

TNO-rapport

TNO 2022 R10978

**Aspecten van fijnstof in uitlaatgas voor
luchtkwaliteit en gezondheid**

Traffic & Transport

Anna van Buerenplein 1
2595 DA Den Haag
Postbus 96800
2509 JE Den Haag

www.tno.nl

T +31 88 866 00 00

Datum	30 mei 2022
Auteur(s)	Norbert E. Ligterink
Exemplaarnummer	2022-STL-RAP-100344828
Aantal pagina's	18 (incl. bijlagen)
Opdrachtgever	IenW
Projectnaam	I-W MAVE 2022
Projectnummer	060.50928

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 opdrachten aan TNO, dan wel de betreffende terzake tussen de partijen gesloten overeenkomst.

Het ter inzage geven van het TNO-rapport aan direct belanghebbenden is toegestaan.

© 2022 TNO

Samenvatting

Fijnstof is een verzamelnaam voor deeltjes in de uitlaat en in de buitenlucht. De deeltjes in de buitenlucht zijn van verschillende bronnen en met verschillende chemische samenstellingen en grootteverdelingen. De buitenlucht is de vergaarbak en de mengbak van fijnstof, voordat het de longen bereikt. Het rapport van de Gezondheidsraad "Risico's van ultrafijnstof in de buitenlucht" vraagt om een evaluatie van luchtkwaliteitsnormen voor fijnstof en in het bijzonder aandacht voor deeltjes kleiner dan 100 nanometer (PM_{0,1}); het ultrafijnstof. Uit de uitlaat van motoren komen veelal deeltjes kleiner dan 100 nanometer en zijn daarmee een belangrijke bron, in dit kader.

Ondertussen zijn de grote bronnen van ultrafijnstof wel aan het veranderen door de nieuwe wetgeving voor voertuigen en verbrandingsmotoren en door de nieuwe testprocedures in de APK. In het bijzonder is de brede toepassing van het roetfilters de reden van een sterke daling van fijnstofemissies. Dit rapport geeft een overzicht van de verschillende aspecten en de ontwikkelingen in de laatste jaren.

Metingen in de buitenlucht zijn per definitie anders dan metingen in de uitlaat, door de verschillen in concentraties en omstandigheden. De correlaties tussen deze twee soorten metingen hangt af van het type meting. In het bijzonder zijn deeltjesaantallen metingen aan de uitlaat, zoals bij de APK en voor de wettelijke eisen aan voertuigen en motoren, anders dan de deeltjesaantallen metingen in de buitenlucht. Deze verschillen hebben deels te maken met de eisen van reproduceerbaarheid die aan voertuigmetingen worden gesteld.

De betrouwbaarheid van het verband tussen fijnstofbronnen en gezondheid varieert van bron tot bron. Dit wordt deels ondersteunt door hypothesen over de mechanismes en routes, waarin de gezondheidseffecten worden gekoppeld aan karakteristieken van fijnstof en uitlaatgas. Deze mechanismes kunnen verder onderzocht worden als de metingen aan de uitlaat de relevante gegevens over de fijnstofemissiebronnen.

Dit rapport probeert het beeld te schetsen vanuit de metingen vanuit de uitlaat, en specifiek hoe we door middel van andersoortige metingen in de uitlaat meer gezondheidsrelevante kennis opdoen, om zo een onderbouwing te geven voor de samenhang tussen de fijnstofproblematiek in de buitenlucht en gezondheidseffectief bronbeleid.

Inhoudsopgave

	Samenvatting	2
1	Inleiding	4
2	Deeltjesaantallen metingen in uitlaatgas	7
2.1	Verschillende meettechnieken voor deeltjesaantallen	7
2.2	Deeltjesaantallen nemen af na de vorming bij verbranding	8
2.3	Deeltjesaantallen eis als voorwaarde voor roetfilters	8
2.4	Kleinere deeltjes bij benzinemotoren.....	9
2.5	Regeneratie van roetfilters	9
2.6	De noodzaak van metingen in praktijk.....	10
3	Andere fijnstofmetingen	12
3.1	Filtermetingen	12
3.2	Opaciteitsmetingen	12
3.3	Chemische analyses	12
3.4	Verbranding en brandstof.....	13
4	Veronderstelde biologische routes leidend tot gezondheidseffecten	14
4.1	Overzicht gezondheidseffecten	14
4.2	Eigenschappen van fijnstof voor gezondheidseffecten	15
4.3	Relevante karakteristieken van fijnstof.....	16
5	Conclusies.....	17
6	Ondertekening	18

