

TNO-rapport
TNO-MEP – R 96/365

TNO Milieu, Energie en
Procesinnovatie

Laan van Westenenk 501
Postbus 342
7300 AH Apeldoorn

Telefoon 055 - 549 34 931
Fax 055 - 541 98 37

Alle rechten voorbehouden.
Niets uit deze uitgave mag worden vermenigvuldigd en/of openbaar gemaakt door middel van druk, fotokopie, microfilm of op welke andere wijze dan ook zonder voorafgaande toestemming van TNO.

Indien dit rapport in opdracht werd uitgebracht, wordt voor de rechten en verplichtingen van opdrachtgever en opdrachtnemer verwezen naar de 'Algemene Voorwaarden voor Onderzoeksopdrachten aan TNO', dan wel de betreffende terzake tussen partijen gesloten overeenkomst. Het ter inzage geven van het TNO-rapport aan direct belanghebbenden is toegestaan.

© TNO

Het kwaliteitssysteem van TNO Milieu, Energie en Procesinnovatie voldoet aan ISO 9001.

TNO Milieu, Energie en Procesinnovatie is een nationaal en internationaal erkend kennis- en contract-research instituut voor bedrijfsleven en overheid op het gebied van duurzame ontwikkeling en milieugerichte procesinnovatie.

Luchtverontreiniging in steden

De identificatie en bijdrage van bronnen en de ruimtelijke variatie van concentraties in relatie tot gezondheid en verkeer (Resultaten van metingen in Tilburg en Maastricht; 1995)

auteur:
Dr. M.P. Keuken
Dr. R.F. van Oss
Dr. O.P. van Pruissen

datum:
6 november 1996

projectnummer:
53026

trefwoorden:
- stedelijke luchtkwaliteit
- koolwaterstoffen

bestemd voor:
VROM-DGM, Lucht
TNO-MEP

Nederlandse Organisatie voor toegepast natuurwetenschappelijk onderzoek TNO

Op opdrachten aan TNO zijn van toepassing de Algemene Voorwaarden voor onderzoeksopdrachten aan TNO zoals gedeponeerd bij de Arrondissementsrechtbank en de Kamer van Koophandel te 's-Gravenhage

Samenvatting

In het kader van het NMP-2 formuleren en implementeren het Rijk, provincies en gemeenten gezamenlijk een plan van aanpak teneinde luchtverontreiniging en stank in steden tot aanvaardbare niveaus terug te dringen. Om de effectiviteit van maatregelen op stedelijk niveau te meten en te verbeteren zijn de volgende vragen van belang:

- In welke mate worden stadsbewoners blootgesteld aan belastende luchtverontreiniging van organische microcomponenten (e.g. de aard en concentraties van stoffen)?
- Wat is de ruimtelijke variatie van deze stoffen binnen een stedelijk gebied?
- Wat zijn de bijdragen van verschillende bronnen aan stedelijke luchtverontreiniging van organische microcomponenten?

Op dit moment is er onvoldoende kennis over concentratieverdelingen van met name organische verbindingen in stedelijke buitenlucht om deze vragen te kunnen beantwoorden. Onderzoek op dit gebied vereist gelijktijdige metingen op een groot aantal locaties in een stedelijke omgeving.

Het doel van het beschreven onderzoek is:

- de ontwikkeling van een relatief eenvoudige en goedkope methode voor het bepalen van de ruimtelijke variatie in luchtkwaliteit van (gechloreerde) koolwaterstoffen en de bijdrage van lokale bronnen op wijk- en stedelijk niveau; en
- toepassing van de methode in een aantal gemeenten (e.g. Tilburg, Maastricht en Rotterdam).

Het onderzoek heeft een looptijd van 1995 tot 1997. In 1995, het eerste jaar van het onderzoek, is een methode ontwikkeld gebaseerd op passieve monsternamen, factor analyse, Chemical Mass Balance en interpolatie technieken. Tevens is deze methode getest in Tilburg en Maastricht. In 1996 is de methode verder ontwikkeld en een meetcampagne in Rotterdam uitgevoerd. In 1997, het derde jaar van het onderzoek, worden op basis van de resultaten van de voorgaande meetcampagnes vervolg activiteiten uitgevoerd.

In dit rapport wordt de methode en de resultaten van de meetcampagnes in Tilburg en Maastricht gepresenteerd. In het centrum van Tilburg (0.7 * 1.0 km) en Maastricht (1 * 1 km) zijn gedurende twee weken door passieve monsternamen lucht monsters verzameld in respectievelijk juni en september 1995. Het aantal locaties

in Tilburg en Maastricht was respectievelijk 48 en 61. De buitenlucht concentraties van de volgende 19 stoffen zijn gemeten: benzeen; toluen; ethylbenzeen; o-xyleen; 1,2,4-trimethylbenzeen; methylcyclopentaan; hexaan; cyclohexaan; 1,1,1-trichlooretheen; 1,1,1-trichloorethaan; tetrachlooretheen; tetrachloorkoolstof; styreen; dichloorethaan; 1,2,3-trimethylbenzeen; nonaan; decaan; undecaan en dodecaan. Van de laatste 7 verbindingen waren de luchtconcentraties beneden de detectiegrens.

In Tilburg en Maastricht is er een verband gevonden tussen de gemeten luchtconcentraties en lokale bronnen, zoals verkeer en industriële activiteiten. In beide steden bepalen verkeersemissies de luchtconcentraties van de gemeten (niet-gechloreerde) koolwaterstoffen. De geëxtrapoleerde jaargemiddelde luchtconcentraties van benzeen in het centrum van Tilburg en Maastricht zijn respectievelijk 7 en 13.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, terwijl de wettelijke grenswaarde 10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ bedraagt. Het relatief hoge benzeen niveau in Maastricht wordt waarschijnlijk veroorzaakt door de ligging in het Maasdal met als mogelijk gevolg beperkte atmosferische menging.

In Tilburg en Maastricht zijn door factoranalyse drie groepen stoffen geïdentificeerd die voor circa 75% de variatie van de gemeten luchtconcentraties verklaren. De factoren duiden op de volgende drie processen, die bepalend zijn voor de lokale luchtkwaliteit: i.) verkeersemissies door reguliere benzine en diesel emissies; ii.) lokale industriële emissies en iii.) verkeersemissies met een verhoogd aandeel diesel motoren.

In Tilburg en Maastricht zijn verkeersemissies met Chemical Mass Balance nader beschouwd. Voor verkeersgerelateerde luchtverontreiniging bedraagt op doorgaande wegen het aandeel benzine en diesel emissies, respectievelijk 80% en 20% (Tilburg) en 70% en 30% (Maastricht). In Tilburg is in het verkeersvrije winkelgebied het aandeel diesel emissies verhoogd tot 40% door toeleverings vrachtverkeer. In Maastricht in het gebied rondom de Markt is het aandeel diesel emissies verhoogd tot 50% door bustransport. Luchtconcentraties rondom benzine stations en parkeergarages waren niet significant verhoogd.

In Tilburg en Maastricht zijn de (geëxtrapoleerde) jaargemiddelde benzeen concentraties (1995) vergeleken met berekeningen met behulp van het CAR-model (1994). In Tilburg waren de berekende waarden gemiddeld een factor twee groter dan de gemeten waarden. In Maastricht waren de berekende waarden juist lager dan de gemeten waarden. Deze verschillen in Tilburg en Maastricht zijn het gevolg van respectievelijk over- en onderschatting van de stadsachtergrond in het CAR-model: de gemeten stadsachtergrond in Tilburg en Maastricht is circa 2.4 en 8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, terwijl de Gemeenten in het CAR-model een waarde van 5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ toepassen.

In Maastricht zijn lucht concentraties van toluen en benzeen bepaald met directe metingen met een tijdsresolutie van een kwartier. Opvallend was de toename tot

een factor 20 van de verhouding toluen/benzeen na middernacht, terwijl overdag deze factor circa 2 á 3 bedraagt. Dit duidt naast verkeersemisies op een extra toluen bron (i.e. ontinkten van drukkerijmachines of toluenlozingen), die 's nachts "zichtbaar" wordt vanwege de daling van verkeer en verminderde atmosferische menging. Deze resultaten illustreren de tekortkoming van lange monsternamen periode van de passieve monsternamen metingen en de noodzaak gedurende een bepaalde periode passieve en actieve monsternamen c.q. meting te combineren.

Uit de resultaten in Tilburg en Maastricht wordt geconcludeerd, dat passieve monsternamen in combinatie met eenvoudige statistische analyse op eenvoudige en relatief goedkope wijze inzicht geeft in i.) het niveau en ii.) de ruimtelijke variatie in stedelijk luchtkwaliteit van (gechloreerde) koolwaterstoffen. Tevens is het mogelijk lokale bronnen te identificeren en de bijdrage aan de luchtconcentraties van lokale bronnen te kwantificeren.

Toepassingen van de methode op gemeentelijk niveau zijn bijvoorbeeld: i.) inventariserend onderzoek naar de luchtkwaliteit, ii.) het bepalen van de effectiviteit van milieumaatregelen, iii.) het opstellen van verkeersmilieukaarten op wijk niveau en iv.) het bepalen van mogelijke bronnen van luchtverontreiniging gerelateerd aan lokaal verhoogde gezondheidsproblemen.

Naast toepassing op gemeentelijk niveau kan de ontwikkelde methode op provinciaal niveau worden toegepast bijvoorbeeld i.) voor het bepalen van luchtconcentratie gradiënten rondom een luchthaven of een industrieel complex, ii.) identificatie van provinciale bronnen en berekening van de bijdragen van verschillende bronnen en iii.) monitoring van luchtconcentratie trends.

Inhoud

Samenvatting	3
1. Inleiding	9
1.1 Stedelijke luchtkwaliteit	9
1.2 Nederlandse steden	11
1.3 Doelstelling van het onderzoek	12
1.4 Opzet van het onderzoek	13
1.5 Opzet van het rapport	13
2. Beschrijving van de meetmethode	15
2.1 Algemeen	15
2.2 Passieve monitoring	15
2.2.1 Inleiding	15
2.2.2 Kwaliteitsborging	16
2.2.3 Kwaliteitscontrole	17
2.2.4 Monstername periode	17
2.3 Statistische verwerking van de meetresultaten	18
2.3.1 Ruimtelijke interpolatie van meetresultaten	18
2.3.2 Factoranalyse	18
2.3.3 Chemical Mass Balance	19
2.3.4 Verspreidingsmodellen op stedelijke schaal	19
3. Tilburg	23
3.1 Meetstrategie	23
3.2 Resultaten	25
3.2.1 Ruimtelijke interpolatie van meetresultaten	28
3.2.2 Vergelijking van luchtconcentraties in Tilburg met de regio en een industrieel complex	29
3.2.3 Factoranalyse	30
3.2.4 Chemical Mass Balance (CMB)	32
3.2.5 Verspreidingsmodellen op stedelijke schaal	34
4. Maastricht	39
4.1 Meetstrategie	39
4.2 Resultaten	41
4.2.1 Ruimtelijke interpolatie van meetresultaten	44
4.2.2 Vergelijking van luchtconcentraties in Maastricht met de regio en een industrieel complex	46
4.2.3 Factoranalyse	47
4.2.4 Chemical Mass Balance (CMB)	48
4.2.5 Verspreidingsmodellen op stedelijke schaal	49
4.3 Resultaten directe metingen	52

5.	Discussie	57
5.1	Passieve monsternamen	57
5.2	Factor analyse en Chemical Mass Balance.....	58
5.3	Model berekeningen	58
5.4	Luchtverontreiniging en gezondheid	59
6.	Conclusies en aanbevelingen.....	61
7.	Literatuur.....	67
8.	Verantwoording	69

1. Inleiding

1.1 Stedelijke luchtkwaliteit

In het Nationaal Milieubeleid Plan (NMP) - 2 (1993) wordt aandacht gevraagd voor de problematiek van lokale luchtverontreiniging in steden. Dit betreft met name de thema's *verspreiding*¹ (gezondheidsrisico's) en *verstoring*² (leefomgeving). Stedelijke luchtkwaliteit wordt beïnvloed door drie factoren: i.) grootschalige luchtverontreiniging, ii.) meteorologische omstandigheden en iii.) emissies door lokale bronnen. Emissies door de doelgroepen: verkeer en (kleine) industrie leveren de belangrijkste, lokale bijdragen aan stedelijke luchtverontreiniging.

Stedelijke luchtverontreiniging heeft betrekking op: i.) macrocomponenten (e.g. NO_x, SO₂, CO₂, CO en PM₁₀), ii.) secundaire fotochemische producten (e.g. ozon, PAN, HNO₂, HNO₃ en PM_{2,5}) en iii.) organische microcomponenten (i.e. BETX³, PAK, aldehyden en (gechloreerde) koolwaterstoffen). Luchtconcentraties van de eerste twee groepen stoffen worden in nationale en lokale meetnetten gemeten, inclusief stedelijke achtergrondlocaties. Daarentegen is de kennis van de niveaus en ruimtelijke variatie van stedelijke luchtconcentraties van organische microcomponenten nog zeer beperkt. Tevens is weinig bekend over emissies van **organische** microcomponenten door lokale bronnen zoals verkeer (inclusief benzine stations en parkeergarages) en kleine industrie (e.g. drukkerijen, stomerijen, autospuitsinrichtingen en algemene ontvettingsprocessen).

Luchtconcentraties van organische microcomponenten zijn verbonden met de volgende milieuproblemen: i.) directe gezondheidseffecten, ii.) indirecte gezondheidseffecten (e.g. koolwaterstoffen zijn precursoren voor de vorming van ozon) en iii.) stankproblemen. Voor een aantal organische microcomponenten zijn normen voor de luchtkwaliteit vastgesteld. In Tabel 1.1 zijn voor een aantal relevante stoffen in dit onderzoek de normen weergegeven.

¹ Het thema "verspreiding" is erop gericht de risico's voor mens en milieu van individuele of groepen stoffen tot een aanvaardbaar (grenswaarde) en zo mogelijk verwaarloosbaar (richtwaarde en streefwaarde) niveau te reduceren.

² Het thema "verstoring" is gericht op het bereiken en handhaven van een goede woon- en leefmilieukwaliteit door o.a. vermindering van geluid en stank overlast.

³ BETX: benzeen, ethylbenzeen, toluen en xyleen.

Tabel 1.1 *Wettelijke en niet-wettelijke normen voor de luchtkwaliteit.*

Stofnaam	Grenswaarde ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	Richtwaarde ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	Opmerking
<i>Wettelijke norm</i>			
benzeen	10	5	jaargemiddelde
benzeen	15		jaargemiddelde voor "drukke" verkeerssituaties
<i>Niet-wettelijke norm</i>			
formaldehyde	30		95 P (24-uurgemiddeld)
trichlooretheen	50	50	jaargemiddelde
trichloormethaan		1	jaargemiddelde
tetrachlooretheen	2000	25	jaargemiddelde
tetrachloormethaan		1	jaargemiddelde

Er wordt verwacht dat de NMP-2 doelstellingen voor benzeen (en ook voor NO_2 , fijn stof en benzo(α)pyreen) in stedelijk gebied in het jaar 2000 en 2010 niet worden gerealiseerd, wanneer geen extra maatregelen worden genomen [1]. Eveneens wordt betwijfeld of de NMP-2 doelstelling voor stank (maximaal 750.000 stank-belaste woningen (12%) in 2000) wordt gehaald [2].

Met name voor de doelgroep verkeer wordt verwacht dat het huidige beleid onvoldoende is voor het realiseren van luchtkwaliteit doelstellingen in veel Nederlandse steden. Door algemene emissie maatregelen in binnen- en buitenland zijn weliswaar de achtergrondconcentraties van verkeersgebonden emissies gedaald, maar door de toenemende, lokale verkeersdichtheid wordt een deel van dit effect weer teniet gedaan. Dit wordt geïllustreerd door de constatering dat i.) tussen 1985 en 1989 het aantal kilometers weg in stedelijk gebied waarlangs de norm voor één of meer stoffen wordt overschreden met enkele procenten is gestegen en ii.) stank veroorzaakt door verkeer ruim een derde bijdraagt aan de totale geurhinder in Nederland. Naast de groei van het wegverkeer is er een toenemende bijdrage van diffuse, industriële bronnen aan de stedelijk luchtkwaliteit vooral wat betreft ge-chloreerde koolwaterstoffen. Deze relatieve toename is vooral het gevolg van het succes van milieubeleid gericht op puntbronnen, zoals grootschalige industrie en verbrandingsinstallaties.

In het kader van het NMP-2 formuleren en implementeren het Rijk, provincies en gemeenten gezamenlijk een plan van aanpak teneinde luchtverontreiniging en stank in steden tot aanvaardbare niveaus terug te dringen. Om de effectiviteit van maatregelen op stedelijk niveau te meten en te verbeteren zijn de volgende vragen van belang:

- In welke mate worden stadsbewoners blootgesteld aan belastende luchtverontreiniging van organische microcomponenten (e.g. de aard en concentraties van stoffen)?
- Wat is de ruimtelijke variatie van deze stoffen binnen een stedelijk gebied?

- Wat zijn de bijdragen van verschillende bronnen aan stedelijke luchtverontreiniging van organische microcomponenten?

Op dit moment is er onvoldoende kennis over concentratieverdelingen van met name organische verbindingen in stedelijke buitenlucht om deze vragen te kunnen beantwoorden. Het beschreven onderzoek in dit rapport levert een bijdrage om deze kennis te vergroten.

1.2 Nederlandse steden

Het beleid voor luchtverontreiniging op gemeentelijk niveau is in Nederland nog in geringe mate ingevuld. Op gemeentelijk niveau is er behoefte aan het inzichtelijk maken van de invloed van lokale bronnen op de luchtkwaliteit in steden. Recent wordt in Nederland en internationaal meer onderzoek uitgevoerd naar luchtkwaliteit op stedelijk niveau [3-6] en de relatie tot gezondheid [7-9].

In (Nederlandse) steden wordt een forse ruimtelijke variatie verwacht in luchtverontreiniging met als gevolg een verschil in blootstelling voor verschillende bevolkingsgroepen. Deze variatie wordt veroorzaakt door: i.) de stedelijke spreiding van bronnen (e.g. intensief verkeer op doorgaande wegen en industriële bronnen op verschillende locaties), ii.) het diffuse karakter van een groot deel van de emissies en iii.) de sterke variërende verspreidingscondities in de stedelijke omgeving.

Voor het bepalen van de ruimtelijke variatie en de bijdrage van verschillende bronnen is het noodzakelijk op een groot aantal plaatsen te meten. Traditionele meetmethoden door directe metingen c.q. actieve monsternamen, op een vaste meetlocatie of met een meetwagen zijn niet geschikt vanwege de hoge kosten, praktische beperkingen en gebrek aan representativiteit. Een alternatief is het berekenen van concentratieverdelingen met behulp van modellen. In een aantal Nederlandse gemeenten wordt verkeersgerelateerde luchtverontreiniging van CO, benzene en NO₂ in kaart gebracht met behulp van een zogenaamde “verkeersmilieukaart”. De berekening hiervan gebeurt met het CAR-model (“Calculation of Air pollution of Road traffic”), dat door TNO in samenwerking met het RIVM is ontwikkeld [10-11]. Hierbij worden jaargemiddelde luchtconcentraties op de stoep langs verkeerswegen berekend afhankelijk van: i.) de plaatselijke bebouwing, ii.) de weersomstandigheden en iii.) verkeersemissies op basis van o.a. de snelheid, intensiteit en het aandeel vrachtverkeer. Over de verspreiding van luchtverontreiniging vanuit doorgaande wegen naar minder verkeersbelaste woonwijken is weinig bekend vooral door de complexiteit van luchtstromingen tussen bebouwing [12].

Over de invloed van kleine industrieën en overige stadsbronnen op de luchtkwaliteit en mogelijke gezondheidseffecten binnen gemeentegrenzen bestaat grote onzekerheid. Emissies van bedrijven worden veelal gecontroleerd door metingen in

afvoerkanalen. Er is echter weinig bekend over diffuse emissies. Mede gezien de onzekerheid betreffende de verspreiding is het daarom niet eenvoudig om de luchtverontreiniging door lokale industrie binnen een stad te modelleren.

