside, urban, rural and background sites in Europe. *Atm. Environ.* 38, 16, 2561-2577.

Dril, A.W.N van en H.E. Elzenga, Referentieramingen 2005-2020, ECN-MNP, ECN-rapport C-05-018, RIVM-rapport 773001031, ECN, Petten, 2005.  
(<http://www.rivm.nl/bibliotheek/rapporten/773001031.pdf>)

Eerens, H.C., C.J. Sliggers en K.D. van den Hout, K.D., 1993. The CAR model: the Dutch method to determine city street air quality. *Atm. Env.* 27B, 389-399.

Eerens H.C., 1998. Sea salt aerosol-model, Laboratorium voor Luchtonderzoek, RIVM notitie d.d. 23 september 1998.

Eerens, H.C., J.A. Van Jaarsveld en J. Peters, 1998. European status - Air quality: Trends, monitoring, background modelling, in: *Air Pollution in the 21st century, Priority issues and policy Studies in Environmental Science*, Elsevier, Amsterdam. ISBN 0-444-82799-4, 133-147.

Elzakker, B.G. van, A. van der Meulen, J. van Hellemond en T.A. Regts, 1992. De bèta-stof meetmethode. Vergelijking van een vijftal monitoren, RIVM-rapport 223105001, Bilthoven.

EU, 1996. Richtlijn 96/62/GC van de raad van 27 september 1996 inzake de beoordeling en het beheer van de luchtkwaliteit. Publicatieblad van de Europese Gemeenschappen No L 296/55.

EU, 1997. Ambient air pollution by particulate matter. Position paper on particulate matter. ([http://www.europa.eu.int/comm/environment/air/pdf/pp\\_pm.pdf](http://www.europa.eu.int/comm/environment/air/pdf/pp_pm.pdf))

EU, 1999. Richtlijn 1999/30/EG van de raad van 22 april 1999 betreffende grenswaarden voor zwaveldioxide, stikstofdioxide en stikstofoxiden, zwevende deeltjes en lood in lucht. Publicatieblad van de Europese Gemeenschappen No L163/41.

EU, 2001a. Beschikking van de Commissie van 17 oktober 2001 tot wijziging van de bijlagen bij Beschikking 97/101/EG van de Raad tot invoering van een regeling voor de onderlinge uitwisseling van informatie over en gegevens van meetnetten en meetstations voor luchtverontreiniging in de lidstaten (kennisgeving geschied onder nummer C(2001) 3093 2001/753/EG, Publicatieblad van de Europese Gemeenschappen No L282/69.

EU, 2001b. Richtlijn 2001/81/EG van het Europees Parlement en de Raad van 23 oktober 2001 inzake nationale emissieplafonds voor bepaalde luchtverontreinigende stoffen (NEC-richtlijn), Publicatieblad van de Europese Gemeenschappen No L309/22.

EU, 2004. Second position paper on particulate matter. CAFE Working Group on Particulate Matter.

([http://europa.eu.int/comm/environment/air/cale/pdf/working\\_groups/2nd\\_position\\_paper\\_p m.pdf](http://europa.eu.int/comm/environment/air/cale/pdf/working_groups/2nd_position_paper_p m.pdf))

EU, 2005a. Mededeling van de commissie aan de Raad en het Europese Parlement Thematische strategie inzake luchtverontreiniging, COM(2005) 446, 21 september 2005, Brussel.

([http://europa.eu.int/eurlex/lex/LexUriServ/site/nl/com/2005/com2005\\_0446nl01.pdf](http://europa.eu.int/eurlex/lex/LexUriServ/site/nl/com/2005/com2005_0446nl01.pdf)).

EU, 2005b. Voorstel voor een richtlijn van het Europees parlement en de raad betreffende de luchtkwaliteit en schonere lucht voor Europa, COM(2005) 447, 21 september 2005, Brussel.

([http://eur-lex.europa.eu/LexUriServ/site/nl/com/2005/com2005\\_0447nl01.pdf](http://eur-lex.europa.eu/LexUriServ/site/nl/com/2005/com2005_0447nl01.pdf))

Even A. en H.M. ten Brink, 2000. Schatting van de bijdrage van secundair organisch materiaal aan PM<sub>10</sub> (In Dutch), ECN-rapport ECN-C-00-038, Petten.

Folkert, R.J.M., E. Buringh, P. Hammingh, J. Aben, J. Beck, W. Blom, L. van Bree, R. van den Brink, E. Buijsman, M. van Esbroek, J.P. Hettelingh, H. Van Jaarsveld, B. Jimmink, J. Matthijsen, A. van Hinsberg, R. Koelemeijer, J. Peters, J. de Ruiter, W. Smeets, S. van Tol, R. Thomas, G. Velders, K. van Velze, W. de Vries, K. Wieringa en H. van Zeijts, 2005. Consequences for the Netherlands of the EU thematic strategy on air pollution, MNP report 500034002, Bilthoven. (<http://www.rivm.nl/bibliotheek/rapporten/500034002.pdf>)

Funk, R., 2005. Dust resuspension by erosion and land management/ agricultural activities (unaccounted mass in emissions). Presentatie PM workshop BMU Berlijn, maart 2005.

Gehrig, R., C. Hueglin, B. Schwarzenbach, T. Seitz en B. Buchmann, 2005. A new method to link PM<sub>10</sub> concentrations from automatic monitors to the manual gravimetric reference method according to EN12341, *Atm. Environ.*, 39, 2213-2223.

Gijzen A. en A.J. Seebregts, 2005. Onzekerheden in referentie ramingen, MNP-rapport 773001032/2005, Bilthoven.

Hammingh P., J.P. Beck, W.F. Blom, R.M.M. van den Brink, R.J.M. Folkert en K. Wieringa, 2005. Beoordeling van het Prinsjesdagpakket, Aanpak luchtkwaliteit 2005, MNP-rapport 500037010, MilieuBilthoven.

(<http://www.rivm.nl/bibliotheek/rapporten/500037010.pdf>)

Hoen, A., R.M.M. van den Brink en J.A. Annema, 2006. Verkeer en vervoer in de Welvaart en Leefomgeving, Achtergronddocument bij Emissieprognoses Verkeer en Vervoer, MNP-rapport 500076002, Bilthoven. (in voorbereiding)

Hoogerbrugge R., J. Matthijsen, J.A. Van Jaarsveld, M. Schaap en H. Denier van der Gon, 2005. Aanbeveling voor een voorlopige regeling voor de correctie van fijn stof (PM<sub>10</sub>) concentraties voor de bijdrage van zeezout. RIVM notitie 14 juli 2005, Bilthoven.

Hueglin, C., R. Gehrig, U. Baltensperger, M. Gysel, C. Monn en H. Vonmont, 2005. Chemical characterisation of PM<sub>2.5</sub>, PM<sub>10</sub> and coarse particles at urban, near-city and rural sites in Switzerland, *Atm. Environ.*, 39, 637-651.

Jaarsveld, J.A. van, 2004. The Operational Priority Substances model, description and validation of OPS-Pro 4.1, MNP-rapport 500045001/2004, Bilthoven, Nederland. (<http://www.rivm.nl/bibliotheek/rapporten/500045001.pdf>) (zie ook OPS-themasite: <http://www.mnp.nl/ops>)

Jaenicke, R., 2005. Abundance of Cellular Material and Proteins in the Atmosphere, *Science* vol 308, 73.

Jonker, S. en S. Teeuwisse, 2006. Handleiding CARII, versie 5.0. TNO-rapport 2006-A-R00078/B (conceptrapport), Apeldoorn.

Kaluzny, S.P., S.C. Vega, T.P. Cardoso en A.A. Shelly, 1998. S+Spatial Stats - Users Manual for Windows and Unix. Springer-Verlag New York, Inc., New York.

Kasstele, J. van de, en G.J.M. Velders, 2006. Uncertainty assessment of local NO<sub>2</sub> concentrations derived from error-in-variable external drift Kriging and its relationship to the 2010 air quality standard, *Atmospheric Environment*, 40, 2583-2595.

Koelemeijer, R.B.A., Ch.W. Backes, W.F. Blom, A.A. Bouwman, P. Hammingh, Consequenties van de EU-luchtkwaliteitsrichtlijnen voor ruimtelijke ontwikkelingsplannen in verschillende EU-landen, MNP-rapport 500052001/2005, Bilthoven. (<http://www.rivm.nl/bibliotheek/rapporten/500052001.pdf>)

Loon, M. van, L. Tarrason en M. Posch, 2005. Modelling Base Cations in Europe, EMEP/MS-CHE W & CCE Note 2/2005, ISSN 0804-2446. ([http://www.emep.int/publ/reports/2005/emep\\_technical\\_2\\_2005.pdf](http://www.emep.int/publ/reports/2005/emep_technical_2_2005.pdf))

MNP, 2006a. Nieuwe inzichten in de omvang van de fijnstofproblematiek, MNP-rapport 500093003/2006, Bilthoven. (<http://www.rivm.nl/bibliotheek/rapporten/500093003.pdf>)

MNP, 2006b. Milieubalans 2006, Milieu- en Natuurplanbureau, Bilthoven. (<http://www.rivm.nl/bibliotheek/digitaaldepot/MB2006.pdf>)

Moreno, T, X. Querol, A. Alastueya, M. Viana en W. Gibbons, 2005. Exotic dust incursions into central Spain: Implications for legislative controls on atmospheric particulates, *Atm. Environ.*, 39, 6109-6120.

NAP, 2002. On health risks of ambient PM in the Netherlands (Netherlands Aerosol Programme) Editors: E. Buringh en A. Opperhuizen, October 2002, RIVM report 650010 032, Bilthoven, The Netherlands. (<http://www.rivm.nl/bibliotheek/rapporten/650010032.pdf>)

NEN, 1998. NEN-EN 12341. Air quality. Determination of the PM<sub>10</sub> fraction of suspended particulate matter. Reference method and field test procedure to demonstrate reference equivalence of measurement methods.

Putaud, J. -P., F. Raes, R. van Dingenen, E. Brüggemann, M. -C. Facchini, S. Decesari, S. Fuzzi, R. Gehrig, C. Hüglin, P. Laj et al., 2004. A European aerosol phenomenology—2: chemical characteristics of particulate matter at kerbside, urban, rural and background sites in Europe. *Atm. Environ.* 38, 16, 2579-2595.

Putten, E.M. van, H.J.Th. Bloemen en A. van der Meulen, 2002a. Vergelijkende PM<sub>10</sub>-metingen in Nederland, deel C: stedelijke omgeving. RIVM-rapport 650010025, Bilthoven. (<http://www.rivm.nl/bibliotheek/rapporten/650010025.pdf>)

Putten, E.M. van, H.J.Th. Bloemen en A. van der Meulen, 2002b. Betrouwbaarheid van PM<sub>10</sub>-metingen in Nederland: een samenvattend overzicht RIVM-rapport 650010026, Bilthoven. (<http://www.rivm.nl/bibliotheek/rapporten/650010026.pdf>)

Querol, X., A. Alastuey, C.R. Ruiz, B. Artiñano, H.C. Hansson, R.M. Harrison, E. Buringh, H.M. ten Brink, M. Lutz, P. Bruckmann et al., 2004. Speciation and origin of PM<sub>10</sub> and PM<sub>2.5</sub> in selected European cities. *Atm. Environ.*, 38, 6547-6555.