1 Inleiding

Vanuit de meetprogramma's aan voertuigen en mobiele werktuigen wordt er met interesse gekeken naar de ontwikkelingen op het gebied van fijnstofluchtkwaliteit en gezondheid. In de meetprogramma's aan voertuigen wordt geprobeerd om zoveel mogelijk aan te sluiten bij chemische componenten en meetmethodes die in de buitenlucht gezondheidsrelevant worden geacht. Op deze manier kan het verband gelegd worden met luchtkwaliteit en onderliggende bronnen. Voor al het fijnstof is slijtagestof dominant qua massa, en fijner fijnstof, kleiner dan 2,5 micrometer, zijn de oude dieselvoertuigen nog een substantiële bron. Een indicatie dat een hoog oliegebruik aanleiding is voor hoge fijnstofuitstoot (PM10 en deeltjesaantallen) bleek niet bewaarheid.¹ Ook zijn benzineauto's met directe injectie niet substantieel viezer, qua fijnstofmassa, dan eerdere generaties benzineauto's.² De recente aandacht voor kleinere deeltjes kan worden gezien als verschuiving terug naar uitlaatgassen, omdat de meeste deeltjes in uitlaatgas kleiner zijn dan 200 nanometer, terwijl ander fijnstof, zoals slijtagestof, vaak grotere deeltjes zijn. Dusverre zijn er beperkt differentiaties in uitlaatgasemissiemetingen die de verschillen in relevantie voor gezondheid van verschillende bronnen, zoals voertuigen, schepen, en mobiele machines, kunnen onderbouwen.

Met de verwachte aanscherping van de ondergrens van uitlaatgas deeltjesgrootte van 23 nanometer naar 10 nanometer als de kleinste deeltjes³ in uitlaatdeeltjesaantallen metingen, en het recent rapport van de gezondheidsraad met exclusieve aandacht voor ultrafijnstof (kleiner dan 100 nm)⁴ in de buitenlucht, lijkt de verschuiving van fijnstofmassa naar deeltjesaantallen verder onderstreept. Dit moet wel in een breder kader gezien worden. Dit TNO rapport geeft een overzicht vanuit het perspectief van de verbrandingsmotoren als emissiebron.

Samengevat, fijnstof in de buitenlucht is een vergaarbak van deeltjes van verschillende bronnen en processen. Daarnaast veranderen deeltjes in de buitenlucht door chemische en fysische processen, en groeien de deeltjes onder andere door samenklonteren van deeltjes en condensatie van vluchtige stoffen op deeltjes over het algemeen in omvang in de loop van minuten en uren. De verschuivingen van aandacht van de ene luchtkwaliteitsnorm, zoals PM10, PM2,5, EC, en ultrafijnstof (PM0,1) naar de andere lijkt samen te hangen met de nieuwe focus op bepaalde emissiebronnen, zoals uitlaatgas, zonder dat expliciet te benoemen. Verbrandingsgassen zijn van oudsher een grote bron van kleine deeltjes fijnstof. Grotere deeltjes met andere samenstelling komen van andere bronnen.

Al decennia wordt er gezocht naar betere indicatoren van de blootstelling aan fijnstof in de buitenlucht voor gezondheid. En het recent advies van de Gezondheidsraad moet in dat licht gezien worden. De centrale maat is PM10: totale massa van *particular matter* kleiner dan 10 micrometer, opgevangen op een filter, in termen van massaconcentratie $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

¹ Emissions of twelve petrol vehicles with high mileages, TNO rapport 2018 R11114.

² Emissions of three common GDI vehicles, TNO rapport 2016 R11247.

³ <http://www.downtoten.com/> en UNECE Particle Measurement Programme (PMP)

⁴ Risico's van ultrafijnstof in de buitenlucht, Nr 2021/38, september 2021, Gezondheidsraad, Den Haag.