Een combinatie van (relatief) goedkope metingen, gestandaardiseerde statistische bewerkingen en eenvoudige modellen biedt de mogelijkheid het inzicht in stedelijke luchtkwaliteit aanzienlijk te verbeteren ten opzichte van de huidige situatie. Toepassingen van de methode op gemeentelijk niveau zijn bijvoorbeeld: i.) inventariserend onderzoek naar de luchtkwaliteit, ii.) het bepalen van de effectiviteit van milieumaatregelen, iii.) het opstellen van verkeersmilieukaarten op wijk niveau, iv.) het meten van actuele effecten in vergelijking met verwachte effecten beschreven in een Milieu Effect Rapportage van bijvoorbeeld verkeersmaatregelen en v.) het bepalen van mogelijke bronnen van luchtverontreiniging gerelateerd aan lokaal verhoogde gezondheidsproblemen.

1.3 Doelstelling van het onderzoek

Het project heeft als hoofddoelstelling een bijdrage te leveren aan kennis van:

- I. de ruimtelijke variatie van stedelijke buitenlucht concentraties van organische microcomponenten, die mogelijk belastend zijn voor de gezondheid en/of stank-gerelateerd zijn, en
- II. de bijdrage van verschillende lokale bronnen (e.g. verkeer en industrie) aan de stedelijke buitenlucht concentraties van organische microcomponenten.

De korte termijn doelstellingen van het project zijn de volgende:

1. de ontwikkeling van een relatief eenvoudige en goedkope methode voor het bepalen van de ruimtelijke variatie in luchtkwaliteit en de bijdrage van lokale bronnen op wijk (0.5 * 0.5 km) en stedelijk niveau (5 * 5 km);
2. de methode wordt ontwikkeld en toegepast in een aantal gemeenten (e.g. Tilburg, Maastricht en Rotterdam) voor het bepalen van i.) de bruikbaarheid van de methode, ii.) identificatie van een aantal lokale bronnen en iii.) het kwantificeren van de bijdrage van deze bronnen;
3. de verspreiding van gechloreerde koolwaterstoffen vanuit individuele bedrijven en/of kleine industrieterreinen wordt gemeten en gemodelleerd om de blootstelling op wijkniveau te bepalen, en
4. de ontwikkeling van een methode, op basis van het CAR-model in combinatie met een stedelijk verspreidingsmodel, waarmee concentratiepatronen op wijk- en stadsniveau zijn berekend.

1.4 Opzet van het onderzoek

Het onderzoek heeft een looptijd van 1995 tot 1997. In 1995, het eerste jaar van het onderzoek, is de methode ontwikkeld en getest in Tilburg en Maastricht. In 1996 zijn de resultaten van de meetcampagnes verwerkt, de methode verder ontwikkeld en een meetcampagne in Rotterdam uitgevoerd. In 1997, het derde jaar van het onderzoek, wordt op basis van de resultaten van de voorgaande meetcampagnes en in overleg met het Ministerie van VROM, het RIVM en de betrokken gemeenten, vervolg activiteiten uitgevoerd.

1.5 Opzet van het rapport

Het rapport is een tussentijds verslag van de werkzaamheden en resultaten verkregen in 1995 tot medio 1996. In hoofdstuk 2 wordt achtergrondinformatie gegeven over de gebruikte methode. In hoofdstuk 3 en 4 worden de resultaten voor respectievelijk Tilburg en Maastricht gepresenteerd. In hoofdstuk 5 worden de resultaten becommentarieerd en hoofdstuk 6 bevat conclusies en aanbevelingen. In hoofdstuk 7 zijn referenties opgenomen en hoofdstuk 8 geeft een verantwoording voor het onderzoek.

2. Beschrijving van de meetmethode

2.1 Algemeen

De resultaten van het onderzoek zijn bereikt door i.) de recente ontwikkeling van passieve monitoring voor buitenlucht concentraties van organische microcomponenten, ii.) het gebruik van statistische methoden zoals interpolatie technieken, factoranalyse en Chemical Mass Balance en iii.) toepassing van het CAR-model. In secties 2.2 en 2.3 worden deze methoden kort beschreven.

2.2 Passieve monitoring

2.2.1 Inleiding

Luchtconcentraties worden in het algemeen bepaald door directe meting of actieve monsternamen, waarbij een luchtmonster (met een pomp) langs een adsorbens, een koude val of een detectie apparaat wordt geleid. Het belangrijkste voordeel van directe meting of actieve monsternamen is een relatief korte bemonsteringsperiode in de orde van 10 tot 60 minuten. Op deze wijze worden variaties in dagelijkse concentraties en eventuele samenhang met meteorologische omstandigheden meetbaar. Belangrijke nadelen van actieve monsternamen c.q. directe metingen zijn de noodzaak van (relatief) uitgebreide apparatuur en hoge kosten.

Passieve monsternamen zijn een alternatief voor luchtconcentratie metingen, waarbij verbindingen door diffusie worden getransporteerd naar een adsorbens en vervolgens geanalyseerd in het laboratorium. Passieve monsternamen van organische componenten zijn in de jaren '70 ontwikkeld voor de bepaling van gezondheidsrisico's op de werkplek. Eind jaren '70/begin jaren '80 is passieve monsternamen toegepast voor meting van buitenlucht concentraties van macrocomponenten (e.g. NO_x en SO₂). Eind jaren '80/begin jaren '90 zijn commerciële methoden beschikbaar gekomen voor passieve monsternamen van een groot aantal componenten. Met passieve monsternamen kan op eenvoudige en goedkope wijze een uitgebreid meetnet in een stad worden ingericht [13-16]. Een belangrijk nadeel is dat een monsternamen periode vereist is van enkele dagen tot enkele weken, zodat het signaleren van piekconcentraties en de koppeling met meteorologische condities beperkt is.

De gemeten verbindingen in dit onderzoek zijn geselecteerd op basis van de volgende overwegingen:

- A) organische microcomponenten waarvoor normstelling is ontwikkeld;

- B) passieve monsternamen in de buitenlucht is mogelijk, en
- C) luchtconcentraties zijn indicatief voor de emissie van lokale stadsbronnen (e.g. verkeer en (kleinschalige) industrie).

Deze criteria hebben de volgende lijst van 19 koolwaterstoffen opgeleverd: benzeen, toluen, ethylbenzeen, o-xyleen, styreen, dichloorethaan, 1,2,3-trimethylbenzeen, 1,2,4-trimethylbenzeen, nonaan, decaan, undecaan, dodecaan, methylcyclopentaan, hexaan, cyclohexaan, 1,1,1-trichlooretheen, 1,1,1-trichloorethaan, tetrachlooretheen en tetrachloorkoolstof.

Deze 19 koolwaterstoffen zijn in Tilburg en Maastricht in 1995, en in Rotterdam in 1996 gemeten.

2.2.2 Kwaliteitsborging

Voor dit onderzoek zijn "Organic Vapor Monitor type 3500" van 3M (Dupont) gebruikt. De adsorbens van deze passieve monsternemers is actieve kool voor monsternamen van eerder genoemde 19 koolwaterstoffen. In Rotterdam zijn op beperkte schaal luchtconcentraties van formaldehyde bepaald met "570 series formaldehyde badges" van "GMD Systems" met het adsorbens dinitrophenylhydrazine (DNPH).

Er wordt gewerkt aan een Europese norm voor gebruik van passieve monsternamen in de buitenlucht. De fabrikanten geven beperkte informatie over het gebruik van passieve monsternemers voor meting van buitenlucht concentraties. Voor formaldehyde wordt toepassing van de passieve monsternemers gegarandeerd voor een temperatuur van 10 - 30 °C, een relatieve vochtigheid van 10-80% en windsnelheden van 0.05 - 1 m/s. Voor de 19 koolwaterstoffen worden geen meteorologische condities opgegeven. Door de monsternemers in een "omgekeerde" trechter te bevestigen worden windsnelheid fluctuaties verminderd en de monsternemers afgeschermd voor neerslag.

Na monsternamen worden de beladen monsternemers afgesloten en koel bewaard. De maximale bewaartijd volgens de fabrikant is twee weken voor formaldehyde. In het onderzoek zijn de badges binnen deze periode geanalyseerd. De beladen 3M monsternemers zijn geëluëerd met CS₂ en de koolwaterstoffen zijn gaschromatografisch bepaald in het laboratorium van TNO. De bemonsterde formaldehyde monsternemers zijn met HPLC in het laboratorium van TNO gemeten. Het laboratorium van TNO is Sterlab gecertificeerd en de analyses zijn verricht volgens gecertificeerde methoden.

In Tabel 2.1 zijn de opnamesnelheid en detectiegrenzen in μg en in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ voor een monstername periode van 14 dagen weergegeven, gebaseerd op specificaties van de fabrikant.

2.2.3 Kwaliteitscontrole

In het kader van dit onderzoek is de methode gevalideerd door vergelijkende metingen met actieve monstername op koolpatronen [13]. De reproduceerbaarheid van de methode is bepaald in het verleden [13] en bedraagt circa 10% voor de 19 componenten. In het kader van kwaliteitscontrole zijn blanco- en duplo metingen tijdens de meetcampagnes uitgevoerd. De reproduceerbaarheid in de meetcampagnes in Maastricht en Tilburg bedroeg voor de koolwaterstoffen circa 12%.

Tabel 2.1 Opnamesnelheid en detectiegrenzen in de buitenlucht van de gemeten componenten.

Stof	opnamesnelheid [m^3/dag]	detectiegrens badge [μg]	detectiegrens 14 d [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]
hexaan	0.046	0.2	0.31
methylcyclopentaan	0.046	0.3	0.47
benzeen	0.051	0.4	0.56
cyclohexaan	0.047	0.3	0.46
tolueen	0.045	0.4	0.63
ethylbenzeen	0.039	0.4	0.73
styreen	0.039	0.6	1.11
o-xyleen	0.039	0.3	0.55
n-nonaan	0.035	0.4	0.81
1,2,4-trimethylbenzeen	0.038	0.5	0.94
n-decaan	0.033	0.5	1.08
1,2,3-trimethylbenzeen	0.038	0.5	0.94
n-undecaan	0.039	0.4	0.73
n-dodecaan	0.029	0.5	1.24
1,1,1-trichloorethaan	0.043	0.03	0.05
tetrachloorkoolstof	0.040	0.01	0.01
trichlooretheen	0.045	0.1	0.16
tetrachlooretheen	0.040	0.02	0.04
dichloorethaan	0.048	0.4	0.6
formaldehyde	0.036	0.1	0.19

2.2.4 Monstername periode

De minimale monstername periode wordt bepaald door de detectiegrens en de (verwachte) luchtconcentraties. In dit onderzoek is gekozen voor simultane bemonstering van 19 koolwaterstoffen met één type passieve monsternemer.

De maximale monstername periode wordt bepaald door de opnamecapaciteit van passieve monsternemers. Volgens specificaties is de opnamecapaciteit van de 3M passieve monsternemers per koolwaterstof in de range van 10 tot 20 mg. Het totale

gewicht van de bemonsterde componenten dient minder te zijn dan de laagste opnamecapaciteit van één van de reeks bemonsterde componenten. Indien bijvoorbeeld de som van de buitenlucht concentraties van bemonsterde stoffen $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bedraagt, dan is bij een opnamesnelheid van $0.04 \text{ m}^3/\text{dag}$ (circa 25 ml/min), het totale geabsorbeerde gewicht $4 \mu\text{g}$ per dag. Gegeven een opnamecapaciteit van de passieve monsternemer van bijvoorbeeld 10 mg, dan is de maximale monstername periode 2500 dagen. Dit voorbeeld illustreert dat onder normale omstandigheden en een monstername periode van enkele weken voor de meting van buitenlucht concentraties van koolwaterstoffen geen doorslag wordt verwacht.

2.3 Statistische verwerking van de meetresultaten

De monstername locaties zijn weergegeven op een stadsplattegrond. Door interpolatie zijn de concentraties tussen de meetpunten berekend en per verbinding op de plattegrond aangegeven. Met behulp van factoranalyse en Chemical Mass Balance worden bronnen geïdentificeerd en de bijdragen aan de luchtconcentraties berekend. Tenslotte zijn de gemeten luchtconcentraties van benzeen met de berekende concentraties uit het CAR-model vergeleken. In de volgende secties worden deze bewerkingen toegelicht.

2.3.1 Ruimtelijke interpolatie van meetresultaten

Een belangrijk doel van het stedelijk luchtonderzoek is met behulp van een beperkt aantal meetpunten concentratiekaarten van jaargemiddelde luchtconcentraties te maken. Hiermee kan het verschil in blootstelling van bewoners op een stedelijke schaal worden gepresenteerd. Het interpoleren van luchtconcentraties in een stedelijke omgeving dient met enige voorzichtigheid te worden benaderd. In een stad worden belangrijke verschillen in luchtconcentraties op korte afstand verwacht door lokale variatie in bronnen en verspreiding. Door een meetstrategie gebaseerd op een voldoende dicht meetnet wordt inzicht verkregen in deze ruimtelijke variabiliteit.

2.3.2 Factoranalyse

Toepassing van factoranalyse in luchtonderzoek ondersteunt de identificatie van processen die bepalend zijn voor de luchtconcentraties. Factoranalyse is een statistische techniek die tot doel heeft om de achterliggende oorzaken (*factoren*) te vinden voor de gemeenschappelijke variatie in gelijktijdige metingen van een aantal variabelen [17]. In dit onderzoek zijn de variabelen de luchtconcentraties van de gemeten stoffen. Het resultaat van de analyse geeft voor elke stof een *lading* op elk van de factoren. Deze lading geeft aan in hoeverre de stof met de factor geassocieerd kan worden of met andere woorden met de factor correleert. Op basis van

factoranalyse worden stoffen gegroepeerd. Deze groepering duidt op een gemeenschappelijk proces, dat bepalend is voor de gemeten luchtconcentraties.

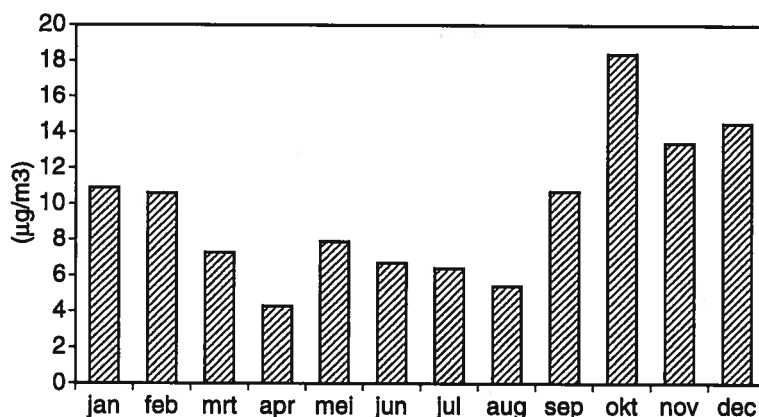
2.3.3 Chemical Mass Balance

Chemical Mass Balance (CMB) is een methode, die in luchtonderzoek wordt toegepast om de procentuele bronbijdragen aan gemeten luchtconcentraties te bepalen [18-20]. CMB kan worden toegepast nadat (bijvoorbeeld door factoranalyse) bronnen zijn geïdentificeerd. De bijdragen van verschillende bronnen worden gekarakteriseerd door een bronspecifiek profiel. Het profiel geeft de verhoudingen van de emissiesterkten van verschillende componenten. De bijdrage van elke bron aan gemeten luchtconcentraties wordt met CMB bepaald door een optimale overeenstemming tussen gemeten en berekende luchtconcentraties. Bronprofielen zijn beschikbaar i.) door literatuuronderzoek, ii.) door metingen onder gecontroleerde omstandigheden [21] en iii.) door meting op specifieke locaties (bijvoorbeeld in een verkeerstunnel [22], bij een benzinestation of op een industriële locatie).

2.3.4 Verspreidingsmodellen op stedelijke schaal

Een belangrijk doel van het onderzoek is het schatten van jaargemiddelde concentraties, zodat het blootstellingsniveau van bewoners kan worden vastgesteld. Het is het lastig om tweewekelijkse metingen te extrapoleren naar jaargemiddelde concentraties vanwege i.) de onzekerheid over seizoensfluctuaties van de gemeten luchtconcentraties en ii.) de onzekerheid in hoeverre de meetperiode een representatieve periode voor het jaar vertegenwoordigt. Met andere woorden, de representativiteit van de tweewekelijkse meetperiode in juni (Tilburg) en in september (Maastricht) voor de berekening van een jaargemiddelde luchtconcentratie is onzeker.

Uit de variatie in de windrichting, de windsnelheden, de temperatuur en de neerslag tijdens de meetperioden in juni (Tilburg) en in september (Maastricht) 1995 wordt geconcludeerd dat in beide perioden geen extreme weersomstandigheden optraden. Ten behoeve van een correctie voor seizoensfluctuaties van verkeersgerelateerde concentraties is beperkt informatie beschikbaar. Metingen in Amsterdam [6] en op locaties van het landelijk meetnet voor benzeen en toluen duiden op een maandelijks fluctuatie. In Figuur 2.1 zijn de maandelijks benzeen concentraties voor de Haarlemmerstraat in Amsterdam weergegeven. De jaargemiddelde concentratie van benzeen op deze locatie in Amsterdam is $9.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$.



Figuur 2.1 Maandgemiddelde concentraties van benzeen (in $\mu\text{g}/\text{m}^3$) in lucht in 1995 in de Haarlemmerstraat in Amsterdam [6].

Met behulp van de maandgemiddelden voor juni en september en de jaargemiddelde concentraties van benzeen op drie drukke verkeerslocaties in Amsterdam zijn correctiefactoren berekend. Met deze correctiefactoren (0.7 voor juni) en (1.1 voor september) zijn de tweewekelijkse gemiddelden in Tilburg en Maastricht gecorrigeerd voor seizoensinvloeden en de jaargemiddelden voor de luchtconcentraties van benzeen geschat. Deze waarden zijn vervolgens vergeleken met berekeningen van het CAR model.

Op straat- en wijkniveau kan de verkeersbijdrage met behulp van het CAR-model worden gemodelleerd. De mogelijkheden van het CAR-model voor het inschatten van de totale luchtkwaliteit zijn echter beperkt doordat CAR:

- 1) alleen verkeersemisies beschouwd (bijvoorbeeld: een uitspraak over de bijdrage van ander lokale bronnen, zoals benzinestations, parkeergarages en lokale bedrijven is niet mogelijk);
- 2) alleen is gevalideerd aan de hand van CO metingen van concentraties op de stoep langs wegen (bijvoorbeeld: benzeen concentraties en locaties verder van de wegen zijn niet gevalideerd),
- 3) onvoldoende rekening houdt met actuele achtergrond niveaus en verschillend rijgedrag (bijvoorbeeld: op sommige locaties rijden verhoudingsgewijs meer auto's, waarvan zowel de motor als de katalysator koud is. In de literatuur [21] worden emissies van koolwaterstoffen opgegeven voor auto's rijdend op benzine met katalysator in een stad en op een buitenweg van respectievelijk 14 en 4 mg/km. Dit grote verschil illustreert o.a. het belang van rijgedrag en de temperatuur van de motor c.q. de katalysator voor de emissiesterkte), en
- 4) niet geschikt is voor de berekening van concentraties op kruispunten c.q. bij verkeerslichten.

In het onderzoek in Rotterdam wordt de toepassing van het CAR model verbeterd door i.) meting van luchtconcentraties op secundaire wegen, ii.) meting van de stadsachtergrond en de regionale achtergrond en iii.) meting van lokale emissies van verkeer in tunnels. Hierdoor is het mogelijk luchtconcentraties ten gevolge van verkeersemissies te berekenen op grotere afstand dan de stoeprand en het maken van verkeersmilieukaarten met een grotere dichtheid en verhoogde betrouwbaarheid.

Verspreiding vanuit lokale bronnen (o.a. benzinestations, parkeergarages en kleine industrie) naar woonwijken kan met behulp van een Gaussische pluim verspreidingsmodel worden berekend. Deze laatste bewerkingen worden op beperkte schaal in Rotterdam uitgevoerd vanwege het ontbreken van eenvoudige verspreidingsmodellen op stedelijke schaal en het ontbreken van gegevens van diffuse emissies vanuit lokale industrie.

In de volgende twee hoofdstukken worden de resultaten van Tilburg en Maastricht gepresenteerd van onderzoek dat volgens de eerder beschreven wijze is uitgevoerd.