Quinn, P. K. en D. J. Coffman, 1998. Local closure during the First Aerosol Characterization Experiment (ACE 1): Aerosol mass concentration and scattering and backscattering coefficients, *J. Geophys. Res.*, 103, 16 575–16 596.

Ruiter, J.F. de, W.A.J. van Pul, J.A. Van Jaarsveld en E. Buijsman, 2006. Depositie in Nederland in de periode 1981-2002, MNP-rapport 500037005/2006 (in voorbereiding), Bilthoven.

Salvador, P., B. Artiñano, D.G. Alonso, X. Querol en A. Alastuey, 2004. Identification and characterisation of sources of PM<sub>10</sub> in Madrid (Spain) by statistical methods, *Atm. Environ.*, 38, 435-447.

Sandström T., D. Nowak en L. van Bree, 2005. Health effects of coarse particles in ambient air: messages for research and decision-making. *Eur. Respir. J.*, 26, 2, 187-188.

Sciare, J., K. Oikonomou, H. Cachier, N. Mihalopoulos, M. O. Andreae, W. Maenhaut, en R. Sarda-Estève, 2005. Aerosol mass closure and reconstruction of the light scattering coefficient over the Eastern Mediterranean Sea during the MINOS campaign, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 5, 2427–2461.

Smeets, W.L.M., J.P. Beck, R.M.M. van den Brink, M.M. van Eerdt, H.E. Elzinga, P. Kroon, M.W. van Schijndel, D.S. Nijdam en C.J. Peek, 2005. Actualisatie van de Emissieraming van SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>, NH<sub>3</sub>, NMVOS en fijn stof in 2010, Achtergrondrapport Beoordeling Uitvoeringsnotitie 2003. RIVM-rapport 500037007, Bilthoven. (<http://www.rivm.nl/bibliotheek/rapporten/500037007.pdf>)

Staatsblad, 2001. Besluit van 11 juni 2001, houdende uitvoering van de richtlijn 1999/30/EG van de Raad van de Europese Unie van 22 april 1999, betreffende grenswaarden zwaveldioxide, stikstofdioxide en stikstofdioxiden, zwevende deeltjes en lood in de lucht (PbEG L 163) en de richtlijn 92/62/EG van de Raad van de Europese Unie van 27 september 1996 inzake de beoordeling van de luchtkwaliteit (PbEG L 296) (Besluit luchtkwaliteit). Staatsblad 269, 1-58.

Staatsblad, 2005. Besluit luchtkwaliteit 2005, Staatsblad 316.

Staatscourant, 2005. Regeling van de Minister van Volkshuisvesting, Ruimtelijke Ordening en Milieubeheer van 11 juli 2005, nr. LMV2005165892, houdende vaststelling van de wijze van meten en berekenen van de luchtkwaliteit. (Meetregeling luchtkwaliteit 2005), Staatscourant 142.

TNO, 2004. Uncertainty assessment of NO<sub>x</sub>, SO<sub>2</sub> and NH<sub>3</sub> emissions in the Netherlands. TNO report R 2004/100, Apeldoorn.

Tsigaridis, K. en M. Kanakidou, 2003. Global modelling of secondary organic aerosol in the troposphere: a sensitivity analysis. *Atmospheric Chemistry and Physics* 3, 1849–1869.

Tsyro, S.G., 2005. To what extent can aerosol water explain the discrepancy between model calculated and gravimetric PM<sub>10</sub> and PM<sub>2.5</sub>?, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 515–532.

UBA-Oostenrijk, 2005. Schwebestaug in Österreich; Fachgrundlagen für eine kohärente österreichische Strategie zur Verminderung der Schwebestaubbelastung. Umweltbundesamt Oostenrijk, Bericht BE-277, Wenen, augustus 2005.

Unger, N., D.T. Shindell, D.M. Koch, en D.G. Streets, 2006. Cross influences of ozone and sulfate precursor emissions changes on air quality and climate. *Proc. Natl. Acad. Sci.* 103, 4377-4380, doi:10.1073/pnas.0508769103.

US-EPA, 2005. Review of the National Ambient Air Quality Standards for Particulate Matter – Policy Assessment of Scientific and Technical Information – OAQPS Staff Paper, US EPA, Juni 2005. ([http://www.epa.gov/ttn/naaqs/standards/pm/data/pmstaffpaper\\_20050630.pdf](http://www.epa.gov/ttn/naaqs/standards/pm/data/pmstaffpaper_20050630.pdf))

Velders, G.J.M., R. Hoogerbrugge en P. Ruysenaars, 2006a. Discussie grootschalige concentraties fijn stof Rijnmond, MNP briefrapport 500095001, Bilthoven. (<http://www.rivm.nl/bibliotheek/rapporten/500095001.pdf>)

Velders, G.J.M., J.M.M. Aben, J.P. Beck, W.F. Blom, A. Hoen, B.A. Jimmink, J. Matthijsen, J.F. de Ruiter, W.L.M. Smeets, K. van Velze, H. Visser, W.J. de Vries en K. Wieringa, 2006b. Grootschalige concentratiekaarten voor luchtverontreiniging in Nederland, MNP-rapport 500093002/2006, Bilthoven. (<http://www.rivm.nl/bibliotheek/rapporten/500093002.pdf>)

Venema, J., A. van der Meulen, B.G. Elzakker en T.A. Regts, 1992. Acceptatierapport FAG FH62 I-N bèta-stofmonitoren, RIVM-rapport 223105002, Bilthoven.

Visser, H., E. Buringh en P.B. van Breughel, 2001. Composition and Origin of Airborne Particulate Matter in the Netherlands, RIVM report 650010029, Bilthoven, The Netherlands. (<http://www.rivm.nl/bibliotheek/rapporten/650010029.pdf>)

Visser, H. en H. Noordijk, 2002. Correcting air pollution time series for meteorological variability. With an application to regional PM<sub>10</sub> concentrations. RIVM report 722601007, Bilthoven, The Netherlands. (<http://www.rivm.nl/bibliotheek/rapporten/722601007.pdf>)

Visser, H., 2004a. Estimation and detection of flexible trends. *Atmos. Environ.* 38, 4135-4145.

Visser, H., 2004b. Detectie van milieuveranderingen. Een toepassing van Structurele Tijdreeksmodellen en het Kalmanfilter. MNP/RIVM-rapport 550002002, Bilthoven. (<http://www.rivm.nl/bibliotheek/rapporten/550002002.pdf>)

Visser, H., 2005. The significance of climate change in the Netherlands. An analysis of historical and future trends (1901-2020). MNP/RIVM report 550002007, Bilthoven, The Netherlands. <http://www.rivm.nl/bibliotheek/rapporten/550002007.pdf>

Vrins, E., 1996. De relatie radiometrie-gravimetrie van de  $\beta$ -stofmonitoren van het landelijk meetnet luchtkwaliteit. Buro blauw-rapport BL95616.01.

Vrins, E., en F. Schulze, 2000. Windgedreven concentratie van fijn stof. Rapport vr037, 50 pp. Studie uitgevoerd in opdracht van het Ministerie van VROM DGM.

WebDab, UNECE/EMEP, WebDab emission database 2005, (<http://webdab.emep.int>).

Weijers, E.P., M. Schaap en H.M. ten Brink, 2000. Estimations of the background concentrations of PM<sub>10</sub> and sulphate on the Northern Hemisphere. ECN/TNO report ECN-C-00-039/TNO MA 162, Petten.

Wesselink, L.G., W. Smeets, R.M.M. van den Brink, en R. Thomas, 1998. Fijn stof emissies in Nederland en buitenland. RIVM-rapport 650010014. Bilthoven. (<http://www.rivm.nl/bibliotheek/rapporten/650010014.pdf>)

Williams, M. en P. Bruckmann, 2002. Guidance To Member States On PM<sub>10</sub> Monitoring and intercomparisons with the reference method. EC Working Group on Particulate Matter. (<http://europa.eu.int/comm/environment/air/pdf/finalwgreporten.pdf>)





## Bijlage A Emissiegegevens 1993-2005

De analyse voor van fijn stof voor de periode 1993-2005 is uitgevoerd op basis van metingen en berekeningen met het OPS-model. Voor de berekeningen zijn emissiegegevens gebruikt van verschillende stoffen: primair fijn stof, en zwaveldioxide (SO<sub>2</sub>), stikstofoxiden (NO<sub>x</sub>) en ammoniak (NH<sub>3</sub>), de precursors van secundair anorganisch fijn stof. Van deze vier stoffen zijn antropogene emissiecijfers gescheiden in gegevens voor Nederland en gegevens voor Europa. Hieronder worden deze emissiegegevens in een vijftal tabellen samengevat. De bijdrage van punt- en oppervlaktebronnen zijn hierbij niet onderscheiden maar in de berekeningen worden deze wel apart behandeld.

De emissiegegevens zijn afkomstig van de Emissieregistratie voor Nederland en van EMEP (expert emissions; WebDab, 2005) voor het buitenland. De ER is in Nederland verantwoordelijk voor het verzamelen, bewerken, beheren, registreren en rapporteren van emissiedata waarmee de betrokken ministeries aan de nationale en internationale verplichtingen op het gebied van emissierapportages kunnen voldoen. De EMEP emissiedata zijn de officiële emissies gerapporteerd aan de UNECE door alle landen in Europa in het kader van de 'Convention on Long range Transboundary Air pollution'. Bij de berekeningen wordt zijn voor elk jaar de meest recente gegevens gebruikt. In de praktijk betekent dit dat er een verschil is van 1 à 2 jaar tussen het jaar van berekening en het jaar waarvan de emissiegegevens worden gebruikt.

### Primair fijn stof Nederland

De emissies van primair fijn stof in Nederland zijn op basis van de ER (Milieubalans, 2005). De emissiegegevens zijn samengevat in zes hoofdsectoren: Industrie, Energie en Raffinaderijen (IER), Verkeer, Consumenten, Handel Diensten Overheid (HDO) en Bouw, Landbouw en Zeescheepvaart (zsv.). De sector zeescheepvaart omvat de emissies als gevolg van internationale zeescheepvaart op het Nederlands continentaal plat (NCP), zeegaand, naar en in havens. Zeescheepvaart emissies tellen niet mee voor de internationale verplichtingen.

Tabel A.1 Emissies primair fijn stof Nederland (kton/jaar), bijdrage per sector voor de periode 1990-2003.