Recenter is PM_{2,5} (deeltjes kleiner dan 2,5 micrometer) belangrijker geworden. Deeltjes kleiner dan 100 nanometer (PM_{0,1}) worden aangeduid met ultrafijnstof. Uit de uitlaat van motoren komen veelal deeltjes kleiner dan 100 nanometer en zijn daarmee een belangrijke bron. Daarnaast wordt ook *Elemental Carbon, Black Carbon, Black Smoke*, of roet als maat gebruikt. Er is een range aan meettechnieken die allemaal op een andere manier het aandeel van het zwarte fijnstof, typisch geassocieerd met verbranding, bepalen.⁵

Dit rapport geeft context bij de verschillen in emissiemetingen en effecten, en de verschillende perspectieven die er zijn. Het is bewezen dat fijnstof van diesilverbrandingsmotoren kankerverwekkend is.⁶ Lange tijd was dieseluitlaatgas de grootste bron van fijnstof in Nederland, maar met de brede introductie van dieselroetfilters in Europa, is er een verschuiving. Ouder epidemiologisch onderzoek hangt wel samen met deze grootste bronnen van weleer. De continue verandering is samenstelling van fijnstof mengsels vraagt een heroverweging van de fijnstofmaat. De toxiciteit van deeltjes, bijvoorbeeld van koolwaterstoffen uit brandstof en olie, en metalen van remschijven, zijn een bekende aspecten waarvoor er nog beperkt bewijs is voor een directe relatie met gezondheid. In plaats daarvan lijkt er een stap gemaakt te worden naar ultrafijne deeltjes, op basis van Amerikaans onderzoek. Aangezien het realiseren van gezondheidswinst voorop staat, zouden we idealiter dan ook een praktische en reproduceerbare meetwaarde hebben die voor verschillende fijnstofmengsels gemeten kan worden en een voorspellende waarde voor de gezondheidseffecten geeft.

In Amerika is er geen deeltjesaantallen limiet voor uitlaatgas, zoals deze sinds 2009 in Europa geldt. Daarmee kan in de Verenigde Staten het dieselroetfilter niet afgedwongen worden, terwijl dat in Europa wel gebeurt. Een uitlaatgasfiltermeting, in grammen fijnstof per kilometer, gerelateerd aan de gezondheidseffecten van PM₁₀, is te onnauwkeurig om een eis op te leggen die streng genoeg is, zodat een roetfilter gemonteerd moet worden. De basis daarvoor is dat een relevante uitlaatgaseis direct gekoppeld moet zijn aan gezondheidseffecten. En nu lijken ze in Amerika en Canada op zoek naar dat bewijs.

Verder kan het ene gezondheidseffect niet gelijkgesteld worden met het andere. Het fijnstof in de lucht komt van vele bronnen. De aandacht vanuit de overheid en RIVM voor houtrook roept wel wat vragen op. Ontegenzeggelijk dat houtrook hinderlijk is en luchtwegaandoeningen, zoals COPD, kan versterken. Houtrook is echter niet bewezen kankerverwekkend, zoals dieseluitlaatgas en ongefilterde rook van kolen en bitumen dat wel is. Dit voorbeeld geeft alleen maar aan dat PM₁₀ een grove en beperkte maat is, die niet het noodzakelijke onderscheid maakt tussen de uitstootbronnen, en de relevante samenstelling van fijnstof, bij de bron en in de loop van de tijd in de buitenlucht.

Bij metingen aan voertuigen en mobiele bronnen worden er machines, zoals grote en kleine mobiele werktuigen, gezien die nog steeds zeer hoge fijnstofemissies hebben.⁷

⁵ Elemental carbon emission factors of vehicles for Dutch air-quality assessments, TNO rapport 2017 R11689.

⁶ IARC, International Agency for Research on Cancer (onderdeel van de WHO), 2012.

⁷ Real-world emissions of non-road mobile machinery, TNO rapport 2021 R10221.

Typische meetinstrumenten om daarbij de deeltjesaantallen te meten hebben het bereik van de meerdere miljoenen deeltjes per kubieke centimeter, om dergelijke zeer hoge uitstootniveaus aan te kunnen.⁸ De vraag is ook wat de relevantie is van deze uitlaatgasmeettechniek, bedoeld om de werking van een roetfilter vast te stellen, in de afwezigheid van een roetfilter. Voor een reproduceerbare meting in uitlaatgas, wordt het gas verwarmd en van koolwaterstoffen ontdaan, zodat alleen de harde pitten over blijven in de deeltjesaantallen. De buitenluchtmetingen, met andere meetprincipes, kunnen daarom mogelijk een veelvoud hogere deeltjesaantallen geven. Dit meetprincipe wordt niet toegepast in buitenluchtmetingen.