3. Tilburg

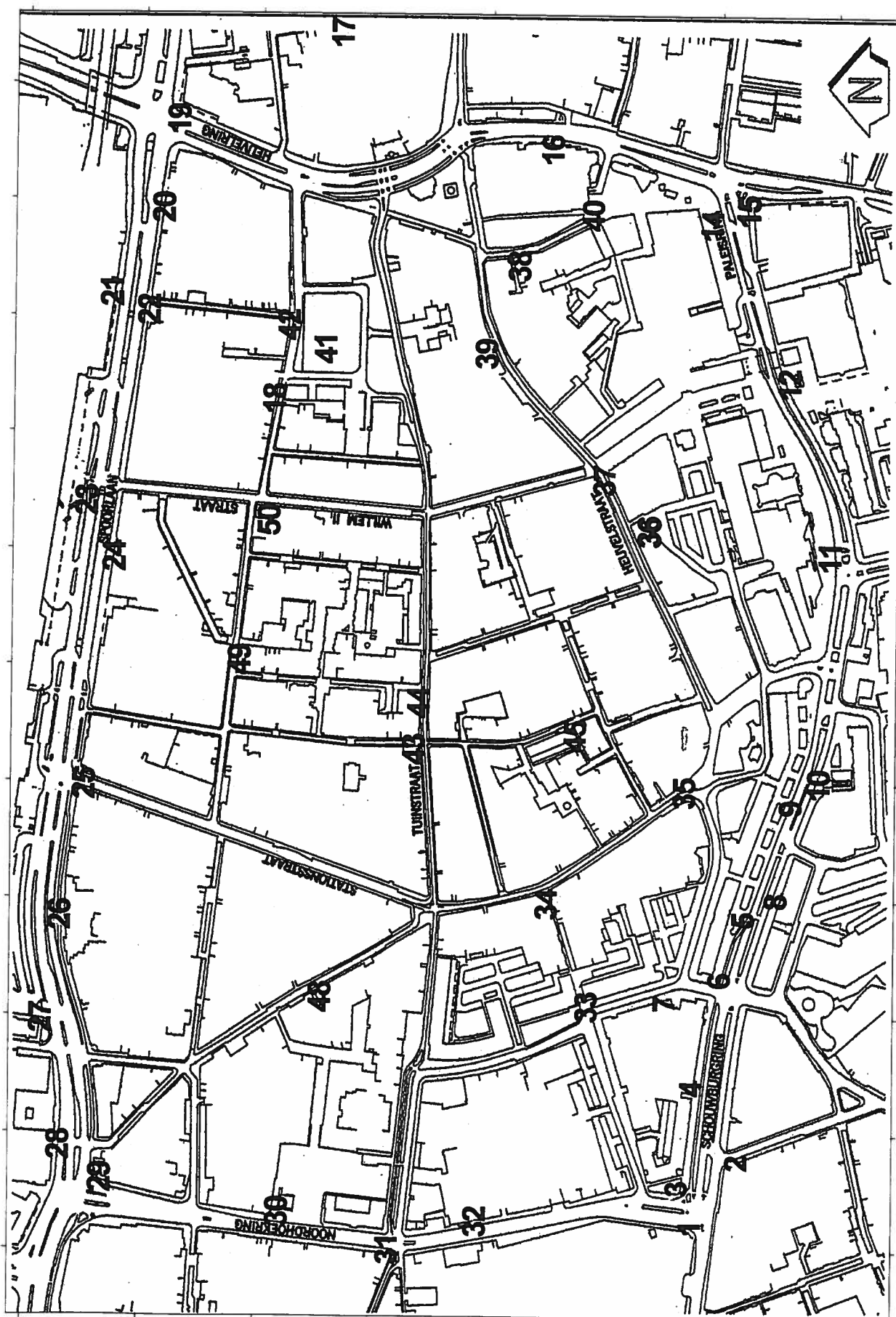
3.1 Meetstrategie

In Tilburg omvat het meetgebied een oppervlak van 700 x 1000 meter in het centrum. In Figuur 3.1 zijn de meetlocaties in het stratenplan van het meetgebied weergegeven.

Aan de *noordzijde* van het meetgebied loopt de Spoorlaan met 26.000 auto's per etmaal met aan de noordkant een spoorlijn en relatief weinig bebouwing. Aan de zuidkant van de Spoorlaan is relatief lage bebouwing. Langs deze weg zijn tien monsters genomen. Aan de *zuidzijde* van het meetgebied is eveneens een drukke weg (de Schouwburgring met 20.000 auto's per etmaal) met aan weerszijden hoge bebouwing. Langs deze weg zijn twaalf monsters genomen. Aan de *westzijde* loopt een tamelijk drukke weg (de Noordhoekring met 15.000 auto's per etmaal), waarlangs vier monsters zijn verzameld. Aan de *oostzijde* van het meetgebied loopt de Heuvelring, die gedurende de meetcampagne grotendeels voor het verkeer was afgesloten. Langs deze weg is één monster genomen.

In het meetgebied zijn geen parken aanwezig, maar vanwege sloopwerkzaamheden zijn er enkele open terreinen. Het winkelcentrum is afgesloten voor het verkeer en in dit voetgangersgebied zijn vier monsters genomen. In het meetgebied is een vrij groot parkeerterrein. Het verkeer verlaat het parkeerterrein over een andere weg dan de toegangsroute. Langs de afvoerweg van het parkeerterrein zijn vier monsters verzameld. Op secundaire wegen binnen het meetgebied en op twee stadsachtergrond locaties met weinig verkeer zijn twaalf monsters genomen.

In samenwerking met de milieudienst van de gemeente Tilburg zijn meetlocaties geselecteerd in de omgeving van lokale bronnen: een garagebedrijf, een parkeergarage, een groot busstation, twee benzinepompen, een stomerij en een parkeerterrein. Deze meetlocaties zijn geen aparte locaties maar overlappen grotendeels met eerder genoemde locaties in het meetgebied.



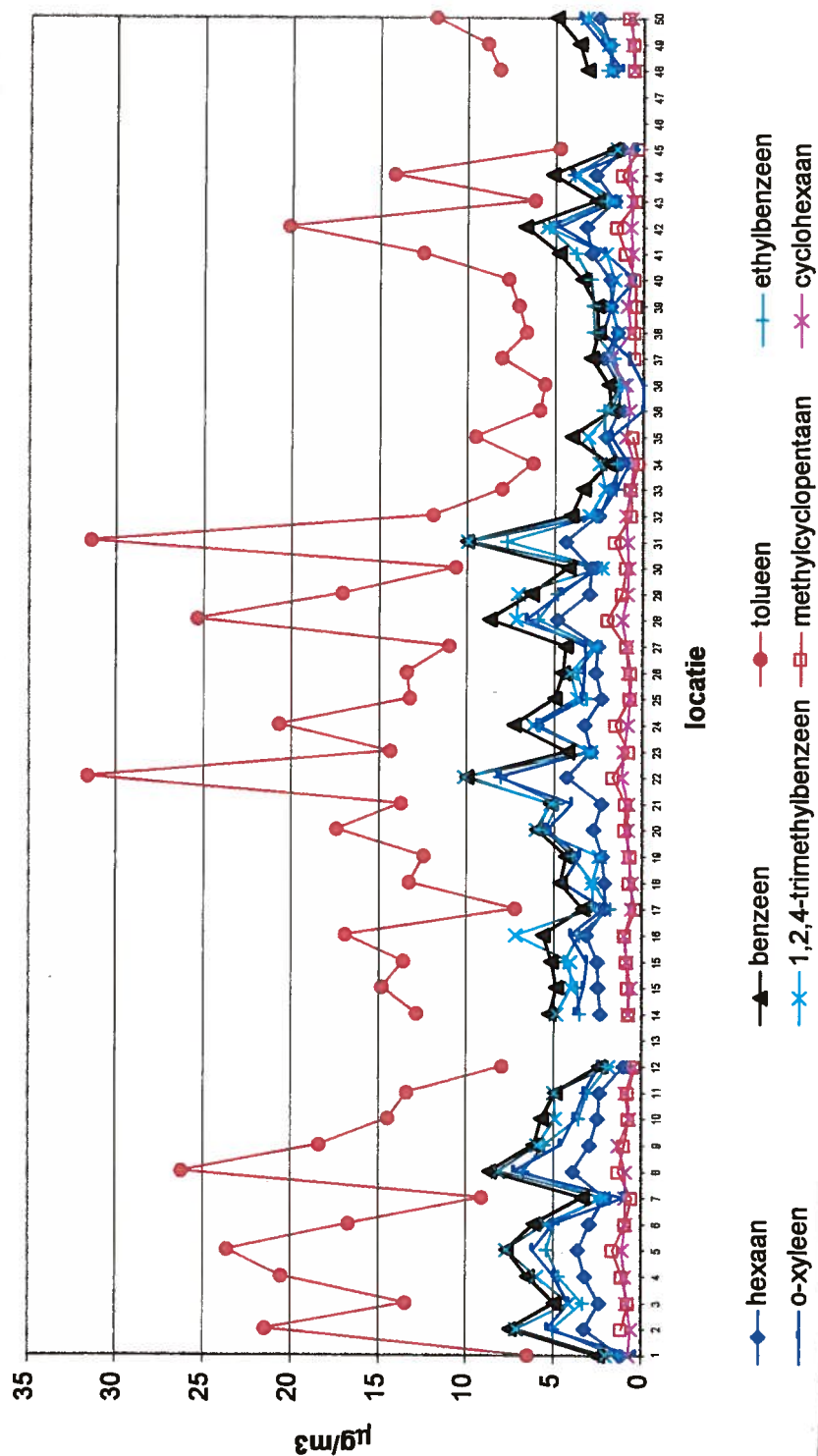
Figuur 3.1 De meetlocaties in Tilburg.

3.2 Resultaten

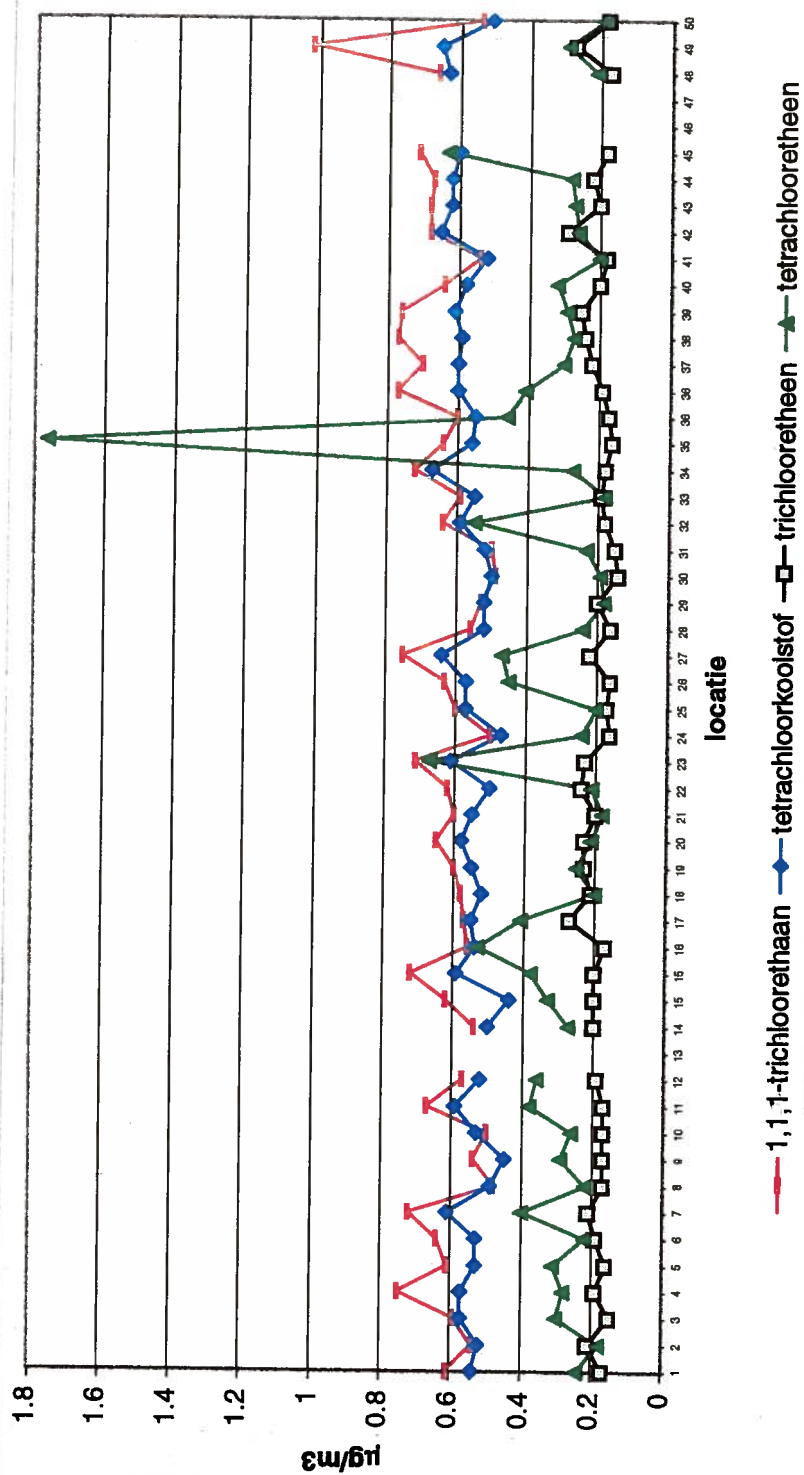
In de periode van 1 tot 15 juni 1995 zijn op een 48-tal meetlocaties de luchtconcentraties van 19 koolwaterstoffen gemeten. In de meeste gevallen is een luchtmonster verzameld op ongeveer 2.75 meter hoogte nabij de stoeprand. Van één meetlocatie is het monster na afloop van de meetcampagne van 15 dagen niet teruggevonden. Op twee locaties zijn duplo metingen uitgevoerd en er zijn drie blanco passieve monsternemers geanalyseerd.

Van 7 componenten waren de concentraties beneden de detectiegrens: styreen ($< 1.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$), dichloorethaan ($< 0.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 1,2,3-trimethylbenzeen ($< 0.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$), nonaan ($< 0.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$), decaan ($< 1.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$), undecaan ($< 0.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$) en dodecaan ($< 1.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$). Overigens is het mogelijk de detectiegrens te verbeteren door de monstername periode te verlengen.

De reproduceerbaarheid (met een betrouwbaarheid van 68%) van de twee duplo metingen was kleiner dan 10% voor de twaalf componenten met een luchtconcentratie boven de detectiegrens. De blanco's waren beneden de detectiegrens met uitzondering van toluen ($1.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 1,1,1-trichloorethaan ($0.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$) en tetrachlooretheen ($0.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$). De meetresultaten zijn voor de blanco waarden gecorrigeerd. In Figuur 3.2A en B zijn de tweewekelijkse gemiddelde luchtconcentraties per verbinding en per meetlocatie weergegeven.



Figuur 3.2a De tweewekelijkse gemiddelde luchtconcentraties in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ per verbinding en per meetlocatie in Tilburg voor hexaan, methylcyclopentaaan, benzeen, cyclohexaan, toluen, ethylbenzeen, o-xyleen en 1,2,4-trimethylbenzeen.



Figuur 3.2b De tweewekelijkse gemiddelde luchtconcentraties in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ per verbinding en per meetlocatie in Tilburg voor 1,1,1-trichloorethaan, tetrachloorkoolstof, trichlooretheen en tetrachlooretheen.

Tijdens het onderzoek was de windrichting gemiddeld 264 graden en varieerde van 198 tot 356 graden. De gemiddelde windsnelheid over de meetperiode was 3.2 m/s in een range van 1.5 tot 4.8 m/s. Deze weersomstandigheden in de meetperiode komen overeen met de gemiddelde omstandigheden in de maand juni in Nederland.

3.2.1 Ruimtelijke interpolatie van meetresultaten

Door middel van interpolatie technieken zijn kaarten geconstrueerd, waarop de luchtconcentraties per verbinding zijn ingekleurd op de plattegrond van het meetgebied. Deze kaarten ondersteunen de identificatie van bronnen en het inschatten van concentratie gradiënten in de stad. Er wordt aangetekend dat de gebruikte interpolatie techniek geen rekening houdt met de invloed van bebouwing op de verspreiding van luchtverontreiniging. Het gevolg is dat luchtverontreiniging afkomstig van bijvoorbeeld een doorgaande weg langs een rij gebouwen, achter deze bebouwing wordt overschat. In het vervolgonderzoek in Rotterdam wordt gepoogd de ruimtelijke interpolatie te verbeteren.

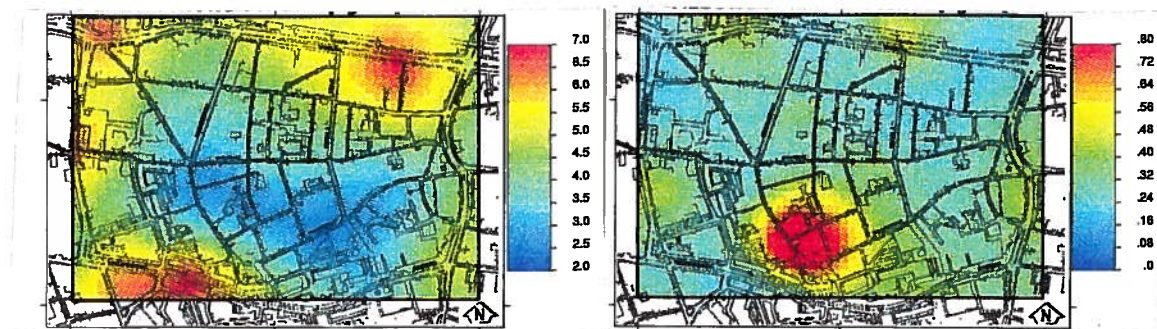
Verkeersgerelateerde luchtconcentraties

Zeven verkeersgerelateerde stoffen: hexaan, methylcyclopentaan, benzeen, toluen, ethylbenzeen, o-xyleen en 1,2,4-trimethylbenzeen, hebben een vrijwel identiek ruimtelijke patroon, hoewel de luchtconcentratie niveaus onderling verschillen. In Figuur 3.3 is ter illustratie van de verkeersbelasting, de ruimtelijke verdeling van de luchtconcentraties van benzeen weergegeven.

Uit Figuur 3.3 blijkt dat hoge concentraties voor benzeen (en de overige zes verkeersgerelateerde stoffen) samenhangen met verhoogde verkeersintensiteit. De hoogste benzeen concentratie van $9.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ is gemeten op locatie 22 (zie figuur 3.1), waar een nauwe weg de auto's van een parkeerterrein afvoert naar de noordelijke weg. De variaties in de gemeten benzeen concentratie langs de noordelijke en zuidelijke wegen zijn opvallend. Dit illustreert de lokale variaties in verkeersgerelateerde emissies langs drukke wegen ondanks geringe verschillen in verkeersintensiteit. Dit is mogelijk het gevolg van variaties in i.) verkeersgedrag (e.g. remmend en optrekkend verkeer voor een kruispunt), ii.) bebouwing (e.g. "opgesloten" luchtmassa bij wegen met aan weerszijde bebouwing) en iii.) de afrit van een parkeerterrein ("koude" en nog nauwelijks functionerende drieweg katalysatoren). In de nabijheid van twee benzinepompen en de parkeergarage zijn geen verhoogde concentraties gemeten ten opzichte van het doorgaande weg niveau.

De laagste concentraties voor benzeen (en de overige zes verkeersgerelateerde stoffen) bedroegen circa 2.0 tot $3.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ en zijn gemeten in het voetgangersgebied en langs secundaire wegen in het meetgebied. Dit duidt op beperkte versprei-

ding van verkeersemissies vanuit drukke doorgaande wegen naar secundaire wegen in een stedelijke bebouwing.



Figuur 3.3
Ruimtelijke verdeling van benzeen
($\mu\text{g}/\text{m}^3$) in Tilburg.

Figuur 3.4
Ruimtelijke verdeling van tetrachloor--
etheen ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) in Tilburg.

Gechloreerde koolwaterstoffen

In Figuur 3.4 is de ruimtelijke verdeling over het meetgebied ingekleurd van de luchtconcentraties van tetrachlooretheen.