	1990	1991	1992	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003 <sup>1)</sup>
IER	37	34	31	28	25	23	21	19	16	15	13	13	12	12
Verkeer	23	23	22	21	20	20	19	18	18	18	17	16	16	16
Consumenten	5	5	4	4	4	4	4	4	4	4	4	4	4	4
HDO en Bouw	4	4	4	4	4	3	4	4	4	4	4	4	4	3
Landbouw	9	9	9	9	9	10	10	10	10	10	10	9	9	8
Totaal (excl. zsv)	<b>78.1</b>	<b>74.2</b>	<b>70.5</b>	<b>65.9</b>	<b>62.7</b>	<b>59.0</b>	<b>57.4</b>	<b>54.6</b>	<b>52.1</b>	<b>50.5</b>	<b>48.5</b>	<b>45.8</b>	<b>45.3</b>	<b>42.4</b>
Zeescheepvaart (zsv)	7	8	8	8	8	8	8	9	9	9	9	10	10	10
Totaal (incl. zsv)	<b>85.4</b>	<b>81.7</b>	<b>78.2</b>	<b>73.8</b>	<b>70.7</b>	<b>67.2</b>	<b>65.9</b>	<b>63.5</b>	<b>61.1</b>	<b>59.7</b>	<b>58.0</b>	<b>55.6</b>	<b>55.4</b>	<b>52.8</b>

<sup>1)</sup> emissiegegevens ook gebruikt voor 2004 en 2005

De geregistreerde emissies van primair fijn stof zijn vanaf 1990 tot en met 2003 met circa 32 kton zijn gedaald van ongeveer 85 kton in 1990 tot ongeveer 53 kton in 2003. De grootste daling (25 kton) komt door reducties bij de Industrie, Energie en Raffinaderijen.

Verkeersemissies zijn, ondanks volumegroei, gedaald (8 kton) door de steeds scherper geworden Europese regelgeving. Emissies binnen de sectoren Landbouw, Consumenten en HDO en Bouw zijn licht gedaald of ongeveer gelijk gebleven. De sector (internationale) zeescheepvaart laat als enige een emissie toename zien tussen 1990 en 2004 met ongeveer 3 kton.

### Primair fijn stof Europa

Voor GCN-kaarten worden EMEP emissiegegevens gebruikt (WebDab, 2005). Additionele gegevens als bronlocatie, bronafmeting en deeltjesgrootteverdeling zijn op basis van de CEPMEIP-inventarisatie (CEPMEIP, 2001) voor het jaar 1995. Tussen 1995 en 2000 zijn de CEPMEIP gegevens voor 1995 en die van EMEP voor 2000 lineair geïnterpoleerd. Vanaf 2000 zijn EMEP gegevens gebruikt. De emissiegegevens voor het buitenland zijn gegeven in tien internationale hoofdsectoren (SNAP 1 codes): Energy industries, Fugitive Emissions, Industry (energy), Industry processes, Other (energy), Other (non-energy), Road Transport, Other Transport, Waste, Agriculture. Tabel A.2 geeft een overzicht van de emissies gebruikt in deze studie voor de jaren 1995 tot 2003. De primair-fijnstofemissies in heel Europa zijn volgens deze cijfers met ruim 10% gedaald over de periode 1995-2003.

*Tabel A.2 Emissies primair fijn stof Europa (kton/jaar), bijdrage per sector tussen 1995 en 2003.*

	1995 <sup>1)</sup>	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002 <sup>2)</sup>	2003 <sup>3)</sup>
1: Energy industries	1477	1324	1170	1017	863	710	706	702	635
2: Fugitive Emissions	874	999	1125	1250	1375	1500	1509	1495	1498
3: Industry (energy)	852	779	706	634	561	488	491	488	463
4: Industry processes	995	996	996	996	997	997	1001	995	1005
5: Other (energy)	90	98	105	113	120	128	130	129	130
6: Other (non-energy)	142	117	92	66	41	16	16	16	2
7: Road Transport	415	430	444	458	472	487	487	477	486
8: Other Transport	528	481	434	388	341	294	294	291	277
9: Waste	34	62	89	117	145	172	172	168	140
10: Agriculture	410	409	407	406	405	404	406	402	445
<b>Total</b>	<b>5818</b>	<b>5694</b>	<b>5569</b>	<b>5445</b>	<b>5320</b>	<b>5196</b>	<b>5212</b>	<b>5163</b>	<b>5082</b>

<sup>1)</sup> emissiegegevens ook gebruikt voor 1993 en 1994

<sup>2)</sup> emissiegegevens ook gebruikt voor 2003 en 2004

<sup>3)</sup> emissiegegevens gebruikt voor 2005

### Precursors van secundair fijn stof Nederland

Emissiegegevens voor de jaren 1990 t/m 2001 voor zwaveldioxide, stikstofoxiden en ammoniak zijn op basis van een eerdere trendstudie uitgevoerd binnen het thema verzuring (De Ruijter et al., 2006). Emissiegegevens voor de overige jaren zijn conform de emissie registratie (Milieubalans, 2005). Tabel A.3 geeft de totaalcijfers van de Nederlandse emissies

van SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub> en NH<sub>3</sub> zoals gebruikt bij deze studie. Emissies van SO<sub>2</sub> en NO<sub>x</sub> door de internationale zeescheepvaart op het NCP staan apart in Tabel A.4.

*Tabel A.3 Emissie totalen voor SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub> en NH<sub>3</sub> (kton/jaar) voor Nederland zoals gebruikt voor de analyse 1990 t/m 2005 (exclusief emissies door zeescheepvaart).*

	1990	1991	1992	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003 <sup>1)</sup>
SO <sub>2</sub>	190	160	158	150	132	129	120	105	94	90	77	75	67	65
NO <sub>x</sub>	566	547	535	519	491	482	470	453	422	424	405	403	393	393
NH <sub>3</sub>	235	263	233	233	213	192	191	189	173	167	152	148	136	130

<sup>1)</sup> emissiegegevens ook gebruikt voor 2004 en 2005

### Precursors secundair fijn stof Europa

Emissiegegevens van landen buiten Nederland voor zwaveldioxide, stikstofoxiden en ammoniak zijn afkomstig van EMEP (WebDab, 2005). Deze database bevat emissiegegevens voor de EU-25 en de toetredingslanden voor nog een aantal landen dat van belang is voor de luchtkwaliteit in Europa zoals Rusland, Oekraïne en Wit-Rusland. Tabel A.4 geeft het totaal van de buitenlandse emissies van SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub> en NH<sub>3</sub> zoals gebruikt in deze studie. Zeescheepvaart is hierbij niet opgenomen.

*Tabel A.4 Emissie totalen voor SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub> en NH<sub>3</sub> (kton/jaar) voor heel Europa voor 1990-2003 (exclusief emissies door zeescheepvaart).*

	1990	1991	1992	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002 <sup>1)</sup>	2003 <sup>2)</sup>
SO <sub>2</sub>	38500	34200	30500	28400	25800	23900	21700	19800	18300	16400	15600 <sup>3)</sup>	15700	16800	16400
NO <sub>x</sub>	23200	22300	20900	19900	18800	18300	17900	17200	16800	16300	15700 <sup>4)</sup>	15700	16500	16300
NH <sub>3</sub>	8100	7800	7500	7100	6900	7000	6900	6800	6800	6700	6600	6600	6000	5700

<sup>1)</sup> emissiegegevens 2002 gebruikt voor 2003 en 2004

<sup>2)</sup> emissiegegevens 2003 gebruikt voor 2005

<sup>3)</sup> herziene emissiegegevens van 2000 (SO<sub>2</sub> = 15700 ipv 15600 kton) gebruikt voor 2001 en 2002

<sup>4)</sup> herziene emissiegegevens 2000 (NO<sub>x</sub> = 16100 in plaats van 15700 kton) gebruikt voor 2002

### Zeescheepvaart emissies

Van de Europese zeescheepvaartemissies worden alleen de emissies die plaatsvinden op de Noordzee meegenomen in de OPS-modelberekeningen. Tabel A.5 geeft de zeescheepvaartemissies van SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub> en PM<sub>10</sub> voor de Noordzee en als deel daarvan het Nederlands continentaal plat (NCP). Voor het NCP zijn de cijfers afkomstig van de Milieubalans (2005) en voor de rest van de Noordzee van het Marin en EMEP (WebDab, 2005) en de Milieubalans (2005). De Nederlandse bijdrage (op NCP) aan het totaal van de Noordzee-emissies van ligt voor NO<sub>x</sub>, PM<sub>10</sub> en SO<sub>2</sub> in de orde van 15%.

*Tabel A.5 Zeescheepvaart emissies van SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub> en PM<sub>10</sub> (kton/jaar) op de Noordzee en het Nederlands continentaal plat, NCP, (1990-2003).*

		1990	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003
SO <sub>2</sub>	Noordzee	454	454	454	454	454	454	454	454	477	454
	NCP	51	54	57	60	62	64	67	69	71	73
NO <sub>x</sub>	Noordzee	648	648	648	648	648	648	648	648	681	648
	NCP	89	102	102	102	102	102	116	120	123	127
PM <sub>10</sub>	Noordzee <sup>1)</sup>	54	55	55	56	56	56	56	57	57	57
	NCP	7	8	8	9	9	9	9	10	10	10

<sup>1)</sup> Primair-fijnstofemissies voor de Noordzee alleen vanaf 2002 obv EMEP.

## Bijlage B Trendbreuk regionale achtergrondstations

Met behulp van een tijdreeksmodel is een analyse gemaakt van het maandgemiddelde concentratieverloop tussen 1992 en 2005 voor een viertal stations op regionale achtergrondlocaties: Vredepeel (stationscode: 131), Philippine (stationscode: 318), Westmaas (stationscode: 437) en Wieringerwerf (stationscode: 538). Voor locatie zie Figuur 2.6. Op deze vier stations is er sprake van een sterk significante trendbreuk rond oktober 2003. De significantie is bepaald op basis van een analyse met een tijdreeksmodel en de onzekerheidsbanden rond de modelschattingen zijn meegewogen. De gemodelleerde grootte van de sprong per station is niet noodzakelijkerwijs hetzelfde als de sprong in de gemeten concentraties. Het model is vooral gericht op het bepalen van significantie van een sprong.

Voor deze analyse is een tijdreeksmodel uit de klasse van de zogenaamde structurele tijdreeksmodellen toegepast (zie Visser 2004a,b en 2005). Er is een model geschat voor fijnstofmetingen op regionale achtergrondlocaties. Het model verklaart maandgemiddelde  $PM_{10}$ -concentraties op tijdstip  $t$  ( $y_t$ ) uit variaties in vier meteorologische variabelen, een interventievariabele, een trend en een niet-verklaard deel ('de ruis').

De meteo-variabelen zijn geselecteerd uit een serie van 20 variabelen verkregen via Regressieboom-analyse. Dit is de methode die is gebruikt in hoofdstuk 3 om meetseries te corrigeren voor meteo-gerelateerde variaties (Visser en Noordijk, 2002). Deze methode is daartoe zeer geschikt omdat ook sterk niet-lineaire verbanden tussen  $y_t$  en een reeks van verklarende variabelen  $x_1, \dots, x_{20}$  gevonden kunnen worden. De Regressieboom-analyse geeft echter geen onzekerheidsbanden rond de schattingen. Bij de analyse van de significantie van een sprong is onzekerheidskennis een vereiste. Daarom is met de vier best verklarende meteo-variabelen per station een structureel tijdreeksmodel geschat waarbij de onzekerheden zijn verwerkt.