De relevantie van de huidige, overblijvende bronnen met hoge fijnstofmassa, PM10 of PM2,5, is onbekend. In de meetprogramma's is het onduidelijk wat er relevant is om te meten, omdat bij luchtkwaliteit en gezondheid er nog geen ultieme meetwaarde is geïdentificeerd welke ook bij metingen aan de uitlaat gebruikt kunnen worden. Echter, goede kandidaten zoals fractie ultrafijnstof of een geïntegreerde meting van de fijnstof reactiviteit zijn geïdentificeerd en moeten verder onderzocht worden. Hierbij moet wel in acht worden genomen dat de definities en niveaus van deeltjesaantallen tussen instrumenten en locaties variëren, omdat deeltjesaantallen geen wel gedefinieerde en behouden grootheid is. In brononderzoek blijft daarmee de vraag hoe en wat er gemeten moet worden, om de relevantie van verschillende uitstootbronnen in kaart te brengen. De verschillen in fijnstof tussen benzine, diesel, en slijtage-emissies zijn evident, maar bij gebrek aan gewenst detail, beperken de metingen zich nu tot filtermassaresultaten, PM10 en PM2,5. Daarnaast worden de deeltjesaantallen metingen vooral intern gebruikt om de goede werking van roetfilters, bij lage fijnstofuitstoot niveaus, vast te stellen.

Dit rapport gaat eerst in op de aspecten omtrent deeltjesaantallen metingen aan de uitlaat. Daarnaast worden andere fijnstofmetingen besproken. De veronderstelde verbanden met blootstelling en gezondheid worden daarna besproken vanuit het perspectief van de besproken fijnstofmetingen.

⁸ High emission vehicles in Toyota campaign, TNO rapport 2019 R11250.

2 Deeltjesaantallen metingen in uitlaatgas

In 2007 kwam de *Informal group on the Particle Measurement Programme* (PMP) onder de UNECE met een meet- en kalibratiemethode om deeltjesaantallen (PN, particle number) in uitlaatgas te kunnen meten. Deze methode voorzag erin dat vluchtige deeltjes verwijderd werden zodat alleen de harde pitten met vooral onverbrande koolstof in het uitlaatgas gemeten werden. Dit verhoogde de reproduceerbaarheid van de metingen. Een emissielimiet op basis van deze meetmethode is in de Europese Euro-5/6 wetgeving van 2007 opgenomen.

In 2015 werd de laatste hand gelegd om deze meetmethode, zonder vluchtige componenten, ook voor metingen op de weg geschikt te maken. Dit meetinstrument wordt de *PEMS-PN, Portable Emission Measurement System – Particle Numbers* genoemd. Voor personenauto's, in het bijzonder benzineauto's met directe injectie, werd de eis van een test op de weg opgenomen in de wetgeving in 2017. In 2019 volgde een vergelijkbare eis voor vrachtwagens op de weg.

Deze eisen zijn het sluitstuk van een traject om voertuigen zo schoon te maken op fijnstof als de benzineauto's van oudsher waren. De brede toepassing van roetfilters maakt nu juiste de benzineauto's zonder directe injectie in sommige gevallen de vieste, met hoge uitstoot na een koude start. Waarschijnlijk komt er met Euro-7 een deeltjesaantallen eis voor alle voertuigen. Nu lijken vooral voertuigen op aardgas relatief hoge deeltjesemissies te hebben, vanwege beperkte emissiecontrole technologie op deze voertuigen.

Ondertussen is de PN-eis ook van toepassing op een deel van de modernste mobiele werktuigen, Stage V vanaf 2019, met vermogens tussen 19 en 560 kW. Het zijn nu vooral de oudere, de kleinere en de grootste dieselmotoren in mobiele werktuigen die de overblijvende bron zijn van fijnstof in de toekomst.

2.1 Verschillende meettechnieken voor deeltjesaantallen

Uitlaatgas is warm en nat door de verbranding en de verbrandingsproducten. Dat vraagt een speciale meettechniek, en instrumenten die daar geschikt voor zijn. Dat zijn niet dezelfde instrumenten die in de buitenlucht voor het meten van het aantal deeltjes worden gebruikt. De PN emissiefactoren zoals deze bijvoorbeeld in COPERT en HBFEA beschikbaar zijn hebben een beperkte relatie met de deeltjesaantallen in de buitenlucht.⁹

Daarom heeft de deeltjesaantallen, of PN, eis een beperkte link met luchtkwaliteit en fijnstofmassa metingen. Eigenlijk is het een controle op de werking van het roetfilter. Het gevolg is dat de fijnstofmassa nauwelijks nog te meten is, en typische meetwaarden een factor tien lager zijn dan de limiet. In dit hoofdstuk wordt dat in perspectief geplaatst.