Het contrast met de ruimtelijke verdeling voor benzeen is groot. De kaart van tetrachlooretheen wordt gedomineerd door verhoogde concentraties in het zuidelijke centrale deel van de stad. De hoge concentratie bij meetlocatie 35 (zie figuur 3.1) ($1.76 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ten opzichte van een gemiddeld niveau van $0.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$) is hieraan debet. Dichtbij dit meetpunt bevindt zich een stomerij. Vanwege het gebruik van tetrachlooretheen in stomerijen wordt verwacht dat deze stomerij de bron is van de verhoogde concentratie. De concentratiepiek lijkt zich in oostelijke richting uit te strekken. Gezien het feit dat de gemiddelde windrichting tijdens de meetperiode westelijk was ondersteunt dit gegeven de identificatie van de stomerij als een lokale bron.

De ruimtelijke verdeling van de overige gechloreerde koolwaterstoffen vertonen weinig contrast.

3.2.2 Vergelijking van luchtconcentraties in Tilburg met de regio en een industrieel complex

De gemiddelde tweewekelijkse concentraties voor het centrum van Tilburg zijn berekend. Deze waarden zijn weergegeven in Tabel 3.1. Om te onderzoeken in hoeverre de concentraties in Tilburg verhoogd zijn t.o.v. de regio, is een vergelijking gemaakt met weekgemiddelde concentraties op een nabijgelegen, regionaal

meetpunt van het Landelijk Meetnet Luchtverontreiniging (Houtakker). Dit regionale meetpunt wordt niet door lokaal autoverkeer of industriële bronnen beïnvloed [23]. De meetperiode van 23-29 mei 1995 was de dichtstbijzijnde periode waarin benzeen metingen op dit station hebben plaatsgevonden. Tevens zijn de gemiddelde luchtconcentraties van benzeen en toluen in Tilburg vergeleken met een chemisch complex in Nederland [24].

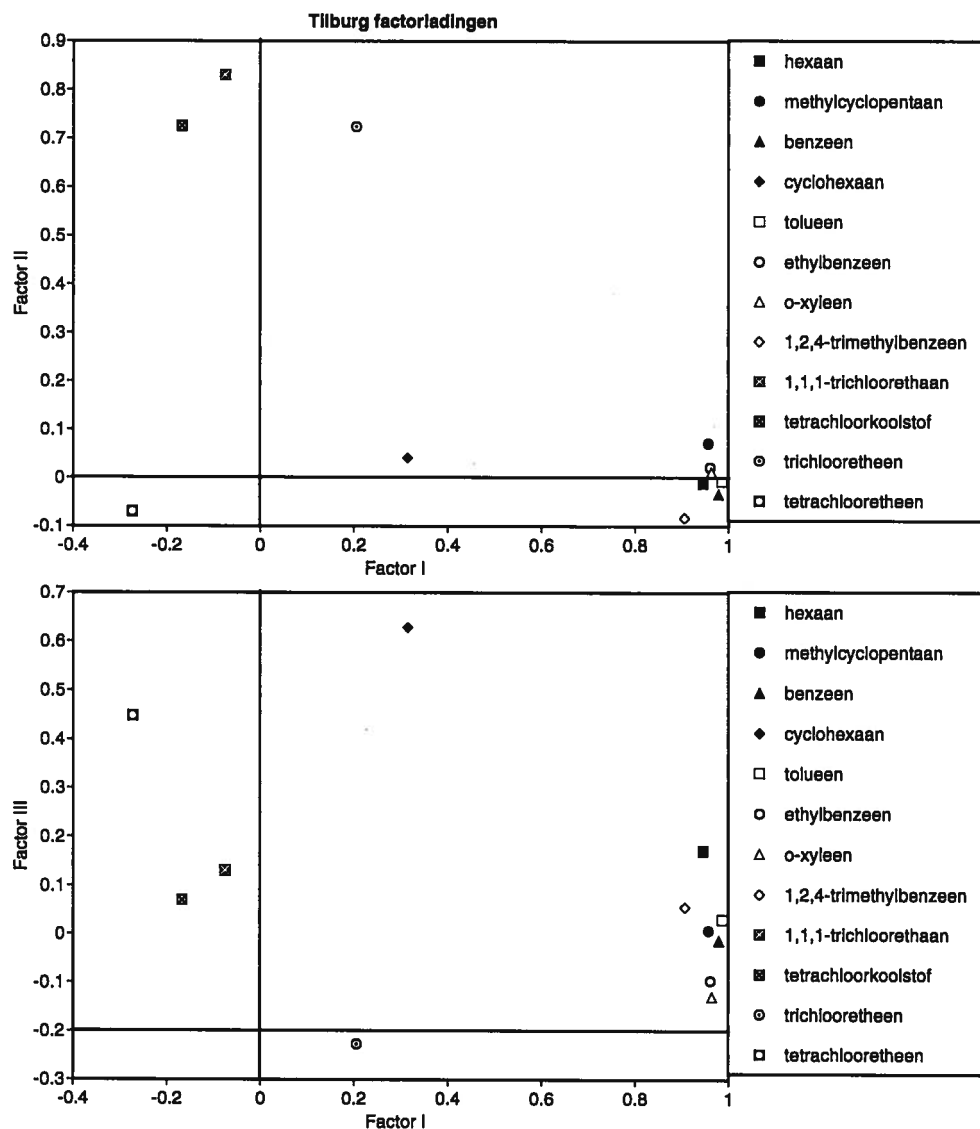
Tabel 3.1 Luchtconcentraties in het centrum van Tilburg (tweewekelijks gemiddelde), regionaal station Houtakker (weekgemiddelde) en een chemisch complex in Nederland (jaargemiddelde).

	concentraties in Tilburg [µg/m³] 1-15 juni 1995	concentraties in Houtakker [µg/m³] 23-29 mei 1995	typische concentraties chemisch complex [µg/m³]
hexaan	3.6	0.3	
methylcyclopentaan	1.2		
benzeen	6.7	1.2	7
cyclohexaan	1.3		
tolueen	19.4	2.5	11
ethylbenzeen	5.1	0.5	
o-xyleen	4.8		
1,2,4-trimethylbenzeen	5.8	0.6	
1,1,1-trichloorethaan	1.0	0.7	
tetrachloorkoolstof	0.9		
trichlooretheen	0.3	0.3	
tetrachlooretheen	0.5	0.2	

Hoewel de schatting van jaargemiddelde concentraties met behulp van tweewekelijkse metingen onzeker is (zie sectie 3.2.5) wordt geconcludeerd, dat de concentraties van verkeersgerelateerde stoffen in Tilburg verhoogd zijn t.o.v. de regio. De luchtconcentraties voor benzeen en toluen op een chemisch complex zijn vergelijkbaar met stedelijke concentraties. Deze cijfers rechtvaardigen de genomen zorg om de stedelijke luchtkwaliteit.

3.2.3 Factoranalyse

Met behulp van factoranalyse worden bronnen geïdentificeerd, die bijdragen aan de luchtconcentraties in Tilburg. In Figuur 3.5 staan de factorladingen van alle gemeten componenten op drie factoren uitgezet.



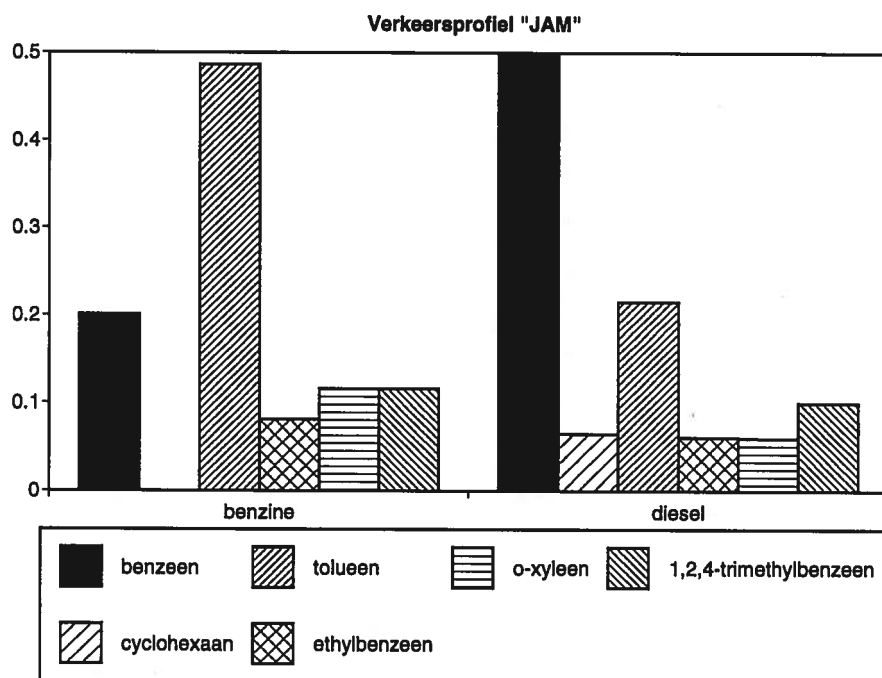
Figuur 3.5 De factorladingen van alle gemeten componenten op drie factoren uitgezet: factor 1 tegen 2 en factor 1 tegen 3.

Uit Figuur 3.5 blijkt dat één groep stoffen met name een sterke onderlinge correlatie vertonen: hexaan, methylcyclopentaan, benzeen, o-xyleen, ethylbenzeen, tolueen en 1,2,4-trimethylbenzeen. Deze zeven stoffen zijn duidelijk geassocieerd met factor I. Minder duidelijk is de samenhang tussen 1,1,1-trichloorethaan, tetrachloorkoolstof en trichlooretheen. Deze drie stoffen laten hoge ladingen op factor II zien. Cyclohexaan en tetrachlooretheen hebben een enigszins verhoogde lading op factor III. De gemeenschappelijke variatie in de luchtconcentraties binnen deze drie groepen duidt op een gemeenschappelijk oorzaak of factor. De drie factoren verklaren 76% van de variatie van de gemeten luchtconcentraties van alle twaalf stoffen. De resterende 24% is opgebouwd uit de unieke variatie en de meeton nauwkeurigheid.

De gemeenschappelijke variatie in de zeven stoffen van factor I wordt verklaard door verkeersemisies. De geïnterpoleerde concentratiekaarten van deze zeven stoffen lieten al een duidelijke associatie zien met verkeersbelaste gebieden. De resterende factoren II & III zijn niet duidelijk in verband te brengen met bronnen. Factor II vertegenwoordigt de gechloreerde koolwaterstoffen: 1,1,1-trichloorethaan, tetrachloorkoolstof en trichlooretheen. Terwijl cyclohexaan en tetrachlooretheen zijn gegroepeerd in Factor III. De stoffen in groep II en III zijn een aanwijzing voor lokale emissies door dieselmotoren (cyclohexaan) en lokale industrie (e.g. verfspuiterijen, drukkerijen, ontvettingsprocessen). Het aantal meetlocaties is waarschijnlijk te beperkt om een betrouwbare interpretatie van de twee laatste factoren te geven. De invloed van toevallige omstandigheden op de meetresultaten van deze twee groepen is hierdoor niet te verwaarlozen.

3.2.4 Chemical Mass Balance (CMB)

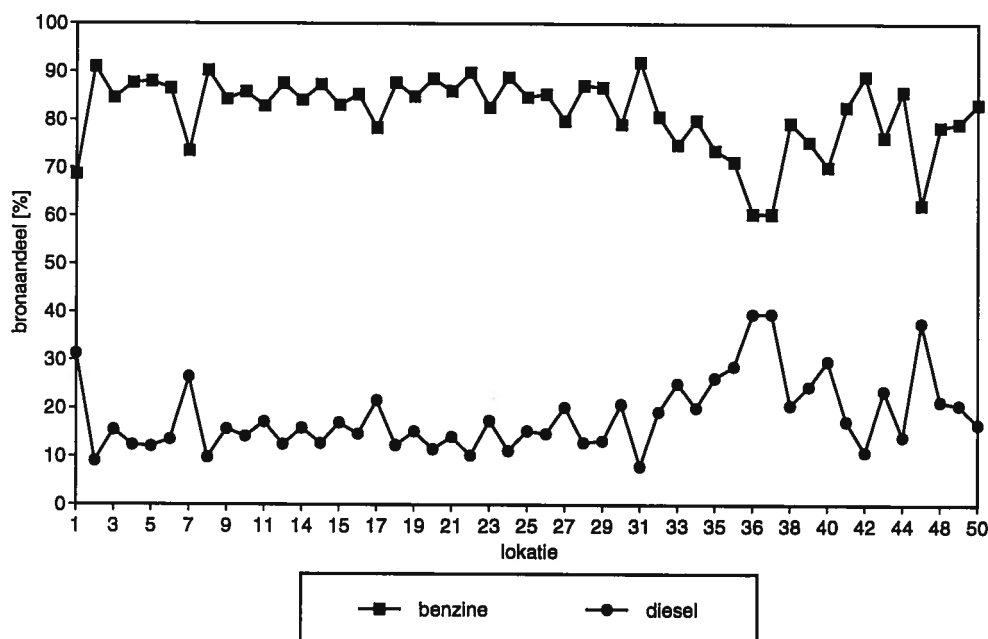
Met de CMB-methode is het mogelijk de bijdragen van verschillende bronnen aan de luchtconcentraties te schatten. Omdat de factoranalyse alleen de verkeersemisies als een significante bron identificeerde is CMB voor de verkeersgerelateerde componenten toegepast. Voor een zestal koolwaterstoffen zijn experimenteel bepaalde profielen beschikbaar van de uitstoot van benzine en van diesel motoren [21]: benzeen, cyclohexaan, toluen, ethylbenzeen, o-xyleen en 1,2,4-trimethylbenzeen. Deze profielen zijn geschikt om gebruikt te worden in een CMB-analyse van de meetreeksen van deze zes componenten. Figuur 3.6 toont de twee profielen van diesel- en benzine-emisies voor de rijcyclus "JAM" [21]. JAM vertegenwoordigt emissies van stagnerend stads verkeer.



Figuur 3.6 De twee profielen van diesel- en benzine-emissies voor een rijcyclus JAM voor stagnerend stads verkeer [21].

De CMB-analyse geeft als resultaat dat de gemeten profielen goed met het JAM profiel voor de emissies van benzine en diesel te verklaren zijn. Figuur 3.7 geeft voor elke meetlocatie de berekende bronbijdragen van benzine- en dieseluitstoot (in procenten) aan het totaal van de gemeten luchtconcentraties van het zestal koolwaterstoffen in Tilburg.

Gemiddeld bedroeg het aandeel aan verkeersgerelateerde luchtverontreiniging van benzine uitstoot 80 % en van diesel 20%. In het verkeersvrije winkelgebied is het aandeel diesel verhoogd tot circa 40%. Hoewel het niveau van verkeersgerelateerde concentraties in dit gebied lager is door de lage verkeersintensiteit, is het relatieve aandeel van dieselverkeer waarschijnlijk verhoogd door toeleverings vrachtverkeer voor de winkels.



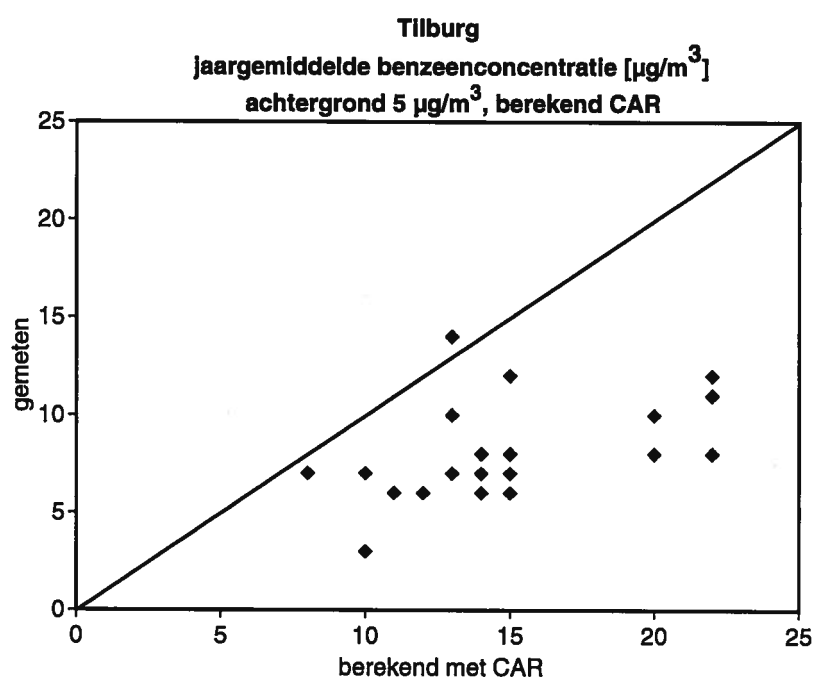
Figuur 3.7 De berekende bronbijdragen op elke meetlocatie van benzine- en dieselmuitstoot (in procenten) aan het totaal van de gemeten luchtconcentraties van het zestal koolwaterstoffen in Tilburg

3.2.5 Verspreidingsmodellen op stedelijke schaal

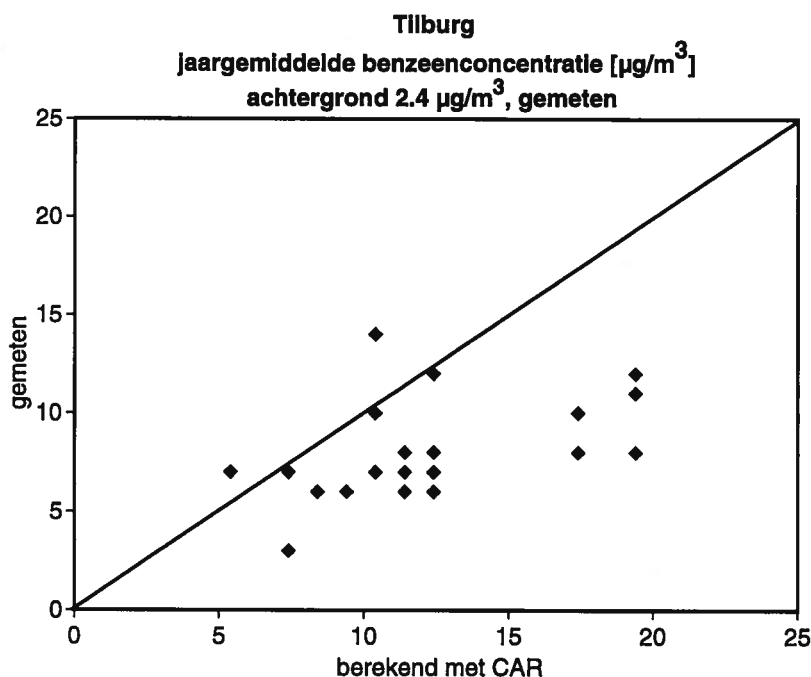
Voor de bepaling van de verspreiding van verkeersgerelateerde luchtverontreiniging in Tilburg is het gewenst de stadsachtergrond te bepalen. Deze stadsachtergrond is opgebouwd uit een regionale achtergrond plus een bijdrage van het bovenwindse gedeelte van de stad. De gemeten concentraties van de verkeersgerelateerde componenten in het verkeersvrije winkelgebied geeft een eerste orde schatting voor de stadsachtergrond. Vanwege de wettelijke normstelling is aandacht besteed aan benzeen. De laagste benzeen concentratie in het winkelgebied is $1.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Na correctie voor seizoensinvloed met een factor 0.7 (zie sectie 2.3.4) is een jaargemiddelde benzeen concentratie van $2.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ berekend. Deze waarde is gebruikt als stadsachtergrond voor benzeen.

Het CAR-model is het meest toegepaste model in Nederlandse steden voor het berekenen van verkeersgerelateerde benzeen concentraties. Met het CAR-model kunnen concentraties van benzeen langs wegen worden berekend ter hoogte van de stoeprand op 1.5 meter hoogte. Tijdens dit onderzoek zijn de monsters langs drukke wegen verzameld op 2.75 meter hoogte van verkeersborden. De meetresultaten van benzeen zijn gecorrigeerd voor seizoensinvloeden met een factor 0.7 en een factor 1.1 voor het hoogteverschil in het CAR-model [25].