Voor Vredepeel zijn de best verklarende meteo-variabelen:

- luchttemperatuur ( $T_{gem}$ );
- neerslag hoeveelheid ( $N$ );
- windsnelheid ( $V_{wind}$ );
- het aantal dagen per maand met oostenwind (windrichting in de sector 60-120 graden) ( $W_{oost}$ ).

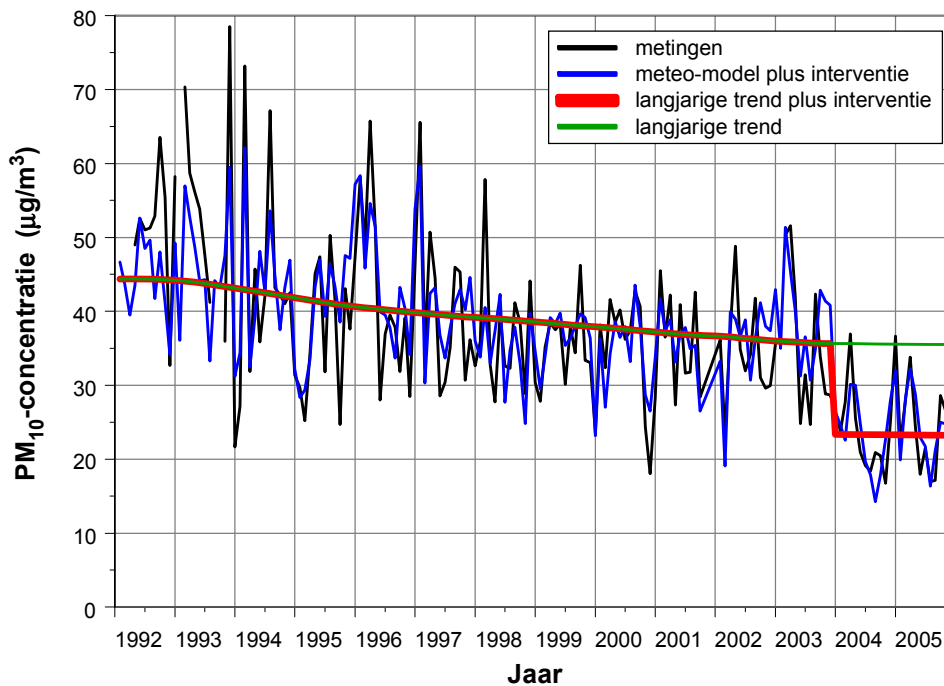
Omdat het bekend is dat er instrumentele veranderingen hebben plaatsgevonden in het najaar van 2003 (zie Bijlage C), is er nog een verklarende variabele opgenomen. Deze variabele,  $I_t$ , is binair: '0' voor alle maanden tot en met november 2003, en '1' daarna.  $I_t$  wordt ook wel een interventievariabele genoemd. Het model heeft de vorm van een multiple regressie-model en ziet er als volgt uit:

$$y_t = trend_t + \alpha_{1,t} \times T_{gem,t} + \alpha_2 \times N_t + \alpha_3 \times V_{wind,t} + \alpha_4 \times W_{oost,t} + \alpha_5 \times I_t + ruis \quad [eq. 1]$$

waarbij de weegfactoren  $\alpha_{1-5,t}$  zijn bepaald per station met behulp van de Regressieboom-analyse.

De resultaten voor Vredepeel zijn samengevat in Figuur B.1. De figuur geeft de maandgemiddelde  $PM_{10}$ -concentraties ( $y_t$ , zwarte lijn), de trend (groene lijn), de trend plus invloed interventie (trend<sub>t</sub> +  $\alpha_5 \times I_t$ , rode lijn) en het totaal geschatte model, ofwel:

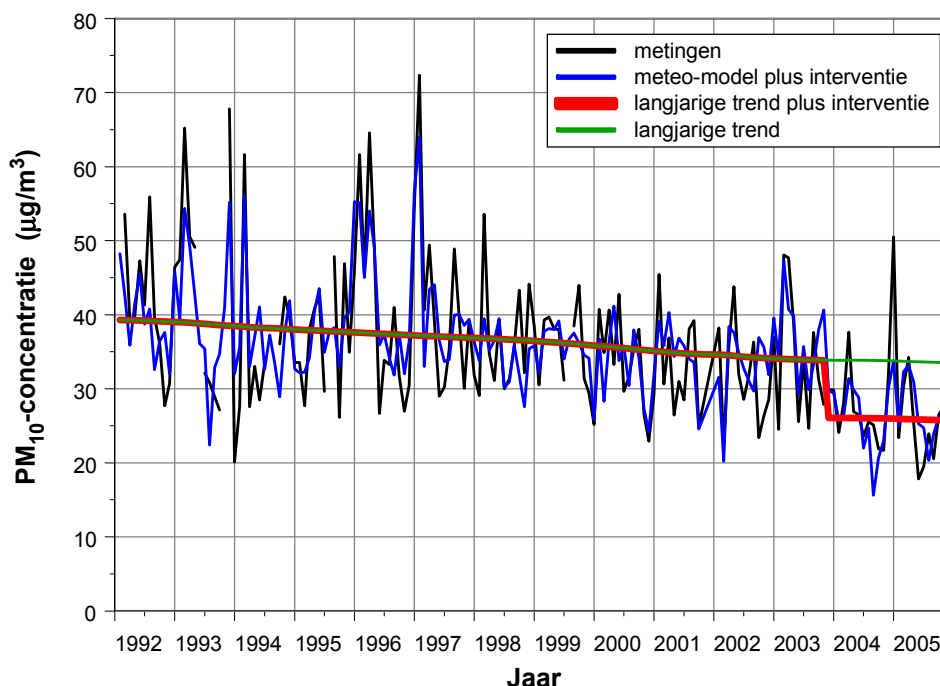
$$\text{trend}_t + \alpha_{1,t} \times T_{\text{gem},t} + \alpha_2 \times N_t + \alpha_3 \times V_{\text{wind},t} + \alpha_4 \times W_{\text{oost},t} + \alpha_5 \times I_t \text{ (de blauwe lijn).}$$



*Figuur B.1 Maandgemiddelde  $PM_{10}$ -concentraties op Vredepeel gemeten en berekend volgens [eq. 1].*

Het tijdreeksmodel geeft ook de onzekerheden in de parameters  $\alpha_1$  tot en met  $\alpha_5$ . De weegfactor  $\alpha_5$  heeft de waarde  $-12.3 \pm 4.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$  en is daarmee sterk statistisch significant (de grenzen geven 2-sigma betrouwbaarheden voor  $\alpha_5$ ). Omdat de sprong in de  $PM_{10}$ -metingen gelijk is aan  $\alpha_5 \times I_t$ , is de sprong in metingen na november 2003 gelijk aan  $-12.3 \pm 4.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (2-sigma-grenzen). Alle variabelen te samen verklaren 63% van de variaties in de metingen. Zeker over de laatste 5 jaar is het meteo-model zeer goed in staat om de maandgemiddelde  $PM_{10}$ -concentraties te volgen. De sprong na oktober 2003 komt er daarom ook zo sterk significant uit.

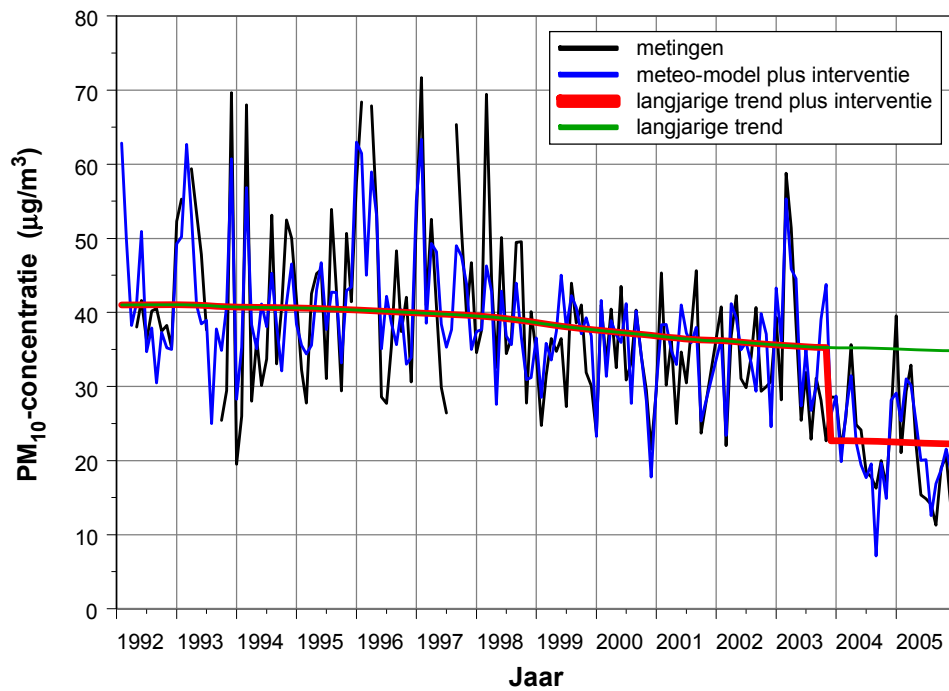
Een ander voorbeeld is Westmaas (stationscode 437). Voor dit station zijn dezelfde meteovariabelen geselecteerd als voor Vredepeel. De totaal verklaarde variantie is 61%. De grootste invloed heeft de gemiddelde maandtemperatuur (20%), daarna het aantal dagen oostenwind (17%). Zie Figuur B.2. De sprong in Westmaas is kleiner dan die voor Vredepeel, maar ook nu sterk significant:  $-7.8 \pm 3.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (2-sigma-grenzen).



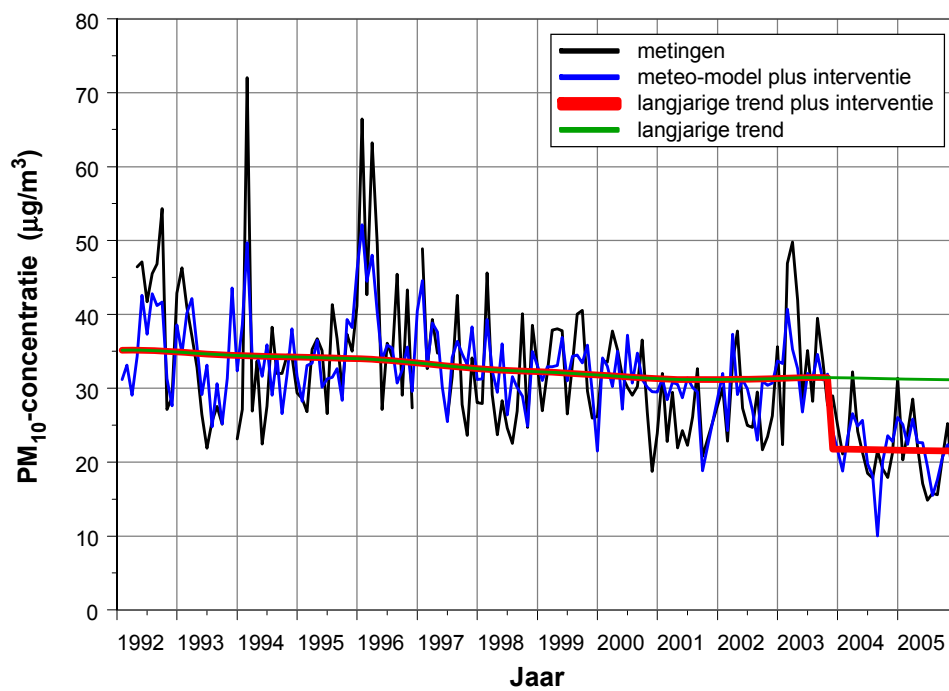
Figuur B.2 Maandgemiddelde  $PM_{10}$ -concentraties op Westmaas gemeten en berekend volgens [eq. 1].