⁹ Particle number concentration near road traffic in Amsterdam (the Netherlands): Comparison of standard and real-world emission factors, Atmospheric Environment, Volume 132 (2016), p. 345-355.

2.2 Deeltjesaantallen nemen af na de vorming bij verbranding

Zeer hoge concentraties deeltjes in de cilinder direct na de verbranding nemen in snel tempo af, omdat de deeltjes samenklonteren tot grotere deeltjes. Dit proces loopt door tot in de buitenlucht afhankelijk van de concentraties. De meting aan de uitlaat is daarom een momentopname in dit proces, en de gemeten waarden hangen samen met de lengte van de uitlaatlijn, en de aanwezigheid van filter en katalysatoren die het resultaat kunnen beïnvloeden.

Om de PMP methode voor de bepaling van deeltjesaantallen stabiel te maken is er voorgeschreven dat het gas snel verdund en gemeten moet worden. De afstand tussen uitlaat en aanzuiging voor de verhitting en meting is daarom ook voorgeschreven. Deeltjesaantallen metingen zijn daarom een snapshot in een proces. Een meting in de buitenlucht zal andere resultaten geven dan de meting bij de uitlaat.

Waarschijnlijk bepalen de processen van samenklonteren en condenseren van gassen ook de complexe relatie tussen wegkantstations en achtergrondmeetstations voor deeltjesconcentraties.

2.3 Deeltjesaantallen eis als voorwaarde voor roetfilters

Niet alleen in de voertuigtypekeuring, maar ook in de APK, is gebleken dat een deeltjesaantallen eis de effectieve manier is om een goed functionerend roetfilter vast te stellen bij dieselloertuigen.^{10,11} Daar waar massafiltermetingen een gemiddelde zijn over een test in het laboratorium, kunnen de deeltjesaantallen over een korte tijd en in verschillende omstandigheden vastgesteld worden.

De meetwaarden bij stationair draaien van de motor zijn zodanig laag dat de suggestie bestaat dat moderne dieselauto's met roetfilter de fijnstof uit de buitenlucht filteren. Bij belasting van de motor is dat niet het geval. Op basis van toerental, slagvolume, turbodruk en snelheid kun je eenvoudig uitrekenen dat een dieselmotor 1 tot 2 m³ lucht rondpompt per gereden kilometer en ongeveer 1 mg/km fijnstof uitstoot (in de meest gunstige gevallen misschien een factor 10 lager). Dat vertaalt zich in 0,5-1 mg/m³ fijnstof, oftewel 500 – 1.000 µg/m³. Buitenluchtconcentraties in drukke straten zijn 20 µg/m³ voor PM2,5. De uitlaatgassen van een dieselauto met goedwerkend roetfilter bevatten dus 25-50 keer meer fijnstofmassa (of in het gunstigste geval 2,5-5 keer) dan buitenlucht.

Voor Nederland zijn 10.000 tot 30.000 deeltjes/cm³ typische waarden voor deeltjesaantallen in drukke straten. De schone achtergrond in Nederland is typisch 5.000-10.000 deeltjes/cm³. Op de wettelijke NEDC test stoten moderne dieselloertuigen inderdaad 10¹⁰ deeltjes/km uit, wat neerkomt op een concentratie van 10.000 deeltjes/cm³. Diezelfde voertuigen zitten echter in de praktijk op de weg dichter tegen de norm van 6x10¹¹ deeltjes/km.

¹⁰ Follow-up research into the PN limit value and the measurement method for checking particulate filters with a particle number counter, TNO rapport 2020 R10006.

¹¹ Investigation into a Periodic Technical Inspection (PTI) test method to check for presence and proper functioning of diesel particulate filters in light-duty diesel vehicles. Part 2, TNO rapport 2017 R10530.

Typische getallen zijn $1,5\text{-}3 \times 10^{11}$ deeltjes/km, zeker met de buitenluchtmeettechnieken die meer deeltjes meten dan de PMP methode. Met eenzelfde berekening als hierboven komt dat neer op 75.000 – 300.000 deeltjes/cm³. Dat is een factor 2,5-30 keer de genoemde Nederlandse waarden en qua ordegrrootte vergelijkbaar met de factor uitlaatemissies/buitenlucht die hierboven berekend is op basis van het gewicht van de emissies. Een deel van de nieuwere voertuigen laten lagere waarden zien in normaal gebruik. Dat is afhankelijk van de toestand van het roetfilter en het rijgedrag. Vooral bij harde acceleraties en koude start kunnen de deeltjesuitstoot hoog zijn.