In totaal bevonden 28 meetlocaties in Tilburg zich aan een weg. Twee meetlocaties vervielen, omdat de verkeersintensiteit wegens een wegomlegging onbekend was en vier meetlocaties vervielen om andere redenen. Voor de resterende 22 locaties zijn de gemeten benzeen concentraties vergeleken met berekende concentraties door het CAR-model. In Figuur 3.8a zijn de geëxtrapoleerde jaargemiddelden waarden uitgezet tegen de verkeersmilieukaart waarden voor 1994 zoals opgesteld door de gemeente.



Figuur 3.8a De geëxtrapoleerde jaargemiddelden benzeen concentraties uitgezet tegen de verkeersmilieukaart waarden van Tilburg voor 1994.



Figuur 3.8b De geëxtrapoleerde jaargemiddelden benzeen concentraties uitgezet tegen de verkeersmilieukaart waarden van Tilburg voor 1994 met de gemeten stadsachtergrond.

De absolute verschillen tussen de berekende en gemeten concentraties zijn opvallend. De berekende concentraties met het CAR-model zijn gemiddeld twee maal groter dan de gemeten waarden. Een verklaring voor dit verschil is niet eenvoudig te geven. De berekeningen zijn uitgevoerd voor 1994, terwijl de metingen zijn uitgevoerd in 1995. Door de introductie van de katalysator neemt de emissie van benzeen ieder jaar met enkele percenten af waardoor de berekeningen de huidige concentraties overschatten, maar dit kan het relatief grote verschil niet verklaren. Een nadere verklaring voor het verschil kan zijn dat de gemeten waarden zijn verkregen door tweewekelijkse monsternamen, terwijl het CAR-model jaargemiddelde concentraties berekend. Echter, benzeen concentraties zijn gecorrigeerd op grond van metingen in Amsterdam en de onnauwkeurigheid van deze correctie is onvoldoende om het verschil te verklaren. Het meest aannemelijk is dat de stadsachtergrond in het meetgebied ($5 \mu\text{g}/\text{m}^3$) in het CAR-model wordt overschat. De meetwaarden op de achtergrondlocaties gaven echter een jaargemiddelde achtergrondconcentratie van $2.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in Tilburg. In Figuur 3.8b zijn de herberekende CAR-waarden met een stadsachtergrond van ($2.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$) weergegeven. De relatie tussen gemeten en berekende benzeenconcentraties is verbeterd maar de correlatie tussen de berekende en gemeten waarden blijft zwak. Onafhankelijk van een stadsachtergrond van 2.4 of $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bedraagt de correlatiecoëfficiënt slechts 0.46.

Het verdient aanbeveling om in vervolgonderzoek meer aandacht aan de vergelijking tussen benzeen concentraties zoals berekend met CAR en gemeten waarden te

besteden. Dit ondersteunt de wenselijkheid om meer metingen aan benzeen en aan overige verkeersgerelateerde componenten in de stad uit te voeren.

4. Maastricht

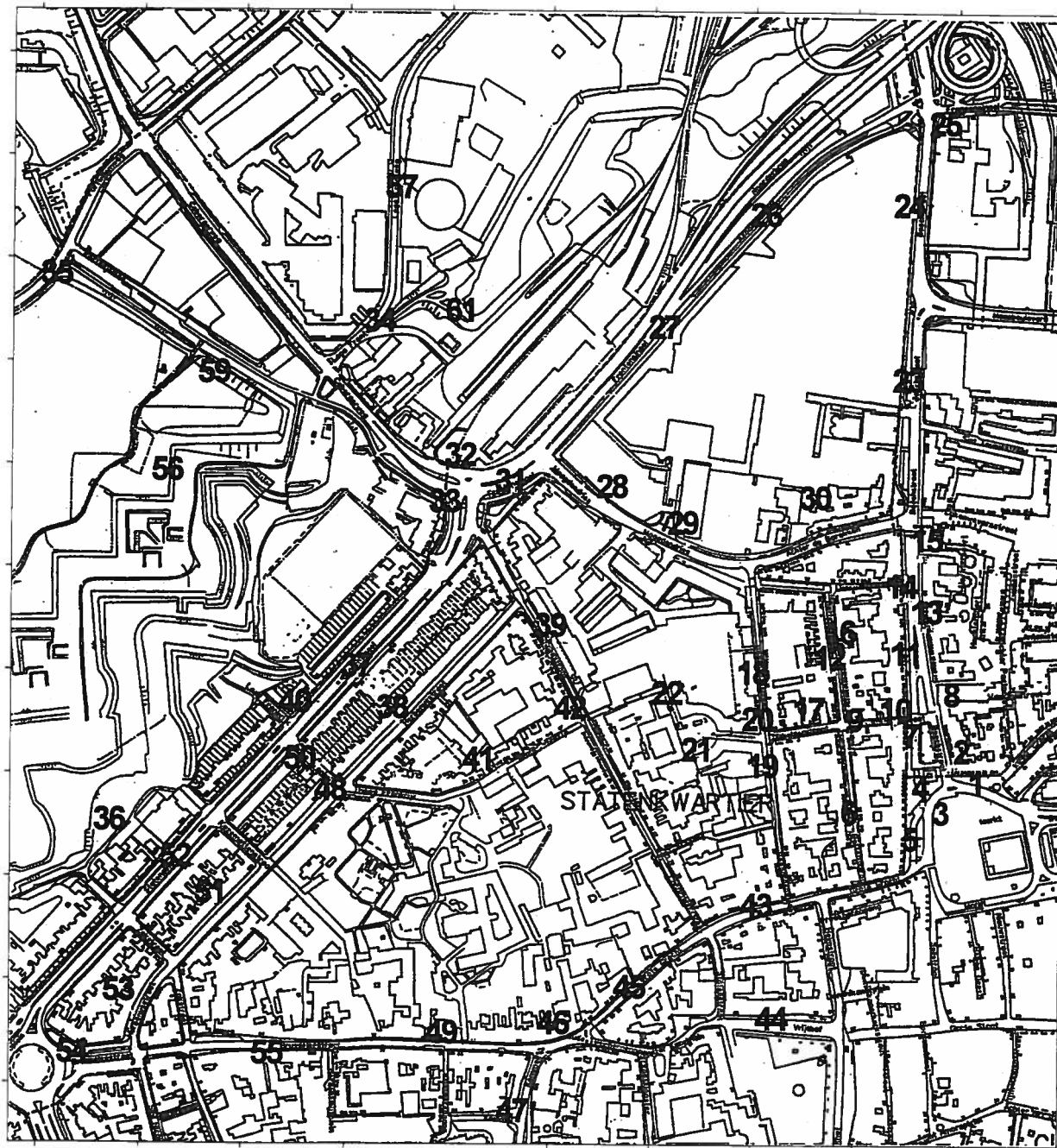
4.1 Meetstrategie

Het meetgebied beslaat een oppervlakte van 1 km x 1 km en bevindt zich in het centrum van Maastricht. In Figuur 4.1 zijn de meetlocaties in het stratenplan van het meetgebied aangegeven.

Door het meetgebied lopen een aantal drukke wegen: diagonaal van zuidoost naar noordwest liggen de Statensingel (11500 voertuigen per etmaal) en de Frontensingel (40700 voertuigen per etmaal). Het noordwestelijke gedeelte van het meetgebied beslaat een industrieterrein met o.a. een spoorwegemplacement.

Er zijn in totaal 61 passieve monsternemers in het gebied geplaatst. De monsternemers zijn geplaatst langs doorgaande en secundaire wegen in het meetgebied. Aan de oostelijke kant van het gebied is het meetnet verdicht: binnen een oppervlak van 300 x 300 meter ten noordwesten van de Markt zijn 20 monsternemers geplaatst. Verder is in de nabijheid van een drukke busroute gemonsterd en aan de ingang van een grote keramische fabriek voor het meten van industriële emissies. Tenslotte zijn badges geplaatst bij diverse achtergrondlocaties zoals een natuurgebied bij de stadswallen. Dit ten behoeve van de bepaling van de stadsachtergrond.

Op locatie 39 zijn door de firma Syntech Spectras directe metingen uitgevoerd aan de componenten benzeen, toluen, p- en o-xyleen en ethylbenzeen. De metingen zijn uitgevoerd in de periode 15-22 september 1995: de eerste week van de bemonsteringsperiode van de passieve monsternemers. In sectie 4.3 wordt nader ingegaan op de resultaten van deze metingen.



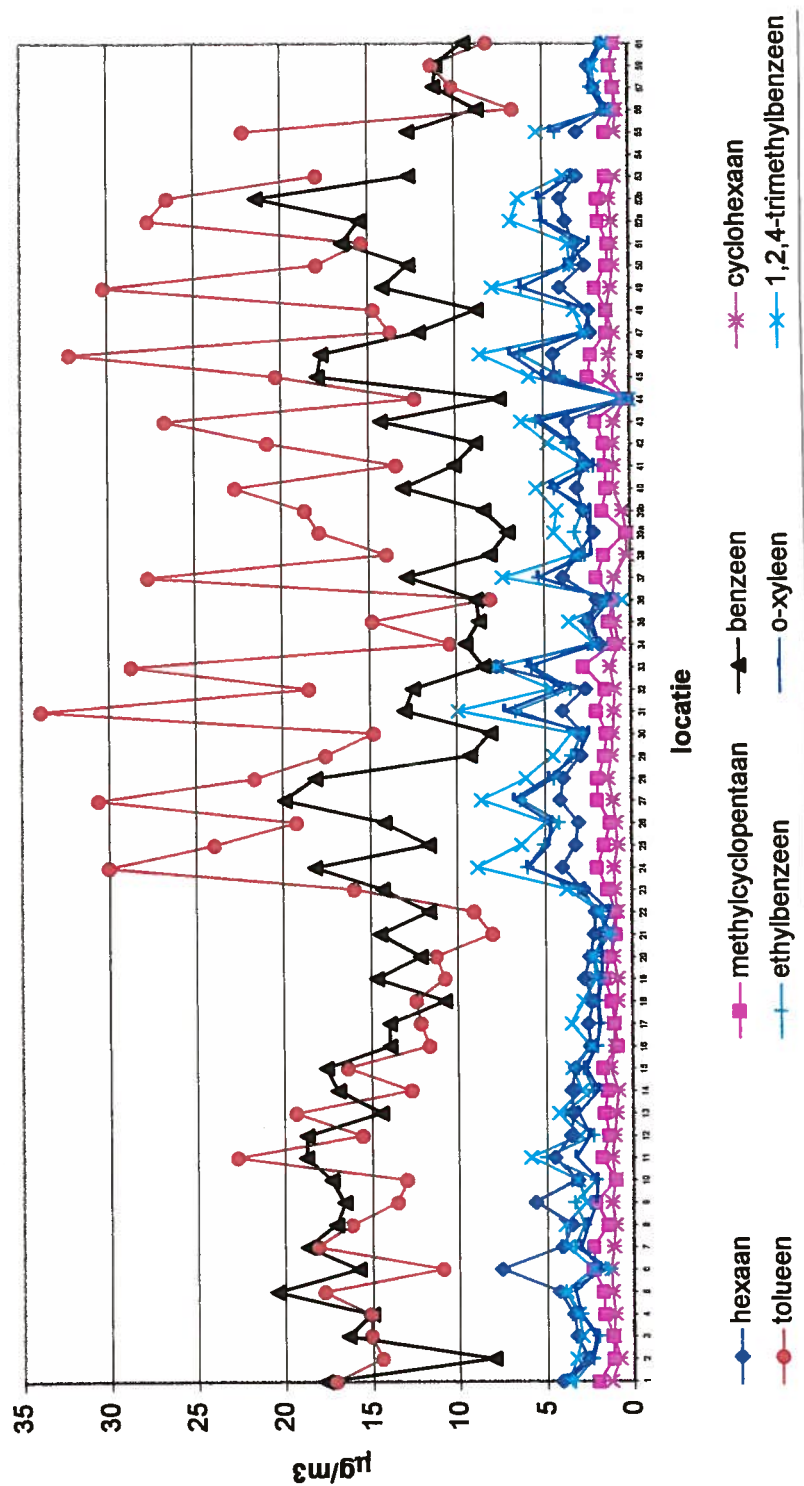
Figuur 4.1 Meetlocaties in Maastricht.

4.2 Resultaten

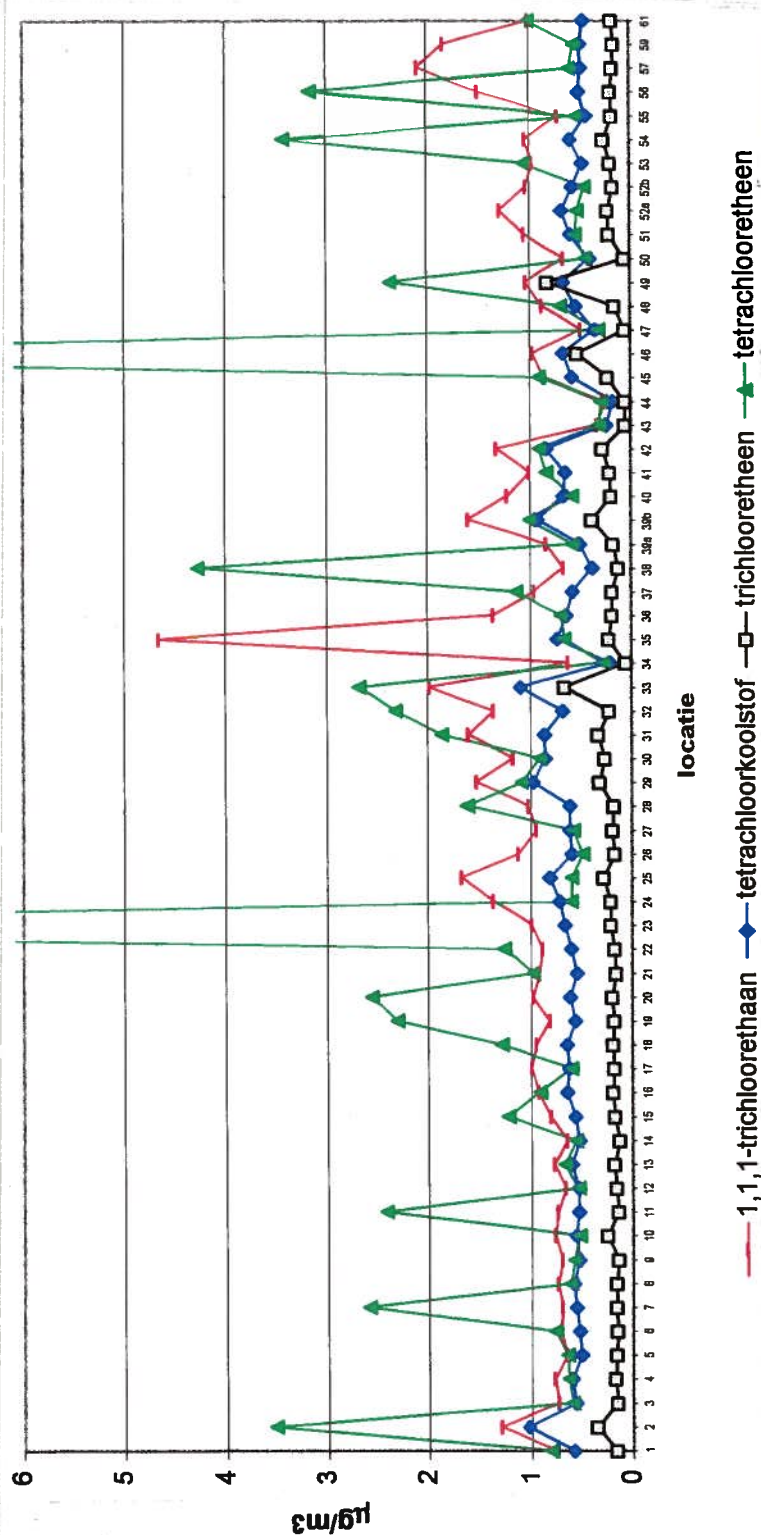
In de periode van 14 tot en met 28 september 1995 zijn op een 61-tal meetlocaties de luchtconcentraties van 19 koolwaterstoffen gemeten. Op twee locaties zijn duplo metingen uitgevoerd en er zijn drie blanco passieve monsternemers geanalyseerd. In de meeste gevallen is een luchtmonster verzameld op ongeveer 2.75 meter hoogte nabij de stoeprand. Bij twee meetlocaties zijn de monsters na afloop van de meetcampagne niet teruggevonden. Van één monsternemer (locatie 54) zijn alleen de gechloreerde koolwaterstoffen geanalyseerd.

Van 7 componenten waren de concentraties beneden de detectiegrens: styreen ($< 1.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$), dichloorethaan ($< 0.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 1,2,3-trimethylbenzeen ($< 0.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$), nonaan ($< 0.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$), decaan ($< 1.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$), undecaan ($< 0.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$) en dodecaan ($< 1.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$). Overigens is het mogelijk de detectiegrens te verbeteren door de monstername periode te verlengen.

De reproduceerbaarheid (met een betrouwbaarheid van 68%) van de twee duplo metingen was kleiner dan 10% voor de componenten met een luchtconcentratie boven de detectiegrens. De blanco's waren beneden de detectiegrens met uitzondering van toluen ($1.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 1,1,1-trichloorethaan ($0.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$) en tetrachlooretheen ($0.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$). De meetresultaten zijn voor de blanco waarden gecorrigeerd. In Figuur 4.2A en B zijn de tweewekelijkse gemiddelde luchtconcentraties weergegeven per verbinding en per meetlocatie in Maastricht.



Figuur 4.2a De tweewekelijkse gemiddelde luchtconcentraties in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ per verbinding en per meetlocatie in Maastricht voor hexaan, methylcyclopentaaan, benzeen, cyclohexaan, toluen, ethylbenzeen, o-xyleen en 1,2,4-trimethylbenzeen.



Figuur 4.2b De tweewekelijkse gemiddelde luchtconcentraties in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ per verbinding en per meetlocatie in Maastricht voor 1,1,1-trichloorethaan, tetrachloorkoolstof, trichlooretheen en tetrachlooretheen (locaties 23 en 46: 14.7 en 11.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$).

Tijdens het onderzoek was de windrichting gemiddeld 205 graden met een standaard afwijking van 80 graden en varieerde van 50 tot 357 graden. De gemiddelde windsnelheid over de meetperiode was 4.3 m/s met een standaard afwijking van 2 m/s in een range van 2.1 tot 9.3 m/s. De gemiddelde windsnelheid ligt iets hoger dan de jaargemiddelde waarde voor Nederland.

4.2.1 Ruimtelijke interpolatie van meetresultaten

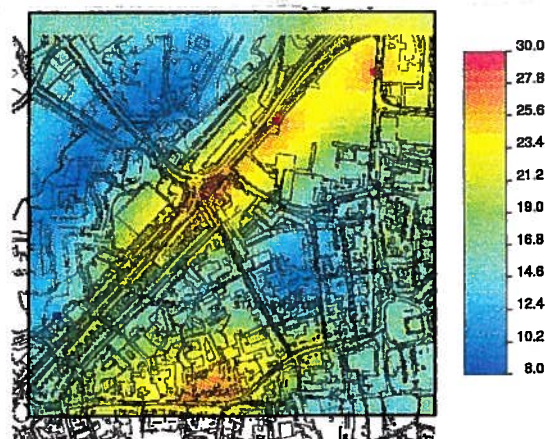
Door middel van interpolatie technieken worden kaarten geconstrueerd waarop de luchtconcentraties per verbinding zijn ingetekend op de plattegrond van het meetgebied. Deze kaarten ondersteunen de identificatie van bronnen en het inschatten van concentratie gradiënten in de stad. Er wordt aangetekend dat de gebruikte interpolatie techniek geen rekening houdt met de invloed van bebouwing op de verspreiding van luchtverontreiniging. Het gevolg is dat luchtverontreiniging afkomstig van bijvoorbeeld een doorgaande weg die loopt voor een bebouwing, achter deze bebouwing te hoog wordt ingeschat. In het vervolgonderzoek in Rotterdam wordt gepoogd de ruimtelijke interpolatie te verbeteren.