Een derde voorbeeld is Philippine (stationscode 318). Voor dit station zijn de volgende meteovariabelen geselecteerd: maandgemiddelde temperatuur, totale neerslag, luchtdruk en oostenwind. De totaal verklaarde variantie is 66%. De grootste invloed heeft het aantal dagen met oostenwind (16%), daarna de temperatuur (16%). Zie Figuur B.3. De sprong in Philippine is vergelijkbaar met die voor Vredepeel:  $-12.6 \pm 4.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (2-sigma-grenzen).

Een laatste voorbeeld is Wieringerwerf (stationscode 538). Voor dit station zijn de volgende meteovariabelen geselecteerd: maandgemiddelde temperatuur, totale neerslag, aantal dagen met wind uit NNO-richtingen en totale neerslag in de afgelopen 3 maanden. De totaal verklaarde variantie is 56%. De grootste invloed heeft de temperatuur (24%), daarna de neerslag (20%). Zie Figuur B.4. De sprong in Wieringerwerf is iets kleiner dan die voor Vredepeel en Philippine:  $-9.6 \pm 3.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (2-sigma-grenzen).



Figuur B.3 Maandgemiddelde PM<sub>10</sub>-concentraties op Philippine gemeten en berekend volgens [eq. 1].



Figuur B.4 Maandgemiddelde PM<sub>10</sub>-concentraties op Wieringerwerf gemeten en berekend volgens [eq. 1].



## Bijlage C      Uitwerking hypothese

De meest waarschijnlijke verklaringshypothese voor de trendbreuk in de fijnstofconcentraties in het landelijk gebied is de wijziging in de voorverwarmingsinstelling bij het nieuwe type meetinstrument eind 2003. Vóór de wijziging was namelijk nog vastgesteld dat de resultaten van het oude- en nieuwe type meetinstrument gelijkwaardig waren. De relatief kleine wijziging heeft waarschijnlijk geleid tot een onverwacht grote toename in de hoeveelheid fijn stof, die verdampt tijdens de voorverwarming van het luchtmonster. Dat de trendbreuk zich vooral op stations in het landelijk gebied heeft gemanifesteerd, komt waarschijnlijk omdat het nieuwe type meetinstrument om praktische redenen bijna alleen op regionale achtergrondstations is geplaatst.

De verdampingstoename bij het nieuwe type meetinstrument, als gevolg van de wijziging in de voorverwarmingsinstelling, is mogelijk versterkt door specifieke omstandigheden in het landelijk gebied. De hoeveelheid vluchtige bestanddelen in fijn stof wordt vooral bepaald door de temperatuur, relatieve vochtigheid en ammoniumnitraatconcentratie.

Deze grootheden verschillen waarschijnlijk ruimtelijk zodanig dat de hoeveelheid vluchtige bestanddelen in fijn stof in het landelijk gebied groter is dan in de stedelijke omgeving.

De hoeveelheid water op deeltjes en in de lucht speelt in het verdampingsproces mogelijk een sturende rol.

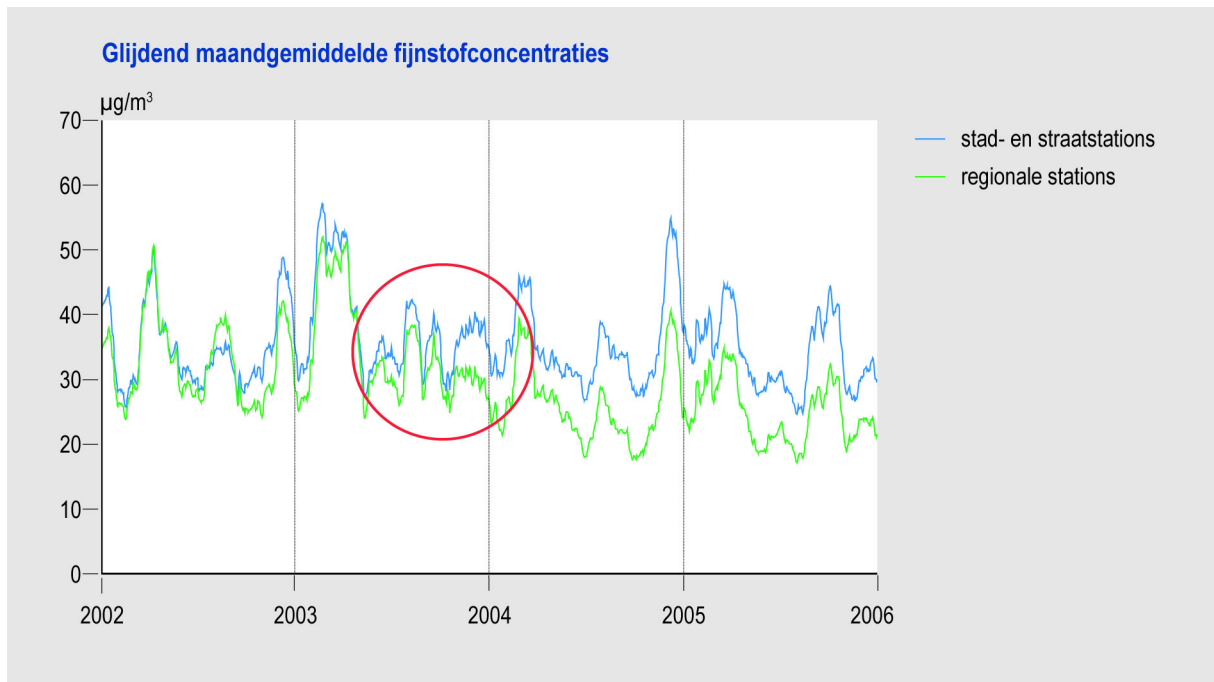
Deze hypothese is gebaseerd op:

- bevindingen op basis van LML-meetgegevens van fijn stof;
- feiten rond het LML-fijnstofmeetnet;
- aanwijzingen voor een verklarend mechanisme.

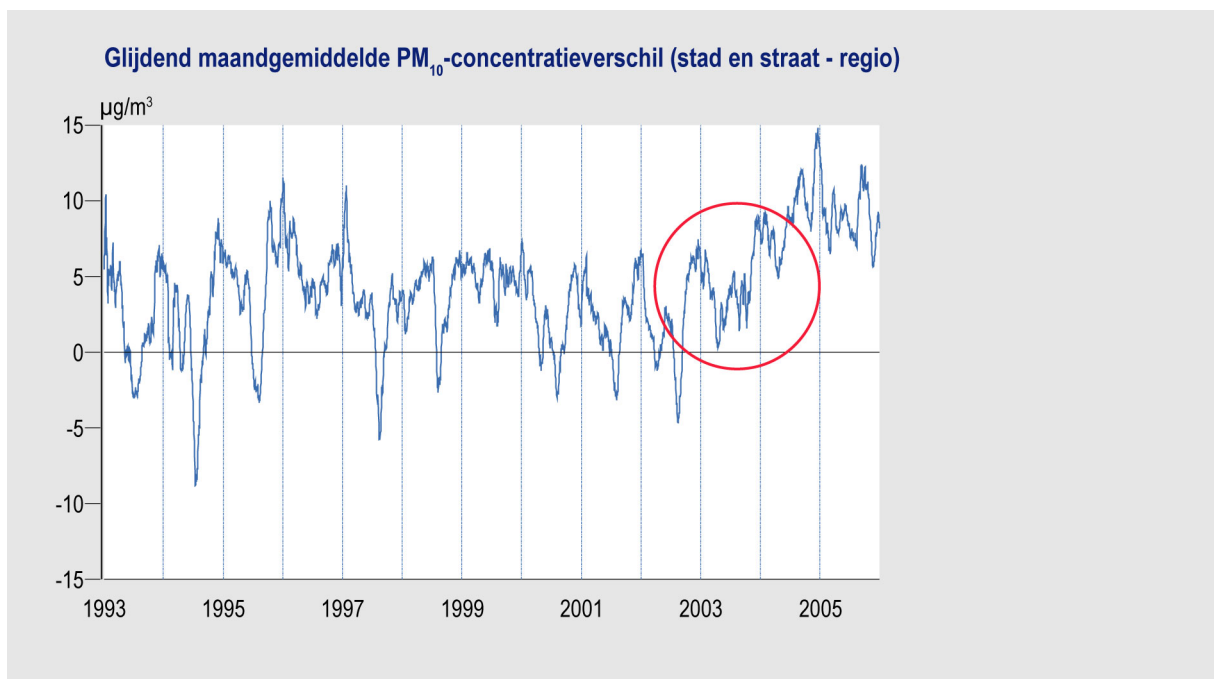
### **Bevindingen op basis van LML-meetgegevens van fijn stof**

- Fijnstofconcentraties in het landelijk gebied dalen eind 2003 vrij plotseling met gemiddeld 4 tot 5  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  (Figuur C.1).
- Tegelijkertijd neemt het verschil tussen fijnstofconcentraties in landelijk gebied en de stedelijke omgeving toe. In de stedelijke omgeving wordt namelijk geen daling waargenomen (Figuur C.1 en C.2).
- Het jaarverloop van het verschil tussen fijnstofconcentraties in het landelijk gebied en de stedelijke omgeving verandert sterk (Figuur C.3).