De relatie tussen deeltjesaantallen en fijnstofmassa hangt af van de voertuigtechnologie en de gebruikte meettechnieken. Een ruwe vuistregel die is gebruikt voor *remote sensing* metingen stelt 1 mg (PM10) gelijk aan $4,8 \times 10^{12}$ # (PN).¹² Dit is gebaseerd op optische eigenschappen van kleine zwarte deeltjes.

Alleen bij stationair draaiende motoren zien wij dat de deeltjesaantallen in de uitlaat heel veel lager zijn dan in de buitenlucht. Maar zodra de motor aan het werk wordt gezet, blijft ook een dieselauto met roetfilter de lucht vervuilen.

2.4 Kleinere deeltjes bij benzinemotoren

Bij de analyses van verschillende motortechnieken werd gezien dat benzinemotoren, en in het bijzonder motorfietsen hele kleine deeltjes uitstoten, enkele tientallen nanometers groot. Voor de reproduceerbaarheid van de PMP PN meetmethode was de ondergrens vastgesteld op 23 nanometer. Maar een aantal motoren lieten een substantieel aandeel deeltjes zien kleiner dan 23 nanometer. In het bijzonder kwamen er uit motorfietsen veel kleine deeltjes, in onderzoeken voor de ontwikkeling van de mobiele PEMS-PN meettechniek. Dat was de aanleiding om van de ondergrens naar beneden te brengen, ten koste van een stuk reproduceerbaarheid van de metingen. De nieuwe ondergrens voor het meten van deeltjes is waarschijnlijk 10 nanometer. De schatting is dat dat ongeveer 30% tot 50% meer deeltjes geeft dan bij de grens van 23 nanometer. Dus een beperkte fractie van alle deeltjes zit tussen 10 nm en 23 nm, in vergelijking met het bereik van 23 nm tot de typische maximale waarde van grofweg 200 nm.

2.5 Regeneratie van roetfilters

De gesloten roetfilters onder de modernste dieselauto's zijn vergelijkbaar met roetfilters die al 10 jaar worden toegepast. Een bericht van Transport & Environment in 2020¹³ meldde dat regeneratie van roetfilters van dieselpersonenauto's tot onverwacht hoge deeltjesemissies zou leiden. Dat is reeds lang bekend en verwerkt in de nationale cijfers voor luchtkwaliteit. Een roetfilter moet elke 400 tot 700 km "regenereren", ofwel schoonbranden. Een kwart tot driekwart van alle fijnstofemissies van een dieselauto met roetfilter komt bij regeneratie vrij. Ook inclusief regeneraties zijn de fijnstofemissies uit de uitlaat van moderne diesels laag, zelfs lager dan van benzinevoertuigen. Ofwel, dieselauto's zijn al 10 jaar schoon wat betreft fijnstofemissies, als het roetfilter goed werkt. Regenereren doet een dieselauto bij hogere snelheid, als het uitlaatgas warm is.

¹² Analysis of the 2019 Flemish remote sensing campaign, Vlaams Planbureau voor Omgeving, Brussel, 2020.

¹³ Transport & Environment: New Diesels, New Problems, Januari 2020.

Als die omstandigheden in normaal gebruik niet voorkomen, raakt het filter verstopt. De nieuwe APK test moet ervoor zorgen dat de roetfilters zo goed blijven functioneren.

De Nederlandse emissiefactoren van fijnstof bij dieselauto's met roetfilters houden sinds 2012 rekening met de fijnstofemissies die vrijkomen bij regenereren. Een dieselauto regenereert elke 400 km (nieuwere) tot 700 km (oudere), en de metingen waarbij regeneraties zijn opgetreden zijn uitgesmeerd over deze totale afstand. In de stad treden er nauwelijks regeneraties op, en is dit effect niet meegenomen.

Daarom hanteren we emissiefactoren van:

1. Stad: 0,5 mg/km PM (zonder regeneraties)
2. Buitenweg en snelweg: 1,5 mg/km PM (met regeneraties)

Recente onderzoeken geven aan dat deze getallen het effect van regeneraties mogelijk licht overschatten. Er zit grote variaties in de metingen maar het aantal deeltjes tijdens per regeneratie zijn typisch 10^{12} – 10^{13} deeltjes, terwijl elders deeltjes emissies per kilometer rond de 10^{10} ligt.