Verkeersgerelateerde luchtconcentraties

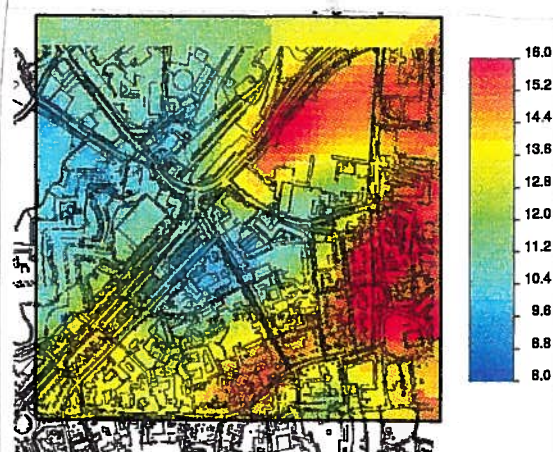
Vier verkeersgerelateerde stoffen: toluen, ethylbenzeen, o-xyleen en 1,2,4-trimethylbenzeen hebben een vrijwel identiek ruimtelijke patroon, hoewel de luchtconcentratie niveaus onderling verschillen. In Figuur 4.2 is ter illustratie van de verkeersbelasting, de ruimtelijke verdeling over het meetgebied van de luchtconcentraties van toluen weergegeven.

Op de kaart van toluen zijn verhoogde concentraties langs de doorgaande wegen te onderscheiden: de Bosschstraat, de Frontensingel, de Statensingel en de Brusselsestraat-Grote Gracht. De hoogste concentraties worden gevonden bij de kruispunten. De laagste toluen concentraties zijn gevonden in een verkeersvrij woongebied (locaties 21 en 22) en bij de stadswallen (locaties 36 en 56) (zie figuur 4.1). Opvallend is het afwijkende ruimtelijke patroon van benzeen, dat is weergegeven in Figuur 4.3.

De verkeersbelaste gebieden die de kaart van toluen te zien geeft, zijn ook bij benzeen te onderscheiden. Echter, het gebied bij de Markt vertoont een verhoogde benzeen concentratie ten opzichte van toluen. Bij de andere verkeersbelaste locaties en ook bij eerder onderzoek [20,25] is een verhouding toluen/benzeen gemeten van 2 á 3, terwijl deze verhouding rondom de Markt nagenoeg gelijk is aan 1. Verder zijn ook de cyclohexaan concentraties in dit gebied verhoogd. Met behulp van een CMB-analyse (zie sectie 4.2.4) wordt aannemelijk gemaakt dat dit gebied extra belast is door dieselmotoren.



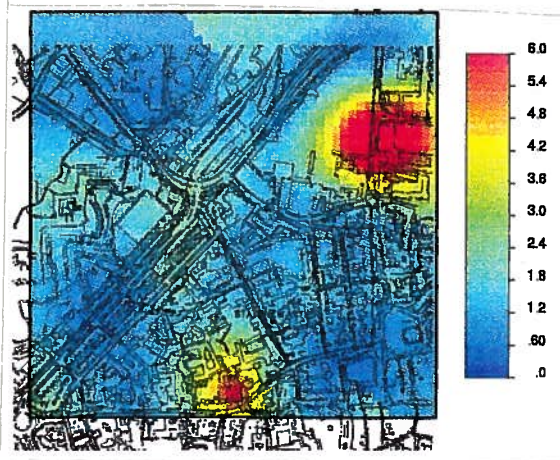
Figuur 4.3
Ruimtelijke verdeling van toluen
($\mu\text{g}/\text{m}^3$) in Maastricht.



Figuur 4.4
Ruimtelijke verdeling van benzeen
($\mu\text{g}/\text{m}^3$) in Maastricht.

Gechloreerde koolwaterstoffen

In Figuur 4.5 wordt de ruimtelijke verdeling van tetrachlooretheen in Maastricht weergegeven. Twee hoge piekconcentraties van tetrachlooretheen op locaties 23 ($14.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$) en 46 ($11.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$) zijn opvallend. Deze hoge concentraties zijn mogelijk veroorzaakt door een lokale bron of een incidentele piekbelasting. Omringende locaties laten echter geen verhoogde concentratie zien. Een incidentele piekbelasting of een meetfout kan voor deze twee gevallen niet worden uitgesloten. Echter, de mogelijkheid van een lokale bron als oorzaak voor de hoge concentratie bij locatie 23 (zie figuur 4.1) wordt onderbouwd doordat locatie 23 was opgezet bij de hoofdingang van een grote keramische fabriek en in de vrije aanstroom (bij noordoostelijke wind) van een papierfabriek. Een andere mogelijkheid is het (vervuilde?) bassin even ten oosten van locatie 23 als bron voor tetrachlooretheen emissies.



Figuur 4.5 *Ruimtelijke verdeling van tetrachlooretheen ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) in Maastricht.*

De ruimtelijke verdeling vertoont verder verhoogde concentraties in drie gebieden i.) rondom locaties 31, 32 en 33, ii.) rondom locaties 18, 19 en 20 en iii.) rondom locaties 2, 7 en 11 (zie figuur 4.1). Hiervoor zijn geen mogelijke lokale bronnen gevonden.

Voor een nadere analyse is echter aanvullende informatie gewenst over potentiële lokale bronnen. Bovenstaand voorbeeld illustreert de noodzaak om lokale informatie over mogelijke bronnen (e.g. bedrijfstak, productieproces en mogelijke emissies) te combineren met gemeten verhogingen alvorens een stadsbron kan worden geïdentificeerd.

4.2.2 Vergelijking van luchtconcentraties in Maastricht met de regio en een industrieel complex

De gemiddelde tweewekelijkse concentraties voor het meetgebied in het centrum van Maastricht zijn berekend. Deze waarden zijn weergegeven in Tabel 4.1. Om te onderzoeken in hoeverre de concentraties in Maastricht verhoogd zijn t.o.v. de regio, zijn ze vergeleken met, ongeveer gelijktijdig gemeten, weekgemiddelde luchtconcentraties op het nabijgelegen regionaal meetpunt te Wijnandsrade. Deze meetlocatie is niet door lokaal autoverkeer of andere industriële bronnen beïnvloed [21]. Tevens zijn de luchtconcentraties van benzeen en tolueen in een chemisch complex in Nederland [24] aangegeven in Tabel 4.1.

Tabel 4.1 Luchtconcentraties in Maastricht (tweewekelijks gemiddelde), in regionaal station Wijnandsrade (weekgemiddelde) en een chemisch complex in Nederland (jaargemiddelde).

	concentraties in Maastricht [µg/m ³] 15-28 sept 1995	concentraties in Wijnandsrade [µg/m ³] 19-26 sept 1995	typische concentraties chemisch complex [µg/m ³]
hexaan	3.2	0.4	
methylcyclopentaan	1.5		
benzeen	13.5	1.3	7
cyclohexaan	1.0		
tolueen	17.3	3.4	11
ethylbenzeen	3.3	0.8	
o-xyleen	3.2		
1,2,4-trimethylbenzeen	4.1	0.8	
1,1,1-trichloorethaan	1.1	0.6	
tetrachloorkoolstof	0.6		
trichlooretheen	0.2	0.4	
tetrachlooretheen	1.1	0.3	

Uit de gegevens in Tabel 4.1 blijkt dat de concentraties van verkeersgerelateerde stoffen in Maastricht verhoogd zijn t.o.v. de regio, in het bijzonder voor benzeen. De luchtconcentraties voor benzeen en tolueen in de stad tijdens de meetperiode

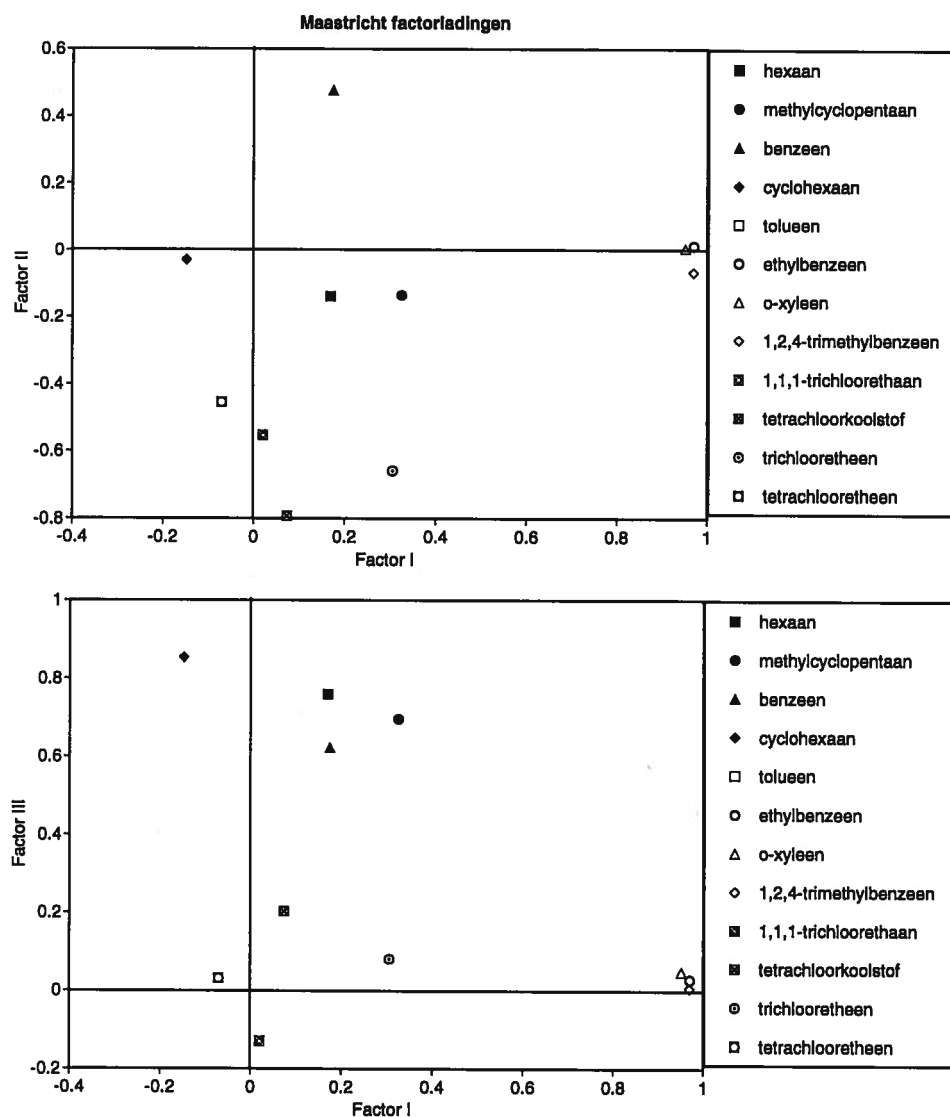
zijn aanzienlijk hoger dan op een chemisch complex. Deze cijfers rechtvaardigen de toegenomen zorg om de stedelijke luchtkwaliteit.

4.2.3 Factoranalyse

Met behulp van factoranalyse worden bronnen geïdentificeerd, die bijdragen aan de luchtconcentraties in Maastricht. Uit de analyse bleek dat een totaal van drie factoren het gemeenschappelijke deel van de variabiliteit van de 12 componenten bepaalt. De drie factoren verklaren 77% van de totale variabiliteit van de luchtconcentraties van de twaalf stoffen. De resterende 23% kan worden toegeschreven aan de unieke variantie van de luchtconcentraties van de twaalf stoffen. In Figuur 4.6 zijn de factorladingen van de gemeten stoffen op elk van de drie factoren grafisch weergegeven.

Uit Figuur 4.6 blijkt dat één groep componenten “clusteren” en dus een sterke onderlinge correlatie vertonen: toluen, ethylbenzeen, o-xyleen en 1,2,4-trimethylbenzeen. Deze stoffen hebben allen een hoge lading op factor I. Minder overtuigend is het drietal met hoge ladingen op factor II: 1,1,1-trichloorethaan, tetrachloorkoolstof en trichlooretheen, en op factor III: benzeen, hexaan, methylcyclopentaan en cyclohexaan. Tetrachlooretheen vertoont met geen enkele andere component ook maar enige mate van correlatie en valt dus buiten de drie factoren: deze stof heeft op geen van de factoren een hoge lading.

Evenals in Tilburg zijn verkeersemisies overheersend de oorzaak voor de luchtconcentraties van de niet-gechloreerde koolwaterstoffen in Maastricht. De stoffen met hoge ladingen op factor I zijn bepaald door verkeersemisies (benzine- en dieselmuitstoot in de reguliere verhouding). De interpolatie kaarten van deze vier stoffen laten een associatie zien met verkeersbelaste gebieden. De componenten met een hoge lading op factor III zijn gerelateerd aan dieselmuitstoot. Factor II vertegenwoordigt de drie gechloreerde koolwaterstoffen en indiceert emissies door lokale industrie (e.g. verfspuiterijen, drukkerijen, ontvettingsprocessen). Kennis van het aantal mogelijke bronnen en emissies in het centrum van Maastricht is te beperkt om met het toegepaste meetnet een nadere identificatie van deze laatste bronnen uit te voeren.

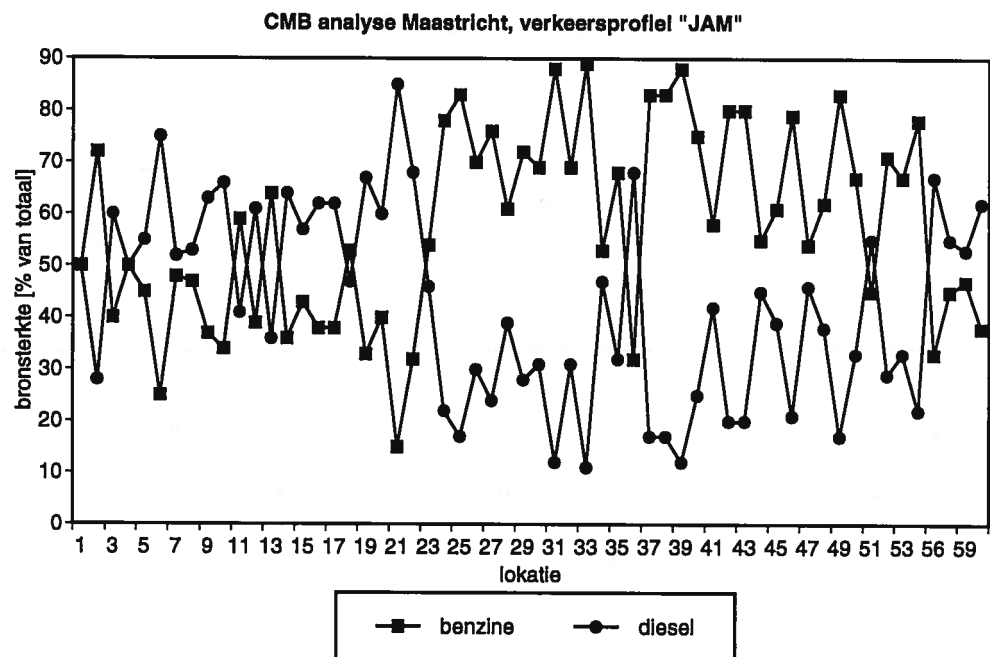


Figuur 4.6 De factorladingen van de gemeten stoffen op elk van de drie factoren.

4.2.4 Chemical Mass Balance (CMB)

Met de CMB-methode is het mogelijk de bijdragen van verschillende bronnen aan de luchtconcentraties te schatten. Omdat factoranalyse met name de verkeersemis-sies van benzine- en dieselloertuigen als lokale bronnen identificeerde is CMB voor verkeersgerelateerde luchtconcentraties toegepast. Voor een zestal koolwater-stoffen zijn experimenteel bepaalde profielen beschikbaar van de uitstoot van ben-zine- en van dieselmotoren [21]: benzeen, cyclohexaan, tolueen, ethylbenzeen, o-xyleen en 1,2,4-trimethylbenzeen. Deze profielen zijn geschikt om gebruikt te worden in een CMB-analyse van de meetreeksen van deze zes componenten. Fi-

guur 3.6 toont de twee profielen van diesel en benzine emissies voor het 'JAM' rijgedrag. Deze profielen vertegenwoordigen de emissies van stagnerend verkeer in de stad. Figuur 4.7 toont voor alle locaties in Maastricht de berekende bronbijdrage van benzine- en dieseluutstoot aan de totale concentratie van het zestal verkeersgerelateerde koolwaterstoffen.



Figuur 4.7 De met CMB berekende bronsterktes van benzine- en dieseluutstoot voor alle meetlocaties in Maastricht.

De bronbijdrage van diesel overschrijdt in het gebied rondom de Markt (locaties 1 t/m 20; zie Figuur 4.1) de bijdrage van benzine. De verhouding in de bijdragen van diesel versus benzine is in dit gebied gemiddeld 50%/50%. Deze afwijkende benzine/diesel verhouding in vergelijking met "normaal" stadsverkeer is in overeenstemming met nadere informatie van de Gemeente Maastricht, dat circa 200 diesel bussen per uur het busstation op de Markt passeren, terwijl de Markt slechts beperkt toegankelijk is voor ander verkeer. Voor de overige meetlocaties in Maastricht op doorgaande wegen komt de verhouding tussen diesel- en benzine-uitstoot dicht bij de resultaten van de metingen in Tilburg. Gemiddeld bedroeg de verhouding tussen de bronbijdragen van benzine en van diesel, respectievelijk 70% en 30% voor deze meetlocaties in Maastricht.

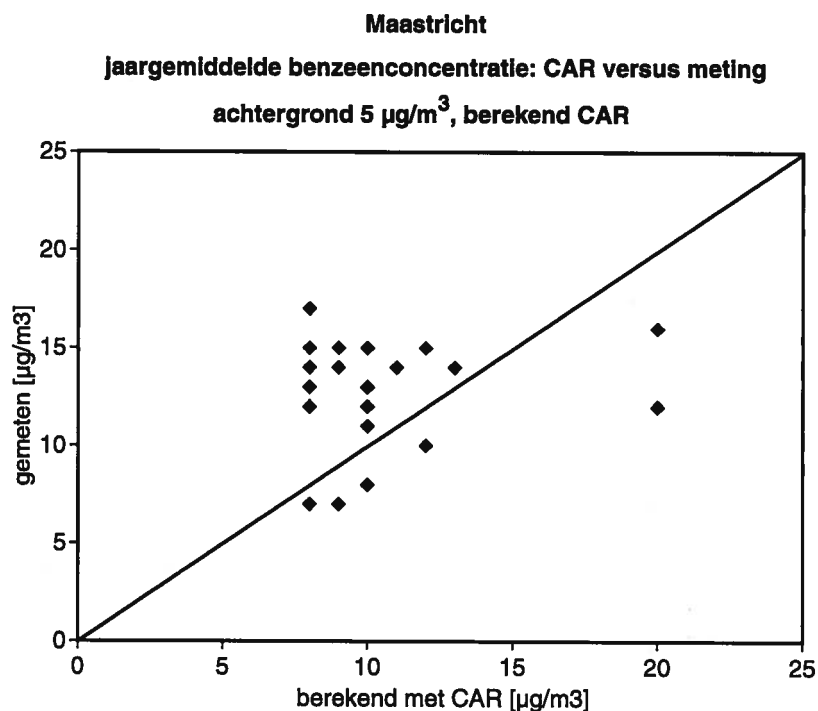
4.2.5 Verspreidingsmodellen op stedelijke schaal

Voor de bepaling van de verspreiding van verkeersgerelateerde luchtverontreiniging in Maastricht is het gewenst de stadsachtergrond te bepalen. Deze stadsachtergrond is opgebouwd uit een regionale achtergrond plus een bijdrage van het

bovenwindse gedeelte van de stad. De gemeten concentraties van de verkeersgerelateerde componenten in een verkeersvrije woonwijk (21 en 22) en het park achter de stadswallen (36 en 56) geven een eerste orde schatting voor de stadsachtergrond. Vanwege de wettelijke normstelling is aandacht besteed aan benzeen. De gemiddelde tweewekelijkse benzeen concentratie in de stadsachtergrond gebieden is $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Gecorrigeerd voor de seizoensinvloed met een factor 1.1 voor september (zie sectie 2.3.4) resulteert dit in een waarde $9 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Deze waarde voor de stadsachtergrond in Maastricht is relatief hoog in vergelijking met stadsachtergrond voor benzeen in Tilburg ($2.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$; sectie 3.2.4) en Amsterdam ($<4.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$; [26]). Mogelijk is dit het gevolg van de ligging van Maastricht in het Maasdal, waardoor luchtconcentraties worden geconcentreerd onder bepaalde meteorologische condities. Nader onderzoek is nodig om deze hypothese te toetsen.