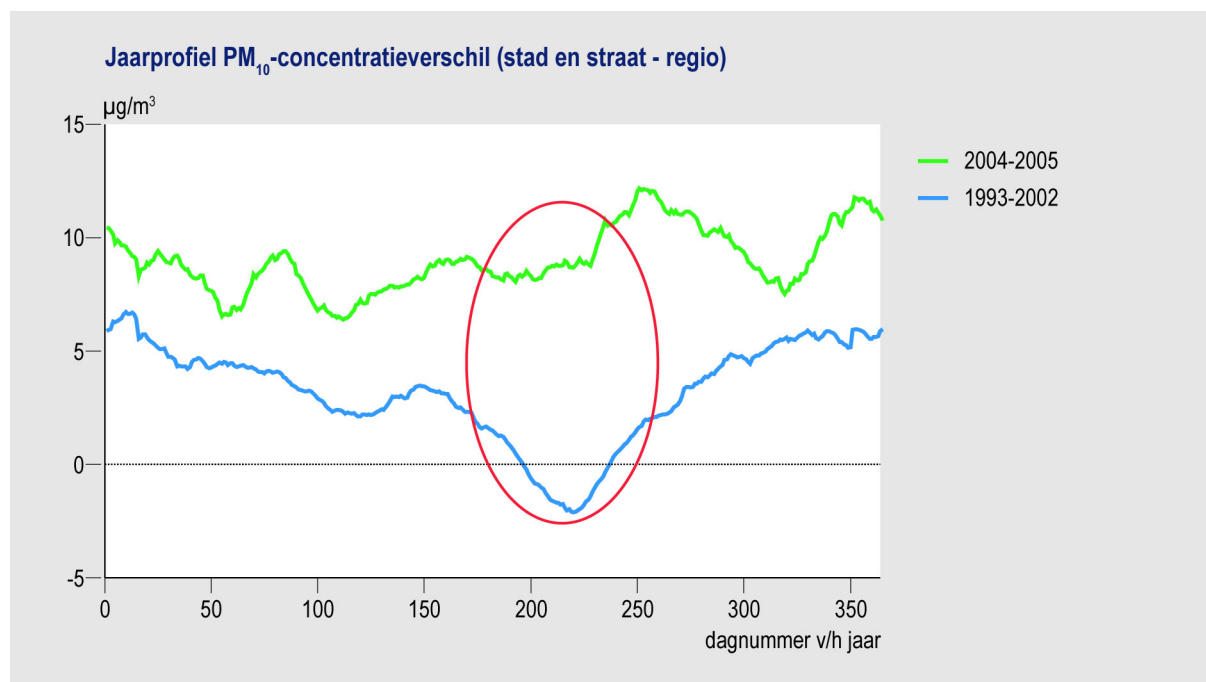
Concentraties op regionale achtergrondstations hebben tot en met 2002 een verschil van gemiddeld ongeveer 2-5  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  met het concentratieniveau in de stedelijke omgeving. In het najaar van 2003 neemt dit verschil vrij plotseling toe door een daling op de regionale achtergrondstations (Figuur C.1 en Figuur C.2). Het verschil handhaaft zich met een gemiddelde van 8-10  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . Tegelijkertijd zijn de fijnstofconcentraties na de daling beter in overeenstemming met fijnstofconcentraties op Duitse stations in het grensgebied met Nederland (zie paragraaf 3.4).



*Figuur C.1 Glijdend maandgemiddelde fijnstofconcentraties. Gemiddelde voor stations in de stedelijk omgeving (stad- en straatstations) en regionale achtergrondstations (regionale stations) voor de periode 2002-2005. In de rode cirkel is waarneembaar dat de 'regio'-concentraties vrij abrupt lager worden ten opzichte van de concentraties op 'stad- en straatstations'. Deze verlaging is blijvend.*



*Figuur C.2 Het verschil tussen de gemiddelde concentratie in de stedelijke omgeving (stad en straat) en regionale achtergrondstations (regio). In de rode cirkel is waarneembaar dat het verschil tussen 'stad&straat'- en 'regio'-concentraties niet meer het gewone jaarpatroon volgt maar toeneemt tot gemiddeld 8-10 µg/m<sup>3</sup>. Deze verandering is blijvend.*



*Figuur C.3 Gemiddelde seizoensverloop van het verschil tussen de concentratie in de stedelijke omgeving versus het landelijke gebied voor de jaren 1993-2002 (blauwe lijn) en voor de jaren 2004 en 2005 (gele lijn) op basis van glijdend maandgemiddelde concentraties. De rode ellips geeft aan dat het grootste verschil in het seizoensverloop zich manifesteert in de zomermaanden rond augustus.*

Het verschil tussen de concentratie in de stedelijke omgeving en die in het landelijk gebied varieert tussen  $\pm 10 \mu\text{g}/\text{m}^3$  tussen 1992 en 2002 (Figuur C.2, glijdend maangemiddelde). Dit betekent dat de *gemeten* concentraties op regionale achtergrondlocaties gedurende het jaar gemiddeld tot  $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$  lager maar ook tot  $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$  hoger zijn geweest dan de gemeten concentraties in de stedelijke omgeving.

Het algemene patroon over de periode 1992-2002:

- in de winter, lente en herfst zijn de concentraties in het landelijk gebied lager dan die in de stedelijke omgeving;
- in de zomer keert deze situatie om en zijn de concentraties in het landelijk gebied juist hoger dan die in de stedelijke omgeving (Figuur C.2 en Figuur C.3).

Dit concentratiegedrag is niet reëel en het patroon suggereert een afhankelijkheid die gerelateerd is aan de omgevingstemperatuur. Het verschil tussen de concentraties in landelijk gebied en stedelijke omgeving en het seizoensverloop veranderen significant in het najaar van 2003 (Figuur C.2 en Figuur C.3). Na 2003 wordt het  $\text{PM}_{10}$ -concentratieverschil tussen het landelijk gebied en stedelijke omgeving groter en de amplitude van het jaarverloop kleiner (Figuur C.3). Tot 2003 is het verschil gemiddeld ongeveer  $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$  ( $-2.7$  tot  $6.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) en voor 2004 en 2005 is het verschil gemiddeld ongeveer  $9 \mu\text{g}/\text{m}^3$  ( $6.4$  tot  $13 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ).

### **Feiten rond het fijnstofmeetnet**

Er zijn wijzigingen doorgevoerd in het fijnstofmeetnet om het in overeenstemming te brengen met de EU-voorschriften (EU, 2001a; EU 2001b). De wijzigingen staan puntsgewijs samengevat:

1. De configuratie van het fijnstofmeetnet is ingrijpend gewijzigd in de loop van 2003.
2. Er heeft geleidelijke uitbreiding van het meetnet plaatsgevonden van 20 naar 39 stations
3. De meetmethode is geconformeerd aan de meetregeling (EU, 2001a) behorend bij de EU-richtlijn (EU, 2001b). De meetregeling bepaalt dat de temperatuur van het te bemonsteren luchtvolume gelijk moet zijn aan de omgevingtemperatuur in plaats van standaard temperatuur. Dit heeft tot een wijziging geleid in het volume en daarmee in de gemeten concentratie (deeltjes per volume). De hier genoemde temperatuur staat los van de verwarming van de lucht tijdens de voorbehandeling van de lucht vóór filtrage.
4. Bij automatische fijnstofmetingen is voorverwarming van de lucht noodzakelijk om versturende werking van water op het filter uit te sluiten. Tijdens de voorverwarming verdampen naast water mogelijk ook andere fijnstofbestanddelen (vluchtige fijnstofbestanddelen als ammoniumnitraat). Deze deeltjesfractie is gevoelig voor de temperatuur en dus voor de specifieke wijze van voorverwarmen.
5. De EU verplicht de gebruikers van automatische monitoren in de meetregeling de vergelijkbaarheid aan te tonen met referentieapparatuur. Deze vergelijking levert de zogenaamde correctiefactor, waarmee de gegevens van automatische monitoren worden gecorrigeerd voor opgetreden verdampingsverliezen.
6. Tot dusver wordt een correctiefactor gebruikt die constant is in ruimte en tijd. In 2006 is, in afwachting van de eindresultaten van de herijkingscampagne, de EU-advieswaarde 1.3 toegepast op de gehele meetreeks (in plaats van 1.33).
7. Bij de uitbreiding is een nieuw type bèta-stof-meetinstrument ingezet.
8. Het nieuwe type meetinstrument heeft een andere wijze van voorbehandeling (verwarming) van de bemonsterde lucht ten opzichte van het oude type. De voorbehandeling bij het oude type bestaat eruit dat de lucht wordt voorverwarmd door de aanzuigleiding te verwarmen tot 50°C. Dit heeft als gevolg dat de temperatuur op het filter afhankelijk is van de buitentemperatuur. Bij de nieuwe meetapparatuur is dit gewijzigd door een voorverwarming te realiseren met een constant verschil tussen de buitentemperatuur en de luchttemperatuur bij het filter.
9. Het verschil tussen de buitentemperatuur en de luchttemperatuur bij het filter is initieel ingesteld op +5°C.
10. Equivalentie van het oude en nieuwe type meetinstrument met de verschillende voorbehandelingswijze is aangetoond.
11. De meetinstrumenten van het nieuwe type zijn om praktische redenen vooral op regionale achtergrondlocaties geplaatst.
12. In het najaar van 2003 is de voorverwarmingsinstelling bij het nieuwe type meetinstrument gewijzigd (van +5°C naar +10°C).

### **Aanwijzingen voor een verklarend mechanisme**

De volgende punten maken het samen waarschijnlijk dat de wijziging in voorverwarmingsinstelling bij het nieuwe type meetinstrument de hoofdoorzaak is van de waargenomen trendbreuk op regionale achtergrondstations:

- Het moment waarop de wijziging genoemd in punt 12 is uitgevoerd (oktober/november 2003) komt overeen met het moment waarop de concentraties op regionale achtergrondstations vrij plotseling dalen (Figuur C.1).
- Wijzigingen in de voorverwarmingsinstelling kunnen een (vaak niet-lineair) effect hebben op de gemeten PM<sub>10</sub>-concentratie.
- Vóór de specifieke wijziging is de equivalentie van de twee typen meetinstrumenten nog vastgesteld (hierna niet meer).
- Het nieuwe type meetinstrument is vrijwel alleen geplaatst op regionale achtergrondlocaties (punt 11).

De gevoelheden van het nieuwe type meetinstrument voor de omgevingsfactoren zijn nog grotendeels onbekend. Voor het oude type meetinstrument is al veel onderzocht (Vrins, 1996; Van Arkel et al., 2002a; 2002b; Van Putten et al., 2002a, 2002b). Uit deze onderzoeken is de invloed van een aantal omgevingsfactoren naar voren gekomen. De belangrijkste hiervan zijn water (op deeltjes en in de lucht), de omgevingstemperatuur en de ammoniumnitraatconcentratie die onderling gekoppeld zijn. Maar ook de PM<sub>10</sub>-samenstelling in het algemeen lijkt van invloed te zijn op de gemeten concentratie.

### **Water**

Van Arkel et al. (2002a) laten bij gecontroleerde omstandigheden zien dat PM<sub>10</sub>-concentraties ongeveer 3-4 µg/m<sup>3</sup> hoger zijn bij vochtige lucht (RH = 90%) ten opzichte van droge lucht (stofvrije, droge perslucht). Deze 3 à 4 µg/m<sup>3</sup> is een indicatie voor de hoeveelheid water die zich op deeltjes bevindt in de buitenlucht. Bij voorverwarming, die is toegepast bij instrumenten van het oude type (aanzuigleiding op 50°C), neemt deze hoeveelheid zelfs toe met 25% tot 5 µg/m<sup>3</sup> bij dezelfde luchtvochtigheid. Deze waarnemingen hebben potentieel belangrijke consequenties. Verwarming behorend bij het 'oude' type meetinstrument kan zo leiden tot hogere concentraties dan in de buitenlucht, omdat er meer waterdamp is opgenomen.