Veel moderne vrachtwagens hebben tegenwoordig al geen roetfilterregeneratie meer, en wordt het roetfilter in normaal bedrijf met beperkte uitlaatgastemperaturen schoongebrand. In andere gevallen wordt de uitlaatgastemperatuur licht verhoogd om zo de oxidatiereacties in het roetfilter te bespoedigen.

2.6 De noodzaak van metingen in praktijk

Het effect van regeneraties moet door de fabrikant meegenomen worden in de bepaling van de emissies. In de wettelijke Worldwide harmonised Light-duty Test Procedure (WLTP) testen op de rollenbank verschillen in fijnstof emissies tijdens regeneraties van de metingen op de weg. De deeltjesaantallen op de weg zijn vaak substantieel hoger. De resultaten op de weg zijn maatgevend voor de emissiefactoren, maar niet voor de wettelijke eisen aan voertuigen.

Daarnaast is er jarenlang vrijstelling geweest van directe injectie benzineauto's voor een deeltjesaantallen eis, terwijl deze eis wel gold voor dieselauto's. De emissies van directe injectie benzineauto's is met de jaren wel omlaag gegaan, maar niet tot niveau van dieselauto's. Met de invoering van de Real Driving Emission wetgeving (RDE) is dat gerectificeerd. Nu moeten zowel dieselauto's en benzineauto's met directie injectie aan dezelfde fijnstofeis op de weg voldoen, met uitzondering van de regeneraties van diesel roetfilters, die nog steeds op basis van laboratoriummetingen worden beoordeeld.¹⁴

De noodzaak van metingen in de praktijk wordt ingegeven door drie aspecten die relevant zijn voor fijnstofemissies. Ten eerste, fijnstofemissies zijn veruit het grootst bij hoge motorlast.¹⁵ In wettelijke testen aan personenauto's en bestelauto's is de motorlast beperkt, en in het meten op de weg is er meer gelegenheid om dat te testen. Ten tweede, een belangrijk deel van de fijnstofemissies treden op bij de start van de koude motor.

¹⁴ Application of gasoline particulate filters, effects and possibilities, TNO rapport 2018 R11722.

¹⁵ HD Euro-V Truck PM10 and EC emission factors, TNO rapport 2015 R11041.

Ook hier is de wettelijke test beperkt, en heeft mogelijk geleid tot specifieke optimalisatie van de regelstrategie voor deze condities: 23° C, met een stoptijd van minimaal 6 uur, de gemiddelde uitstoot over 23 kilometer, en een lage motorbelasting in de eerste minuten.

3 Andere fijnstofmetingen

Er is een scala aan meettechnieken beschikbaar om fijnstof te meten aan de uitlaat. Deze technieken focussen allemaal op eigen karakteristieken, en, over het algemeen hebben ze een beperkt bereik qua meetwaarden, behorende bij een bepaald niveau van emissies.

3.1 Filtermetingen

Filtermetingen zijn de traditionele methodiek. In Europa kan deze metingen alleen in het laboratorium gedaan worden. In Amerika wordt een vergelijkbare meting op de weg gedaan, waarbij een deel van het uitlaatgas wordt afgezogen. Fijnstof wordt op het filter verzameld en het filter wordt voor en na het experiment gewogen in geconditioneerde omstandigheden. De toename van het gewicht is de maat voor de massa van het fijnstof. In de lucht hechten gassen zich aan het fijnstof, en zo neemt de massa toe in de buitenlucht in de loop van de tijd. Ook voor filtermetingen zijn er daarom verschillen tussen de meting aan de uitlaat en metingen in de buitenlucht.

Desondanks is de ene filtermeting de andere niet. Filtermeting in het uitlaatgas in het laboratorium gebeurt in verdund en gekoeld uitlaatgas. Hierdoor zal een deel van de vluchtige koolwaterstoffen neerslaan op de deeltjes, en meegenomen worden in het filtermetingresultaat. Er worden ook wel warme, en soms onverdunde, uitlaatgas filtermetingen gedaan. Deze geven veelal substantieel lagere waarden, zeker bij oudere motoren en benzinemotoren met een groter aandeel koolwaterstoffen in het uitlaatgas.

3.2 Opaciteitsmetingen

De meest simpele meting is de opaciteitsmeting. Dit is ook onderdeel van de APK, maar wordt in 2022 vervangen door een deeltjesaantallen test als beter maat voor het functioneren van een roetfilter. De fijnstofniveaus moeten zeer hoog zijn om opaciteit met enige betrouwbaarheid te kunnen meten. Is de correlatie tussen opaciteitsmetingen, deeltjesmetingen, en filtermetingen afhankelijk van de motortechnologie en de mogelijke defecten die tot verhoogde fijnstofuitstoot aanleiding geven.