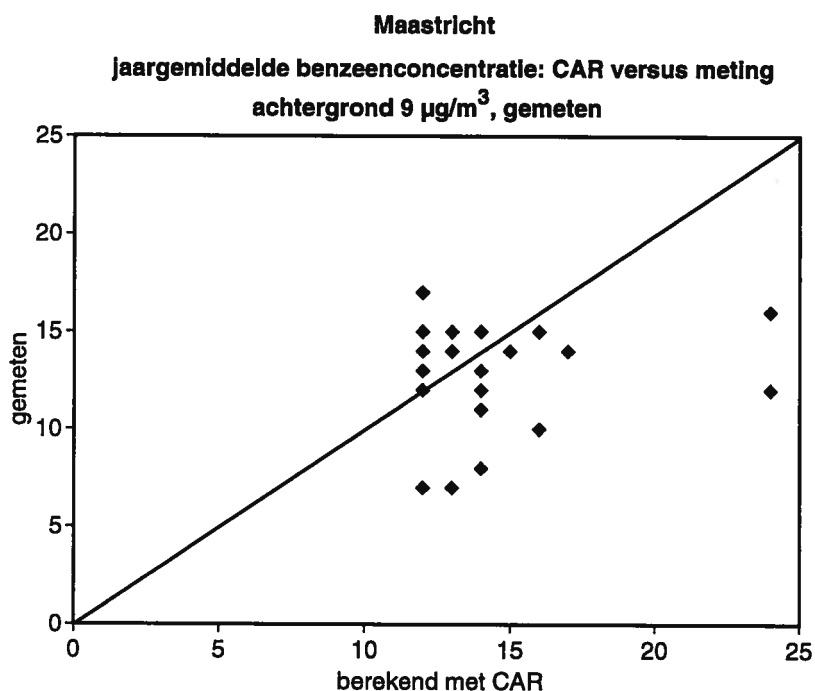
Het CAR-model is het meest toegepaste model in Nederlandse steden voor het berekenen van verkeersgerelateerde benzeen concentraties. Met het CAR-model kunnen concentraties van benzeen langs wegen worden berekend ter hoogte van de stoeprand op 1.5 meter hoogte. Tijdens dit onderzoek zijn de monsters langs drukke wegen verzameld op 2.75 meter hoogte van verkeersborden. De meetresultaten van benzeen zijn gecorrigeerd met een factor 1.1 voor seizoensinvloeden en met een factor 1.1 voor het hoogteverschil in het CAR-model [24].

Voor 23 meetlocaties in Maastricht langs doorgaande wegen zijn de gemeten benzeen concentraties vergeleken met berekende concentraties door het CAR-model. In Figuur 4.8a zijn de geëxtrapoleerde jaargemiddelde benzeen concentraties uitgezet tegen de waarden van de verkeersmilieukaart voor 1994, zoals opgesteld door de gemeente.



Figuur 4.8a De geëxtrapoleerde jaargemiddelde benzeen concentraties uitgezet tegen de waarden van de verkeersmilieukaart in Maastricht voor 1994.

Naast het absolute verschil tussen de berekende en gemeten concentraties is opvallend dat de twee reeksen slecht correleren; de correlatiecoëfficiënt bedraagt slechts 0.12. Het eerste vindt waarschijnlijk zijn oorzaak in een onderschatting van de stadsachtergrond concentratie voor benzeen in Maastricht. CAR berekent hiervoor 5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ terwijl de meetwaarden op de achtergrond locatie een benzeen concentratie van circa 9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ aangeven. De slechte correlatie geeft aan dat óf de verkeersdichtheden in de meetperiode fout zijn ingeschat, óf dat de verspreidingscondities in de straten verschillen van de door CAR aangenomen condities. In Figuur 4.8b zijn de benzeenconcentraties met CAR herberekend voor een stadsachtergrond van 9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. De relatie tussen gemeten en berekende CAR-waarden is weliswaar verbeterd maar de slechte correlatiecoëfficiënt van 0.12 blijft opvallend.



Figuur 4.8b De geëxtrapoleerde jaargemiddelde benzeen concentraties uitgezet tegen de waarden van de verkeersmilieukaart in Maastricht voor 1994.

Het verdient aanbeveling om in vervolgonderzoek meer aandacht te besteden aan de vergelijking van benzeen concentraties zoals berekend met CAR. Dit ondersteunt de wenselijkheid om meer benzeen (en overige verkeersemissies) metingen in de stad uit te voeren.

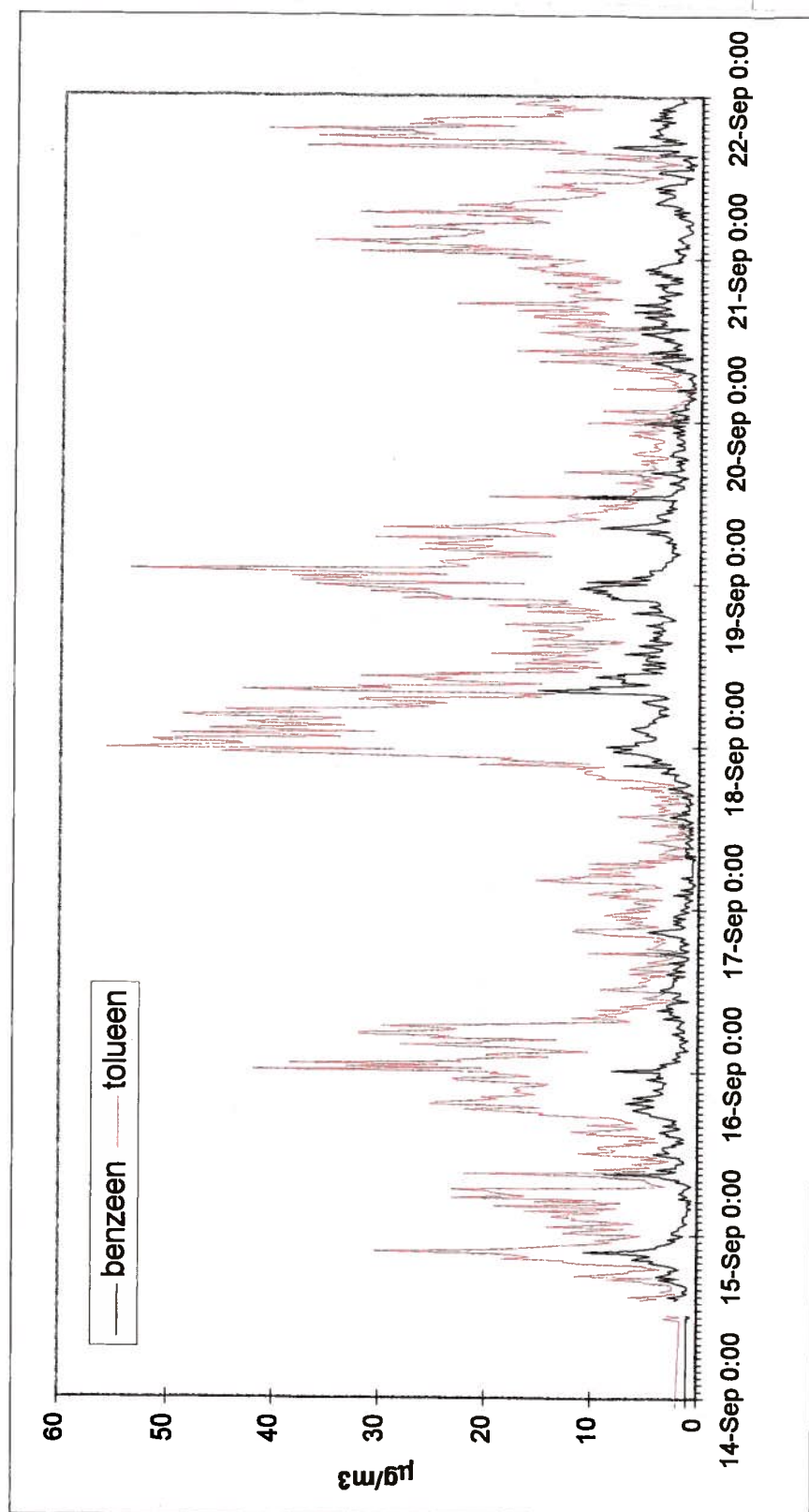
4.3 Resultaten directe metingen

In de eerste week van de meetperiode zijn op locatie 39 (zie Figuur 4.1) door Syntech Spectras directe metingen uitgevoerd naar de componenten benzeen, toluen, o- en p-xyleen en ethylbenzeen. Van de eerste twee componenten zijn concentraties beschikbaar, van de laatste drie alleen gaschromatogrammen. De metingen werden elk kwartier uitgevoerd. Locatie 39 bevindt zich langs een rustige weg op 150 meter van een druk kruispunt. De directe metingen en de passieve monsternamen zijn op dezelfde positie aan de voorgevel van een brandweerkazerne uitgevoerd.

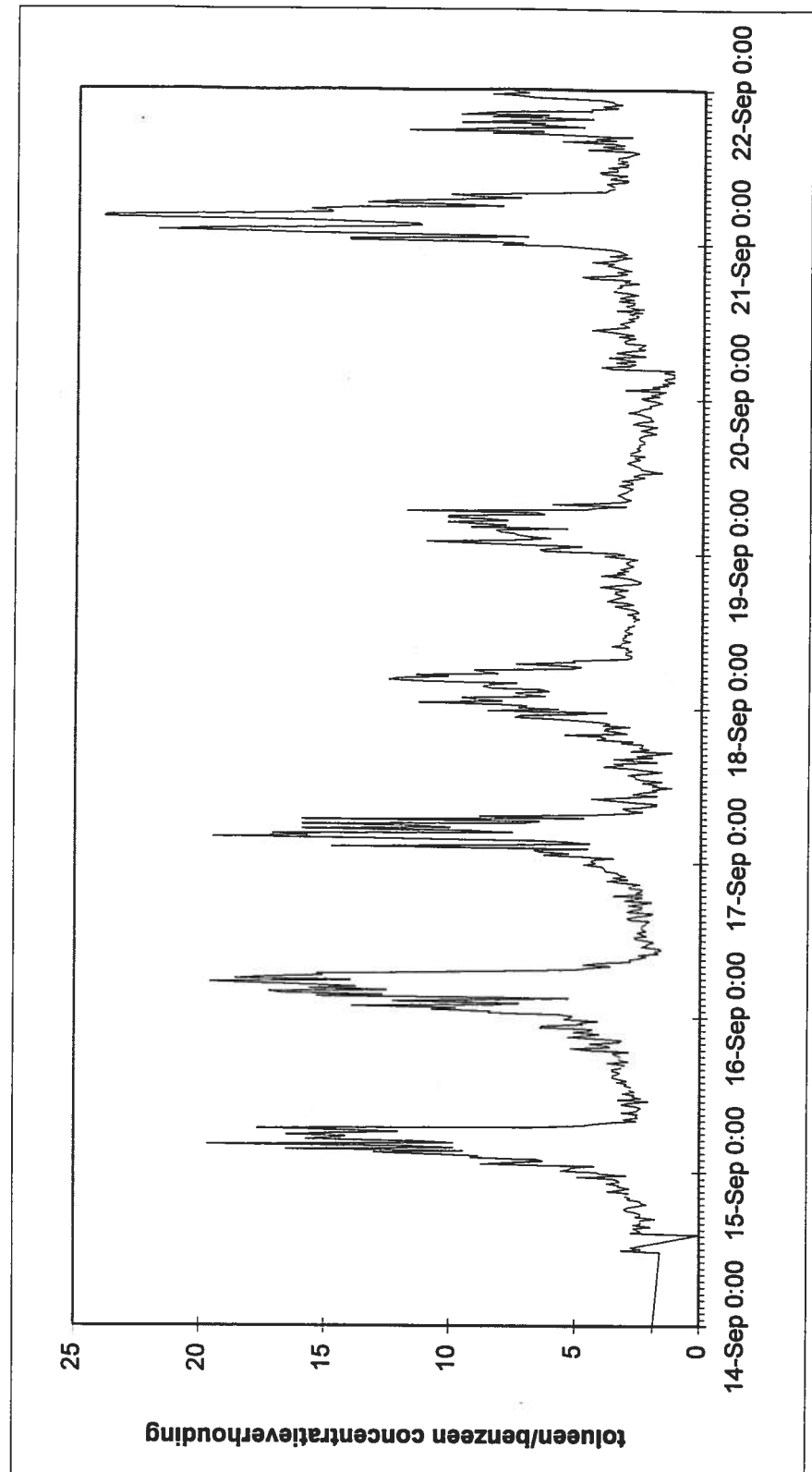
In Figuur 4.9A staan de resultaten voor benzeen en toluen weergegeven. Opvallend is dat op bijna alle dagen een forse toename in de concentratie, vooral van toluen, optreedt in de avond met maximale waarden na middernacht. Figuur 4.9B toont de toluen/benzeen verhouding. Hier is zichtbaar dat 's avonds de tolu-

een/benzeen verhouding wordt opgebouwd tot een factor 20. Bij het aanbreken van de dag 'stort' de verhouding weer in tot een waarde rond de 2 á 3. De constante nachtelijke toluen/benzeen verhouding op 15, 16 en 17 september onafhankelijk van de absolute toluen en benzeen concentraties zijn opvallend.

Deze resultaten wijzen op het bestaan van een lokale toluen bron, die vooral 's nachts actief is. Overdag worden benzeen en toluen concentraties voornamelijk bepaald door verkeersemisies gezien de waarde van de toluen/benzeen verhouding van 2 á 3. Verhoging van lucht concentraties in de nacht door de sterk verminderde menging in de stabiele, nachtelijke atmosfeer voldoet niet als verklaring voor de verhoogde toluen concentraties, omdat dan de verhouding van toluen/benzeen constant zou blijven en niet oplopen tot een factor 20. De hoge toluen/benzeen verhouding van de onbekende bron wijst in de richting van een verf of lak bron (bijv. recente schilder werkzaamheden) ontinkten van drukkerijmachines of nachtelijke lozing van toluen. Meer directe metingen gelijktijdig op diverse locaties in Maastricht kunnen inzicht verschaffen in dit probleem.



Figuur 4.9a Benzeen en toluen concentraties in Maastricht op locatie 39 gemeten met directe detectie.



Figuur 4.9b Tolueen/benzeen concentratie-verhouding op locatie 39 gemeten met directe detectie.

5. Discussie

5.1 Passieve monstername

Een dicht meetnet voor het bepalen van luchtverontreiniging in stedelijke omgeving is gewenst vanwege de ruimtelijke variatie veroorzaakt door i.) lokale bronnen en ii.) de complexe verspreiding van luchtverontreiniging in stedelijke omgeving. Passieve monstername biedt de mogelijkheid een meetnet in te richten met een hoge ruimtelijke resolutie. De voordelen van passieve monstername t.o.v. actieve monstername en/of directe meting zijn de lage kosten en het ontbreken van (elektrische) apparatuur. Dit maakt simultane monstername haalbaar op een groot aantal (geïsoleerde) locaties. Het belangrijkste nadeel van passieve monstername is de relatieve lage “bemonsteringssnelheid” in de orde van maximaal enkele tientallen ml per minuut. De afgelopen jaren is passieve monstername in de buitenlucht voornamelijk toegepast voor BETX, NO_x, formaldehyde, ozon en ammoniak. Vanwege de gevoeligheid van de huidige analyse technieken is een monstername periode noodzakelijk van enkele dagen tot weken voor buitenlucht concentraties van eerder genoemde verbindingen. Door deze relatief lange bemonsteringstijd gaat de relatie met meteorologische data veelal verloren. Passieve monstername is dan ook bij uitstek geschikt voor inventariserend onderzoek naar i.) de ruimtelijke variatie van luchtkwaliteitsniveaus, ii.) het (her)inrichten van meetnetten en iii.) het blootstelling risico van luchtverontreiniging gedurende langere perioden. Echter, de resultaten van directe metingen van luchtconcentraties van toluene en benzeen in Maastricht en vergelijking van gemeten benzeen luchtconcentraties met berekeningen door het CAR-model in Tilburg en Maastricht, illustreren de wenselijkheid om passieve monstername (tijdelijk) te combineren met directe metingen en model berekeningen.

De afgelopen jaren wordt in toenemende mate passieve monstername toegepast, maar het ontbreekt nog aan voldoende validatie onder buitenlucht omstandigheden. Met name de invloed van de temperatuur en windsnelheid vereist nader onderzoek en verder is behoefte aan uitbreiding van passief te bemonsteren componenten (bijv. HNO₂, benzo(α)pyreen, bestrijdingsmiddelen). In Europees verband wordt gewerkt aan het opstellen van een passieve monstername protocol en een “Life” gefinancierd project vergelijkt diverse passieve monsternemers onder verschillende klimaat condities. TNO heeft in het verleden diverse passieve monstername methoden vergeleken met actieve monstername in verschillende meetcampagnes van BETX. Echter, het ontbreekt nog aan een systematische vergelijking gedurende een jaar van actieve en passieve monstername van BETX.

5.2 Factor analyse en Chemical Mass Balance

Factoranalyse van de meetwaarden levert inzicht in de achterliggende processen, die bepalend zijn voor de gemeenschappelijke variatie van luchtconcentraties van groepen verbindingen. Bij luchtonderzoek zijn deze processen bijvoorbeeld i.) aanvoer van luchtverontreiniging uit een bepaalde windrichting, ii.) emissies door een gemeenschappelijke bron (verkeer, industrie, landbouw) en iii.) meteorologische condities zoals inversie. Factor analyse als zodanig is een gestandaardiseerde methode, die beschikbaar is in diverse computer programma's, maar interpretatie van de gevonden factoren vereist ervaring en kennis op het gebied van luchtverontreiniging onderzoek.

Chemical Mass Balance is een relatief eenvoudige methode, waarmee de bijdragen van verschillende bronnen (geïdentificeerd met behulp van factoranalyse) aan de gemeten luchtconcentraties kan worden bepaald. Voor CMB-analyse zijn computerprogramma's beschikbaar. Echter, het ontbreekt veelal aan profielen ("fingerprint") van emissies, waarmee bronnen worden gekarakteriseerd. Er is behoefte aan onderzoek naar karakteristieke profielen bijvoorbeeld door metingen in tunnels (uitstoot van diesel en benzine verkeer), bij benzine stations (verdamping van benzine), bij vliegvelden (opslag brandstof en uitstoot vliegverkeer), op bedrijfsterreinen (diffuse emissies) en op chemische complexen (diffuse emissies en uitstoot van grote verbrandingshaarden).

5.3 Model berekeningen

Via eenvoudige interpolatie technieken is het mogelijk luchtconcentraties te berekenen tussen diverse meetpunten. Echter, in een stedelijke omgeving levert interpolatie een sterk vertekend beeld van de werkelijke concentraties. Resultaten van metingen in Tilburg en Maastricht geven aan dat verontreinigende lucht door verkeer op doorgaande wegen nauwelijks tot verhoging leidt van luchtconcentraties op secundaire wegen, die door een huizenblok zijn gescheiden van de doorgaande wegen. Interpolatie van luchtconcentraties in stedelijke omgeving dient dan ook beperkt te blijven voor meetpunten langs wegen met gelijke verkeersdichtheden.

De resultaten in Tilburg en Maastricht geven aan dat zelfs langs een weg met gelijke verkeersdichtheid aanzienlijke verschillen optreden in verkeersgerelateerde luchtverontreiniging afhankelijk van stagnatie van het verkeer (o.a. bij kruispunten, verkeerslichten en file vorming). Met het huidige CAR-model worden de gevolgen voor luchtverontreiniging door dit verschil in rijgedrag (en dus verschil in bronsterkte) niet verrekend. Mogelijk wordt hierdoor in de verkeersmilieukaarten op gemeentelijk niveau een onderschatting gemaakt van het blootstellingsrisico van bewoners op kruispunten, bij verkeerslichten en filevorming.