Bovendien kan door een toename van de hoeveelheid water op een deeltje ook de condensatie van gassen op deeltjes toenemen. Het laatste zal in gebieden met hoge concentraties van snel oplosbare gassen als ammoniak kunnen leiden tot significante verhoging van de gemeten fijnstofconcentratie boven op de niet-bedoelde gewichtstoename door het water.

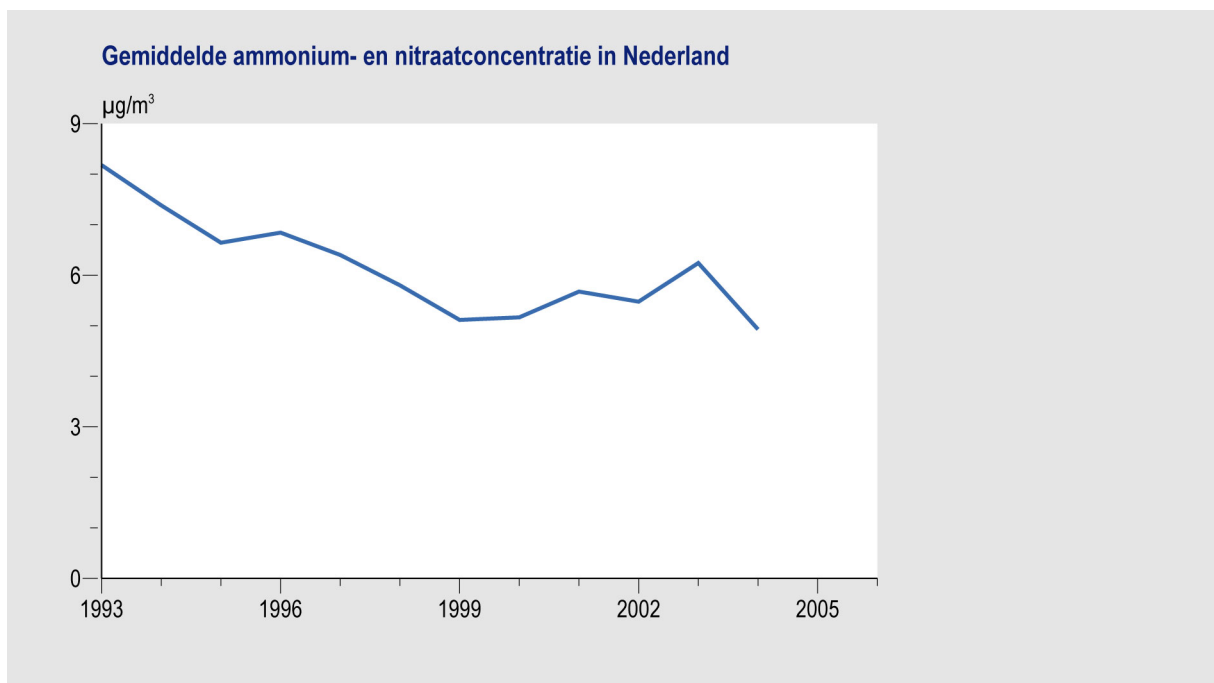
Verder blijkt uit de internationale literatuur blijkt dat water een belangrijke rol speelt bij de fysische en chemische eigenschappen van deeltjes. Daarmee speelt water ook een belangrijke rol het meten van de fijnstofconcentratie (Quinn en Coffman, 1998; Gehrig et al., 2005; Hueglin et al., 2005; Sciare et al., 2005; Tsyro, 2005). Ook is gebleken dat de aanwezigheid van water op deeltjes een beperkende factor vormt voor de verdamping van de overige vluchtige bestanddelen. Oftewel het merendeel van de vluchtige fijnstoffractie kan pas verdampen als het water op de deeltjes is verdwenen door voorverwarming.

De invloed van temperatuur en vocht op automatische fijnstofmetingen wordt genoemd in de EU uitvoeringsvoorschriften (EU, 2001a) van de referentiemetingen. De precieze rol van vocht en temperatuur is echter nog onvoldoende begrepen en daarom moeilijk te identificeren in de meetresultaten. De relatief grote onzekerheidsmarge van 25% (2-sigma), die wordt toegestaan in de metingen van fijn stof (EU, 1999), is een afspiegeling van de bestaande onzekerheden. Of de 25% daarmee de mogelijke artefacten dekt is niet bekend.

### Ammoniumnitraat

Voorverwarming behorend bij het oude type meetinstrument geeft onder gecontroleerde omstandigheden een verdamping van minder dan de helft van het vluchtige ammoniumnitraat (Van Arkel et al., 2002a). Metingen van ammonium en nitraat in het LML, verricht met de Low Volume Sampler (LVS, zonder voorverwarming), laten voor Nederland een gemiddelde zien voor de ammoniumnitraatconcentratie van 5 à 6  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  (Figuur C.4). Bij het oude type meetinstrument verdampt dus ongeveer 2 à 3  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ .

Totale verdamping van ammoniumnitraat dat mogelijk optreedt bij het nieuwe type meetinstrument, leidt dan gemiddeld tot een 3  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  lagere  $\text{PM}_{10}$ -concentratie. Andere vluchtige bestanddelen kunnen dit effect nog vergroten al naar gelang hun bijdrage op een specifieke locatie. Zo is de fractie vluchtige organische verbindingen waarschijnlijk alleen substantieel in de stedelijke omgeving (Visser et al., 2001).



*Figuur C.4 Gemiddelde ammonium- en nitraatconcentratie ( $\text{NH}_4^+ + \text{NO}_3^-$ ) in Nederland voor de periode 1993-2004, gebaseerd op jaargemiddelde concentraties gemeten met zeven meetinstrumenten (LVS) op locaties in het landelijk gebied. Bron: LML.*

Tot slot, een sluitend mechanisme dat de waarnemingen verklaart is nog niet gevonden. Bovendien is er nog een aantal onbeantwoorde vragen, waaronder:

- Wat bepaalt dat de trendbreuk zich niet op alle regionale achtergrondstations even sterk heeft gemanifesteerd?
- Waarom is er bij de enkele stadsstations die zijn uitgerust met het nieuwe type meetinstrument niet duidelijk sprake van een trendbreuk?
- Wat is de oorzaak van de grote schommelingen in het concentratieverschil tussen het landelijk gebied en de stedelijke omgeving (Figuur C.2)?

De factoren die hierbij mogelijk een oorzakelijke rol spelen zijn:

- De voorverwarmingsinstelling zelf, per type meetinstrument. Elk type voorverwarming heeft een eigen verdampingskarakteristiek. De gemeten PM<sub>10</sub>-concentratie is daarmee afhankelijk van de temperatuur, de relatieve vochtigheid, en de PM<sub>10</sub>-samenstelling waaronder de hoeveelheid water op deeltjes. Deze afhankelijkheden zijn tot dusver alleen voor het oude type meetinstrument in enigermate onderzocht.
- Verschillen *per locatie* in temperatuur, relatieve vochtigheid, en PM<sub>10</sub>-samenstelling waaronder de hoeveelheid water op deeltjes. De PM<sub>10</sub>-gradiënt, gemeten met een zelfde type meetinstrument kan worden vertekend door de effecten van ruimtelijke en temporele gradiënten in bijvoorbeeld de temperatuur of relatieve vochtigheid op de metingen. Hoe groot deze versturende effecten zijn of zijn geweest in Nederland is nog onbekend.





## Bijlage D      Uitwerking alternatieve kalibratie

Een alternatieve kalibratie is gebruikt voor verkenningen van fijn stof voor de jaren 2010, 2015 en 2020. De methode in drie stappen is in kort geschetst in paragraaf 4.2 en is in deze bijlage verder uitgewerkt.

### D.1 Stap 1

De uitgangsgegevens zijn samengevat in Figuur 2.7 (paragraaf 2.4). De bovenste 10 curves geven de gemeten jaargemiddelde concentraties, de onderste 10 curves de OPS-concentraties op dezelfde 10 locaties. Hiermee zijn dus  $LML_{i,j,t}$  en  $OPS_{i,j,t}$  bekend voor de 10 regionale stations en de historische periode 1993 – 2005.

### D.2 Stap 2

De grootheid  $OBP_{i,j,t}$  op de tien locaties (i,j) wordt eenvoudig bepaald uit de relatie  $OPB_{i,j,t} = LML_{i,j,t} - OPS_{i,j,t}$ , met t lopend van 1993 tot en met 2005. Hoewel deze operatie simpel is, maken we in het vervolg wel twee belangrijke aannames: de reeksen  $LML_{i,j,t}$  en  $OPS_{i,j,t}$  bevatten *geen systematische meetfouten, respectievelijk modelleerfouten*.

#### *Tijdreeksanalyse*

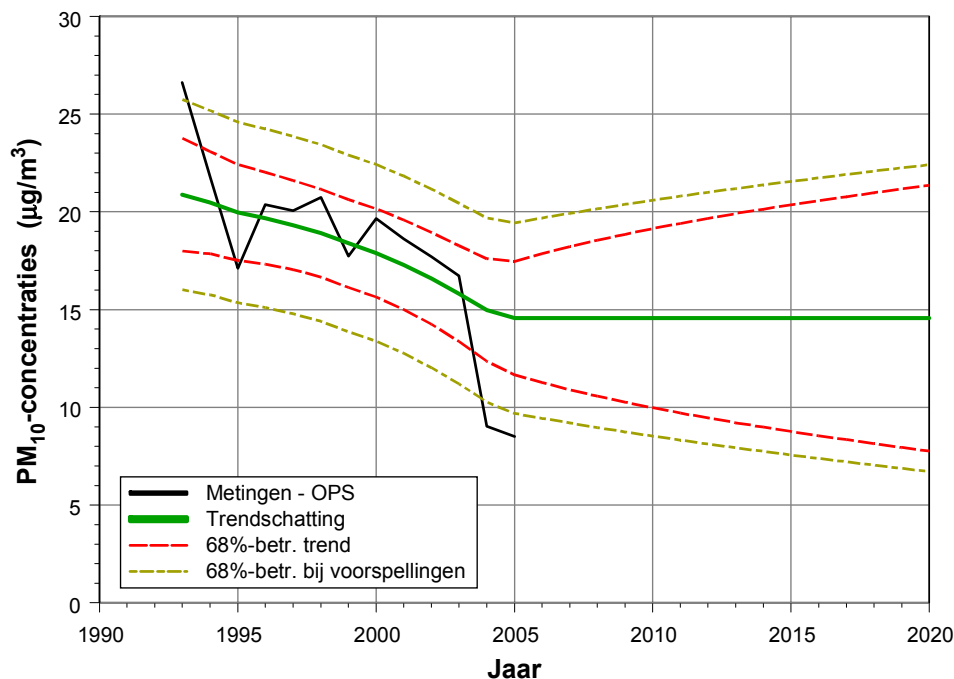
De waarden  $OBP_{i,j,t}$  volgen eenvoudig uit de reeksen getoond in Figuur 2.7 door concentraties en OPS-waarden af te trekken. De 10  $OBP_{i,j,t}$ -reeksen zijn getoond in Figuur 2.8.

De meetruis en de invloed van meteorologie is bepaald door het schatten van een trendmodel uit de klasse van structurele tijdreeksmodellen via het zogenaamde Kalmanfilter. Zie Visser (2004a, 2004b) voor details. Het model voor een station op locatie (i,j) ziet er als volgt uit:

$$OBP_{i,j,t} = \text{trend}_{i,j,t} + \text{ruis}_{i,j,t}$$

Dit model levert de trend, de onzekerheid in de trend per jaar en de onzekerheid wanneer in een jaar een voorspelling wordt gedaan voor de concentratie. Een voorbeeld van trendanalyse is gegeven voor station Vredepeel (131) in Figuur D.1. De onzekerheidsbanden zijn breed vanwege het kleine aantal meetjaren (13). Verder worden de onzekerheidsbanden in de periode 2006-2020 breder naarmate er verder in de toekomst een voorspelling wordt gedaan.

N.B.: er zijn vier verschillende trendmodellen getest en het zogenaamde stochastische-niveau-model wordt als beste geselecteerd. Dit model kan veranderingen van het trendniveau over de tijd modelleren en heeft als voorspelling voor de toekomst de laatste berekende trendwaarde in 2005. Gezien de onzekerheden is het niet opportuun om een trendmodel te kiezen waarbij de trendvoorspelfunctie zou dalen in de toekomst.



Figuur D.1 Tijdreeksmodel voor de OBP-waarden van station Vredepeel. De smalle onzekerheidsbanden zijn 68%-onzekerheidsgrenzen van de trend. De brede onzekerheidsbanden geven dezelfde grenzen voor een voorspelling van de OBP-concentratie in een willekeurig jaar. Merk op dat de afwijkende lage concentraties in de laatste twee jaar (2004 en 2005) de trendschatting verlagen en de breedte van de onzekerheidsbanden vergroten.

### Interpolatie van concentraties via Kriging

Er bestaan vele methoden om metingen te interpoleren naar plaatsen waar niet gemeten is. Er is hier gekozen voor de geostatistische methode van Kriging. Kaluzny et al. (1998) geven details over deze methode en bijbehorende software. Het voordeel van de Kriging-benadering is dat naast interpolatie naar het 5×5-km<sup>2</sup>-grid waarop ook de OPS-waarden worden berekend, we onzekerheden in de interpolaties worden berekend. Hoe verder uit de buurt van meetstations des te groter worden de onzekerheden.

Voor het schatten van een Kriging-model moeten een drietal keuzes worden gemaakt:

1. Welk soort Kriging-model? *Universal Kriging* kan een hellend vlak over Nederland meemodelleren. *Ordinary Kriging* gaat uit van constante concentraties over heel Nederland.
2. De ruimtelijke correlatie in de metingen wordt gemodelleerd met een zogenaamd *variogram*. Dit variogram geeft aan in hoeverre metingen gecorreleerd zijn als functie van hun onderlinge afstand. Er bestaat een aantal variogrammodellen. Daarvan moet er een worden gekozen.

3. Bij een gekozen Kriging-model en variogram-model is ook nog nodig voor het variogram een drietal parameters te kiezen: de *range*, de *sill* en de *nugget*. De *range* is de maximale afstand waarbinnen concentraties nog gecorreleerd zijn. De *nugget* is de variantie van de meetruis op de verschillende stations (voor elk station is de meetruis dezelfde). De som van *nugget* en *sill* geeft de bovengrens aan de variantie van de interpolatievoorspelfouten over de kaart gezien.

Omdat 10 stations te weinig zijn om bovenstaande keuzes op de baseren, zijn voor de jaren 2004 en 2005 alle beschikbare regionale stations genomen. Dat zijn de 17 regionale stations getoond in Figuur 2.6. Uit de analyse voor deze jaren blijkt dat er weliswaar een gradiënt over Nederland bestaat, maar dat deze statistisch niet significant is. Daarom is net als in hoofdstuk 2 uitgegaan van een constant concentratievlak over Nederland en is het *Ordinary-Kriging*-model gebruikt. Verder bleek het zogenaamde sferisch variogrammodel goed te voldoen bij een *range* van 60 tot 70 km. We besluiten om deze keuzes te handhaven voor de situatie met de 10 regionale stations.

De varianties uit de tijdreeksmodellen zijn gecorrigeerd voor de ruimtelijke afhankelijkheid tussen de stations. Deze wordt veroorzaakt door de meteorologische component die in elk van de residureeksen min of meer gelijkmatig aanwezig is. Uit hoofdcomponentenanalyse (PCA) is gebleken dat circa 57% van de residuvariantie toe te kennen is aan meteorologische condities die gelijk zijn op alle stations. De *nugget* uit de Kriging-modellen is daarom benaderd door de variantie uit de tijdreeksmodellen te corrigeren met een factor 0.43.

## Resultaten

Bij toepassing van *Ordinary Kriging* blijkt de meetruis per station (de *nugget*) dermate groot te zijn dat de Kriging-standaarddeviatie per gridpunt constant wordt over heel Nederland. Het is dus niet zo dat grids dichtbij een meetpunt nauwkeuriger zijn dan grids verder verwijderd van een meetstation. Daarmee wordt de fout in de gemiddelde trendwaarde in de toekomstjaren benaderd door voor een toekomstjaar (2010, 2015, 2020) de trendvoorspelfout voor elk station te bepalen en vervolgens te middelen over de 10 stations (dit zijn voor Vredepeel de smalle onzekerheidsbanden in Figuur D.1). Dit levert voor de jaren 2010, 2015 en 2020 respectievelijk de standaarddeviaties 2.7, 3.4 en 4.0  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ .

Als voor een bepaald toekomstjaar een voorspelling wordt gemaakt, dan worden de fouten veel groter (de brede onzekerheidsbanden in Figuur D.1), vooral door variabiliteit in meteorologie van jaar tot jaar. De waarden voor 2010, 2015 en 2020 zijn nu gemiddeld over de 10 stations, respectievelijk, 4.4, 4.9 en 5.3  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ .

Het constante Kriging-vlak voor Nederland voor de jaren 2005-2020 bedraagt **16.3  $\mu\text{g}/\text{m}^3$** . Deze waarde ligt hoger dan gevonden voor de hoofdvariant gebruikt bij de GCN-verkenningen (hoofdstuk 2). Bij de hoofdvariant ligt voor OBP het constante vlak op ongeveer **2  $\mu\text{g}/\text{m}^3$**  lager. De verklaring is gelegen in het feit dat de metingen in de periode 1993-2003 hoger liggen dan in de jaren 2004 en 2005. De hoofdvariant betreft deze hogere waarden niet en komt daardoor logischerwijs lager uit in het voorspelde OBP-vlak.

## D.3 Stap 3

Concentraties op het geïnterpoleerde 5×5-km<sup>2</sup>-grid volgen nu eenvoudig uit de relatie  $PM_{10i,j,t} = OBP_{i,j,t} + OPS_{i,j,t}$ . Voor het historische jaar 2005 moet  $OPS_{i,j,t}$  wel gecorrigeerd worden voor de geschatte meteorologische invloed in dat jaar, omdat voor 2005  $OPS_{i,j,2005}$  berekend is met de heersende meteorologische condities in dat jaar, terwijl de OPS-berekeningen voor 2010 en 2020 berekend zijn met langjarig-gemiddelde meteorologie. Deze correctie bedraagt 0.5 µg/m<sup>3</sup>.

Door het optellen van  $OBP_{i,j,t}$  en  $OPS_{i,j,t}$  wordt de fout in  $PM_{10i,j,t}$  kleiner dan die alleen in  $OBP_{i,j,t}$ , zoals beschreven in paragraaf 5.5. Een relatieve fout in OPS-modelwaarden van grofweg 20% geeft bij benadering een fout in OPS met gemiddelde nul en standaarddeviatie van 2.4 µg/m<sup>3</sup>. Als deze fout vervolgens wordt verwerkt in de fout in OBP, dan volgt voor de jaren 2010, 2015 en 2020 een fout in  $PM_{10i,j,t}$  met standaarddeviatie van respectievelijk **3.7**, **4.3** en **4.7 µg/m<sup>3</sup>**. Tabel 5.1 geeft de 2-sigma waarden samen met de gemiddelde onzekerheid in GCN-verkenningen.

## **Bijlage E      Ontwikkelingen rekenmethodiek PM<sub>10</sub>**

De PM<sub>10</sub>-concentraties, die volgen uit de rekenmethodiek zoals vastgelegd in dit rapport zijn omgeven met een relatief grote onzekerheidsmarge. Dit is inherent aan de bestaande grote onzekerheden rond fijn stof in zowel de metingen als het model en de onderliggende gegevens. Lopend en gepland onderzoek zijn gericht op het reduceren van deze onzekerheden. Hieraan gekoppeld zijn ook aanpassingen nodig in de rekenmethodiek zodat overschrijdingssituaties nauwkeuriger kunnen worden bepaald. Bovendien zal ook de effectiviteit van het beleid exacter kunnen worden bepaald. Hieronder zijn de belangrijkste ontwikkelingen opgesomd op meting- en modelgebied die kunnen bijdragen tot een nauwkeuriger bepaling van de fijnstofconcentratie.

### **Model**

- Berekening GCN-kaarten op hogere resolutie bij voldoende accurate emissiegegevens.
- Effect onderzoeken van gefixeerde modelparameters bij verkenningen.
- Uitbreiden zeezout en bodemstof modelacties.

### **Kalibratie PM<sub>10</sub>**

Optimaliseren kalibratie-stap door onder andere:

- Beter inzicht in bestanddelen 'overige bronnen PM' via metingen en modelonderzoek.
- Betrekken van meer meetgegevens bij kalibratie-stap.
- Optimaliseren interpolatiemethode.

### **Emissies**

Nauwkeurigheid emissiegegevens verbeteren door onder andere:

- Actualisatie ruimtelijke verdeling (is voor de sector verkeer al doorgevoerd).
- Actualisatie en ontwikkelen van de emissieverdelingen in de tijd.
- Onderzoek naar missende bronnen en condenseerbare emissies.

### **PM<sub>10</sub>-metingen**

- Verklaring waargenomen trendbreuk.
- Correctiefactoren per meetstation.
- Invloed omgevingsfactoren zoals de temperatuur op meting en correctiefactor.
- Samenstelling fijn stof in ruimte en tijd.
- Trendanalyse PM<sub>10</sub>

### **Lokale verkeersbijdrage**

Verbeteren verkeersemisies onder andere door meer inzicht in lokale verkeerssituatie.  
Verder validatie CAR.

### **Onderzoek relatie tussen de jaargemiddelde PM<sub>10</sub>-concentratie en het aantal dagen overschrijding van de grenswaarde voor de daggemiddelde concentratie.**

- Variatie in tijd en ruimte.
- Invloed samenstelling.
- Onzekerheidsanalyse.