De verschillen in de stadsachtergrond voor benzeen in Tilburg, Maastricht en Amsterdam met de waarden gebruikt in het CAR-model geven aan dat aanvullende

metingen wenselijk zijn. In de meetcampagne in Rotterdam wordt onderzocht in hoeverre de regionale en stads achtergrond met passieve monsternamen gemeten kan worden, waarna de resultaten in het CAR-model worden verwerkt. Meting van extra verkeersbelaste locaties en achtergrondsniveaus verbetert de verkeersmilieukaarten. Na verwerking van de resultaten in Rotterdam eind 1996 zal deze verbetering nader worden uitgewerkt.

De belasting van lokale industrie op direct omwonenden door o.a. gechloreerde koolwaterstoffen kan door passieve monsternamen worden gemeten. Modelberekening van de verspreiding van deze lokale luchtverontreiniging binnen woonwijken is nauwelijks mogelijk door de complexe verspreidingscondities in woonwijken. In Rotterdam wordt onderzocht in hoeverre vereenvoudigde modelberekeningen informatie geeft over deze lokale verspreiding. Resultaten van dit onderzoek zijn pas eind 1996 beschikbaar.

5.4 Luchtverontreiniging en gezondheid

In dit onderzoek is geen aandacht besteed aan de relatie van luchtverontreiniging en gezondheid. Ten aanzien van benzeen concentraties wordt geconstateerd dat op een aantal locaties de jaargemiddelde concentraties (waarschijnlijk) worden overschreden. Extrapolatie van een tweeweekelijkse meting naar een jaargemiddelde is echter zodanig onzeker dat geen conclusies voor gezondheidsrisico's mogelijk zijn.

Internationaal en in Nederlandse steden (o.a. Rotterdam, Amsterdam, Utrecht) is onderzoek gedaan naar de relatie van luchtverontreiniging en gezondheid. Hierbij gaat het veelal over de blootstelling aan fijn stof ($PM_{2.5}$ en PM_{10}) door kortdurige blootstelling tijdens episoden. Er zijn relatief weinig studies uitgevoerd naar verkeersbelasting en gezondheid. Een recent Nederlands onderzoek in Haarlem, waarbij bewoners langs drukke en rustige verkeerswegen werden vergeleken, suggereerde dat het wonen langs drukke wegen een nadelige invloed heeft op de respiratoire gezondheid (dit verband bleek met name bij kinderen en meer specifiek bij meisjes) [9]. In hoeverre fijn stof of gasvormige componenten of een combinatie van factoren verantwoordelijk zijn voor nadelige gezondheidseffecten is niet duidelijk. Meer onderzoek naar de ruimtelijke variabiliteit van (organische) microcomponenten in samenwerking met gezondheidsdiensten zoals de GGD is gewenst. Passieve monsternamen in combinatie met meer complexe metingen door actieve monsternamen en directe meting gedurende een langere periode is wenselijk. Hierbij zou incidentie van gezondheidsproblemen (aandoening van de luchtwegen) richtinggevend moeten zijn bij de opzet van een dergelijk onderzoek.

6. Conclusies en aanbevelingen

- 1 Passieve monsternamen zijn toegepast in het centrum van Tilburg (0.7 * 1.0 km) en Maastricht (1 * 1 km) gedurende een tweewekelijkse monsternamen periode in respectievelijk juni en september 1995. Het aantal meetlocaties in Tilburg en Maastricht was 48 en 61. De buitenlucht concentraties van de volgende 19 stoffen zijn gemeten: benzeen, toluen, ethylbenzeen, o-xyleen, 1,2,4-trimethylbenzeen, methylcyclopentaan, hexaan, cyclohexaan, 1,1,1-trichlooretheen, 1,1,1-trichloorethaan, tetrachlooretheen, tetrachloorkoolstof, styreen, dichloorethaan, 1,2,3-trimethylbenzeen, nonaan, decaan, undecaan en dodecaan.
- 2 In beide steden bleek na afloop van de campagne slechts één passieve monsternemer verdwenen. Van styreen, dichloorethaan, 1,2,3-trimethylbenzeen, nonaan, decaan, undecaan en dodecaan waren de gemeten luchtconcentraties beneden de detectiegrens. De reproduceerbaarheid van de gemeten luchtconcentraties is circa 12%, overeenkomstig eerder onderzoek [13] en met uitzondering van toluen ($1.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 1,1,1-trichloorethaan ($0.16 \mu\text{g}/\text{m}^3$) en tetrachlooretheen ($0.08 \mu\text{g}/\text{m}^3$) waren de blanco's lager dan de detectiegrens. De resultaten zijn gecorrigeerd voor deze blanco waarden.

3 Tilburg

- 3.1 In Tilburg vertoont de ruimtelijke weergave van de meetresultaten een verband tussen lokaal verkeer en industrie. De (geëxtrapoleerde) jaargemiddelde luchtconcentraties van benzeen in het centrum van Tilburg zijn in de orde van $7 \mu\text{g}/\text{m}^3$, terwijl de grenswaarde $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bedraagt. Echter, op een aantal verkeersbelaste locaties wordt door stagnerend verkeer deze grenswaarde waarschijnlijk overschreden.
- 3.2 In Tilburg levert factoranalyse drie groepen stoffen met een gemeenschappelijke variatie in de luchtconcentraties: I.) hexaan, methylcyclopentaan, benzeen, o-xyleen, ethylbenzeen, toluen en 1,2,4-trimethylbenzeen; II.) 1,1,1-trichloorethaan, tetrachloorkoolstof en trichlooretheen; en III.) cyclohexaan en tetrachlooretheen. De drie factoren verklaren 76% van de variatie van de gemeten luchtconcentraties van alle twaalf stoffen. Deze drie factoren duiden op de volgende drie processen, die bepalend zijn voor de lokale luchtkwaliteit: verkeersemissies (groep I), lokale industriële emissies (groep II) en emissies door diesel motoren en stomerij activiteiten (groep III). Het aantal meetlocaties is te beperkt om een betrouwbare interpretatie van de laatste twee factoren te geven.

- 3.3 In Tilburg is de luchtverontreiniging door verkeersemissies met Chemical Mass Balance nader beschouwd. Op doorgaande wegen bedraagt het aandeel benzine en diesel emissies, respectievelijk 80% en 20% voor verkeersgerelateerde luchtverontreiniging. In het verkeersvrije winkelgebied is het aandeel diesel emissies verhoogd tot 40% door toeleverings vrachtverkeer (hoewel het luchtverontreinigingsniveau in dit gebied uiteraard lager ligt dan op doorgaande wegen). Luchtconcentraties van verkeersgerelateerde stoffen rondom benzine stations en parkeergarages waren niet significant verhoogd t.o.v. de niveaus op doorgaande wegen.
- 3.4 In Tilburg zijn de (geëxtrapoleerde) jaargemiddelde benzeen concentraties (1995) vergeleken met berekeningen met behulp van het CAR-model (1994). De berekende waarden zijn gemiddeld een factor twee groter dan de gemeten waarden. Dit verschil wordt verklaard door overschatting van de stadsachtergrond in het CAR-model. De gemeten stadsachtergrond in Tilburg is circa $2.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$, terwijl de gemeenten in het CAR-model een waarde van $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ toepast.

4 Maastricht

- 4.1 In Maastricht vertoont de ruimtelijke weergave van de meetresultaten analoog aan Tilburg een verband tussen lokale bronnen en gemeten luchtconcentraties. Verkeersbelaste gebieden zijn ook te onderscheiden in het ruimtelijke patroon van benzeen, maar opvallend is het afwijkende ruimtelijk patroon in het gebied rondom de Markt. Vanwege de verhoogde benzeen concentraties ten opzichte van toluen en verhoogde cyclohexaan concentraties wordt geconcludeerd dat dit gebied extra wordt belast door diesel emissies. Deze conclusie wordt onderbouwd door informatie van de Gemeente Maastricht dat circa 200 diesel bussen per uur het busstation op de markt passeren. De (geëxtrapoleerde) jaargemiddelde luchtconcentraties van benzeen in het centrum van Maastricht zijn in de orde van $13.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$, terwijl de grenswaarde $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bedraagt. Dit hoge benzeen niveau wordt waarschijnlijk veroorzaakt door de ligging van Maastricht in het Maasdal met als gevolg beperkte luchtcirculatie. Echter, meer onderzoek is gewenst om deze hypothese te toetsen.
- 4.2 In Maastricht zijn evenals in Tilburg verkeersemissies overheersend de oorzaak voor de luchtconcentraties van de niet-gechloreerde koolwaterstoffen. Factoranalyse levert drie groepen stoffen met een gemeenschappelijke variatie in de luchtconcentraties: I.) o-xyleen, ethylbenzeen, toluen en 1,2,4-trimethylbenzeen; II.) 1,1,1-trichloorethaan, tetrachloorkoolstof en trichlooretheen; en III.) cyclohexaan, benzeen, hexaan en methylcyclopentaan. De drie factoren verklaren 77% van de

variatie van de gemeten luchtconcentraties van elf stoffen. Tetracloroethen vertoont geen correlatie met één van deze drie groepen. De drie factoren duiden op de volgende drie processen, die bepalend zijn voor de lokale luchtkwaliteit: verkeersemisies met een benzine en diesel uitstoot in een reguliere verhouding (groep I) en verkeersemisies met een verhoogde uitstoot door diesel motoren (groep III). Factor II vertegenwoordigt de drie gechlореerde koolwaterstoffen en indiceert de emissies door lokale industrie (e.g. verfspuiterijen, drukkerijen, ontvettingsprocessen). Kennis van het aantal mogelijke bronnen en emissies in het centrum van Maastricht is te beperkt om met het toegepaste meetnet een betrouwbare identificatie van deze laatste bronnen uit te voeren.

- 4.3 In Maastricht is de luchtverontreiniging door verkeersemisies met Chemical Mass Balance nader beschouwd. Op doorgaande wegen bedraagt het aandeel benzine en diesel emissies, respectievelijk 70% en 30% voor verkeersgerelateerde luchtverontreiniging. In het gebied rondom de Markt is het aandeel diesel emissies verhoogd tot 50% door bustransport. Luchtconcentraties van verkeersgerelateerde stoffen rondom benzine stations en parkeergarages waren niet significant verhoogd.
- 4.4 In Maastricht zijn de (geëxtrapoleerde) jaargemiddelde benzeen concentraties (1995) vergeleken met berekeningen met behulp van het CAR-model (1994). In tegenstelling tot Tilburg zijn in Maastricht de berekende waarden lager dan de gemeten waarden. Dit verschil wordt verklaard door onderschatting van de stadsachtergrond in Maastricht in het CAR-model. De gemeten stadsachtergrond in Maastricht is circa $8 \mu\text{g}/\text{m}^3$, terwijl de gemeente in het CAR-model een waarde van $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ toepast.
- 4.5 In Maastricht zijn op één meetlocatie lucht concentraties van tolueen en benzeen vergeleken met directe metingen met een tijdsresolutie van een kwartier. Hoewel, de directe metingen betrekking hadden op één week terwijl de passieve monsternamen periode twee weken bedraagt, waren de absolute niveaus tussen passieve en actieve monsternamen vergelijkbaar. Opvallend was de toename tot een factor 20 van de verhouding tolueen/benzeen na middernacht, terwijl overdag deze factor circa 2 á 3 bedraagt. Dit duidt naast verkeersemisies op een extra tolueen bron, die 's nachts "zichtbaar" wordt vanwege de daling van verkeersemisies en verminderde atmosferische menging. Meer directe metingen gelijktijdig met twee apparaten kan inzicht bieden in deze mogelijke tolueen bron. Deze resultaten illustreren de tekortkoming van lange monsternamen periode van de passieve monsternamen metingen en de noodzaak gedurende een bepaalde periode passieve en actieve monsternamen c.q. meting te combineren.

- 5 Uit de resultaten in Tilburg en Maastricht wordt geconcludeerd, dat passieve monsternamen in combinatie met eenvoudige statistische analyse op eenvoudige en relatief goedkope wijze inzicht geeft in i.) het niveau en ii.) de ruimtelijke variatie in stedelijk luchtkwaliteit van (gechloreerde) koolwaterstoffen. Tevens is het mogelijk lokale bronnen te identificeren en de bijdrage aan de luchtconcentraties van lokale bronnen te kwantificeren.
- 6 Naast toepassing op gemeentelijk niveau kan de ontwikkelde methode op provinciaal niveau worden toegepast bijvoorbeeld i.) voor het bepalen van luchtconcentratie gradiënten rondom een luchthaven of een industrieel complex, ii.) identificatie van provinciale bronnen en berekening van de bijdragen van verschillende bronnen en iii.) monitoring van luchtconcentratie trends. Op bedrijfs niveau kan de ontwikkelde methode worden toegepast bijvoorbeeld voor identificatie van diffuse lekverliezen in raffinaderijen en een chemisch complex.
- 7 Ten behoeve van vervolgonderzoek worden de volgende activiteiten aanbevolen:
 - 7.1 Onderzoek naar de toepasbaarheid van passieve monsternamen in relatie tot meteorologische omstandigheden. Een vergelijking van tweewekelijkse en maandelijkse passieve monsternamen met “traditionele” methoden wordt aanbevolen gedurende één jaar op een aantal locaties, inclusief meteorologische metingen (o.a. windsnelheid, relatieve vochtigheid en temperatuur);
 - 7.2 Er is behoefte aan nader onderzoek naar toepassing van passieve monsternamen voor bepaling van luchtconcentratie van stoffen relevant voor de stedelijke luchtkwaliteit, zoals benzo(α)pyreen, NO₂, aldehyden en HNO₂;
 - 7.3 Er is behoefte aan meer benzeenluchtconcentratie metingen complementair aan CAR-model berekeningen ten behoeve van het bepalen van locatie specifieke concentraties, zoals de stadsachtergrond en stagnerend verkeer. In de meetcampagne in Rotterdam eind 1996 wordt hieraan meer aandacht besteed;
 - 7.4 Er is behoefte aan meer inzicht in emissie profielen van de industrie. Uit de gegevens van EmissieRegistratie kunnen emissieprofielen per industrie en per branche worden opgesteld. Daarnaast kunnen aanvullende metingen bij bekende bronnen worden uitgevoerd. De resultaten zullen het gebruik van CMB aanzienlijk verbeteren voor het bepalen van procentuele bijdragen van diverse bronnen aan luchtconcentraties;

- 7.5 Toepassing van de ontwikkelde methode voor epidemiologisch onderzoek naar respiratoire gezondheidsproblemen en lokaal verhoogde buitenlucht concentraties in samenwerking met gemeentelijke gezondheidsinstanties;
- 7.6 Er is behoefte aan vervolg onderzoek in Maastricht naar de relatief hoge stadsachtergrond en de mogelijke relatie met de ligging van Maastricht in het Maasdal, de hoge nachtelijke tolueen/benzeen verhouding en toepassing van de methode op de schaal van een totale gemeente zoals bijvoorbeeld Tilburg.

7. Literatuur

- [1] P.J. Mak, "Een nieuw accent in het luchtkwaliteitsbeleid: lokale luchtverontreiniging", Lucht 1, maart 1994
- [2] C.E.P. Dönszelmann, "Stank in NMP-1 en NMP-2", Lucht 1, maart 1994
- [3] RIVM (1995), "Characterization of episodic air pollution in cities (CHEAP)"
- [4] EC (1995), "Air quality in European cities" (congres proceedings, Brussels October 1995)
- [5] DCMR (1996), "Het milieu in de regio Rotterdam"
- [6] OMEGAM (1996), "Meetresultaten 1995 in Amsterdam"
- [7] D.W. Dockery, C. Arden Pope III, X. Xu, "An association between air pollution and mortality in six U.S. cities", The New England Journal of Medicine, 329, 24, pag.1753-1759, 1993
- [8] G.D. Leikauf, S. Kline, R.E. Albert, C.S. Baxter, D.I. Bernstein, J. Bernstein and C.R. Buncher, "Evaluation of a possible association of urban air toxics and asthma", Environmental Health perspectives, 105, 6, pag. 253-271, 1995
- [9] A. Oosterlee, M. Drijver, E. Lebrecht and B. Brunekreef, "Chronic respiratory symptoms in children and adults living along streets with high traffic density", Occupational and Environmental Medicine, 53, pag. 241-247, 1996
- [10] J. den Boeft, H.C. Eerens, W. den Tonkelaar et.al., "CAR International: A simple model to determine city street air quality", TNO-MW - P 95/023
- [11] H.C. Eerens, C.J. Sliggers and K.D. van den Hout, "The CAR model: The Dutch method to determine city street air quality", Atmospheric Environment, 27B, 4, pag. 389-399, 1993
- [12] M.W. Rotach, "Profiles of turbulence statistics in and above an urban street canyon", Atmospheric environment, 29, pag.1473-1486, 1995
- [13] T. Thijssse, "Passieve monsterneming van koolwaterstoffen", TNO-MW-R 95/062, 1995
- [14] D. Grosjean and E.L. Williams II, "A passive sampler for airborne formaldehyde", Atmospheric Environment, 26A, 16, pag. 2923-2928, 1992
- [15] R.H. Brown et.al., "The use of diffuse samplers for monitoring of ambient air", Pure & Applied Chemistry, 65, 8, pag. 1859-1874, 1993

- [16] J. Begerow, E. Jermann, T. Keles, U. Ranft and L. Dunemann, "Passive sampling for volatile organic compounds (VOC's) in air at environmentally relevant concentrations levels", *Fresenius J. Anal. Chemistry*, 351, pag. 549-554, 1995
- [17] H.H. Harman, "Modern factor analysis", The university of Chicago press, Chicago and London, derde editie, 1976
- [18] P.E. Scheff, R.A. Wadden, B.A. Bates and P.F. Aronian, "Source fingerprints for receptor modeling of volatile organics", *Journal of Atmospheric Pollution Control Association*, 39, 4, pag. 469-478, 1989
- [19] J.G. Watson, "Overview of receptor model principles", *Journal of Air Pollution Control Association*, 34, 6, pag. 619-623, 1984
- [20] J.G. Watson, N.F. Robinson, J.C. Chow, R.C. Henry, B.M. Kim, T.G. Pace, E.L. Meyer and Q. Nguyen, "The USEPA/DRI Chemical Mass Balance receptor", *Environmental Software*, 5, 1, pag. 38-49, 1990
- [21] R.C. Rijkeboer and P. Hendriksen, "Regulated and unregulated exhaust gas components from LD vehicles on petrol, diesel, LPG and CNG", TNO-report 93.OR.VM.029/1/PHE/RR, 1993
- [22] T. Thijsse en W.A.M. den Tonkelaar, "Meting van de emissies door wegverkeer in de Drechtunnel te Dordrecht", TNO-MT R 87/036
- [23] RIVM, Landelijk meetnet luchtkwaliteit, meetresultaten 1993, rapp. 722101013, RIVM, 1994
- [24] VOC-nieuwsbrief, 1, 1, 1995
- [25] H.U. Pfeffer, J. Friesel, G. Elbers, R. Beier and K. Ellerman, "Air pollution monitoring in street canyons in North Rhine Westphalia, Germany", *The Science of the Total Environment*, 169, 1995
- [26] M. Coolen en A. de Jong, "Gemeten en berekende benzeengehaltes in Amsterdam", *Lucht* 4, December 1994

8. Verantwoording

Het in dit rapport beschreven onderzoek is, in opdracht van het Ministerie van VROM uitgevoerd door de afdeling Milieukwaliteit en -risico's van TNO Milieu, Energie en Procesinnovatie. Analyses zijn uitgevoerd door de afdeling Analyse en Sensoren.

Aan dit onderzoek werkten mee

M.P. Keuken
R.F. van Oss
O.P. van Pruissen
H.L.M. Verhagen
K.D. van den Hout
Th.R. Thijsse

Onderzoeksleider

De meetcampagnes in de steden Tilburg en Maastricht zijn in nauw overleg met de hr. J. Dictus (Tilburg) en mevr. N.A.G. Simons (Maastricht) van de milieu afdelingen van de betrokken gemeenten uitgevoerd. De hr. F. Meuwese van de firma Syntech Spectras heeft directe meetresultaten van BETX in de buitenlucht van Maastricht tijdens de meetcampagne ter beschikking gesteld.

Periode waarin het onderzoek is uitgevoerd

Januari 1995 tot September 1996

Handtekening



Dr. M.P. Keuken
Onderzoeksleider

Datum: 13/11/96



Ir. H.P. Baars
Afdelingshoofd Milieu-
kwaliteit en -risico's

Datum: 13/11/96