Een alternatieve opaciteitsmeting is de zwartingsmeting, waarbij fijnstof op een filter verzameld wordt, en met licht van meerdere kanten beschenen. Het totale volume van de zwarte stof in het filter is een maat voor roetemissies, vaak ook aangeduid als Black Smoke of Black Carbon.

3.3 Chemische analyses

Een beter onderscheid van de samenstelling van fijnstof op het filter is de chemische analyse. Dat vraagt vaak het gebruik van een inert kwartfilter. Dergelijke filters kunnen gemakkelijk beschadigen, waardoor de massabepaling moeilijker en foutgevoeliger is.

Door het filter te verhitten en de verdamping als functie van de temperatuur te bepalen, kan bijvoorbeeld het aandeel elementair koolstof bepaald worden.¹⁶ Daarnaast zijn er chemische analyse mogelijk met een chromatograaf waarbij verschillende componenten achterhaald kunnen worden. Met röntgenstraling kunnen spoorresten van metalen en mineralen getraceerd worden. Uiteindelijk blijft de vraag waarna er gezocht moet worden. Wat zijn de componenten van fijnstof die relevant zijn voor luchtkwaliteit en gezondheid?

De chemische analyses van filter die verzameld zijn bij metingen aan dieselvoertuigen, in het bijzonder dieselvrachtwagens, met een roetfilter blijkt een probleem. Er wordt in de normale metingen te weinig fijnstof op het filter verzameld om chemische analyse mogelijk te maken. De fijnstofmassa is vaak slechts 10% of minder van de wettelijke eis.

3.4 Verbranding en brandstof

Fijnstof uit de uitlaat bestaat uit verbrandingsproducten van brandstof en olie, met een deel onverbrande brandstof. De toxiciteit van fijnstof hangt daarom sterk samen met de samenstelling van de brandstof, en de toxische componenten daarin. Een belangrijk aandeel hebben de poly-aromatische koolwaterstoffen (PAKs), waarvan er maximaal 35% in benzine kan zitten en 11% in diesel.¹⁷ Daarnaast zijn er ook stoffen in brandstoffen die deeltjesemissies verhogen, zoals zwavel en zware koolwaterstoffen. Het is daarom belangrijk om rekening te houden met de brandstof bij de beoordeling van fijnstofemissies uit de motor. Hierin speelt de opkomst van biobrandstoffen, en de veranderende samenstelling van brandstoffen een rol, zeker in niche markten voor biobrandstoffen.

Voordat het roetfilter voor directe injectie benzineauto's gemeengoed werden in 2018, werd er veel gewezen op de rol van de samenstelling van benzinebrandstof in de emissies. Dat werd als beperking en risico gezien voor emissie-eisen in normaal gebruik. De statistische gegevens lieten zien dat er zo nu en dan een onverklaarbare uitschieter is van hoge fijnstofemissies. Dit effect is mede bepalend geweest voor de statistische evaluatie in de *Conformity of Production* WLTP testen, als kwaliteitscontrole van nieuwe voertuigen bij de fabriek.¹⁸

De samenstelling van fijnstof uit de uitlaat varieert dus met de brandstof en de motortechnologie, en de nabehandelingstechnologie. Maar de variatie is beperkt, en grotendeels gegeven door het aandeel onverbrande en deels verbrande brandstof. Naast een variatie met technologie is er ook een variatie met inzet, waarbij koude start, hoge motorlast, en lage motorlast tot specifieke en hoge fijnstofemissies kunnen leiden.

¹⁶ Elemental carbon emission factors of vehicles for Dutch air-quality assessments, TNO rapport 2017 R11689.

¹⁷ Petrol fuel quality and its effect on the vehicle technology and the environment, TNO rapport, 2020 R11950.

¹⁸ WLTP Task Force on Conformity of Production (CoP TF) at www.unece.org

4 Veronderstelde biologische routes leidend tot gezondheidseffecten

De schadelijke werking van fijnstof kan op meerdere manieren gebeuren. Dit wordt onderzocht in zogenaamd toxicologisch onderzoek. Voor het meten aan fijnstof zouden we idealiter een praktische en reproduceerbare meetwaarde hebben die voor verschillende fijnstofmengsels gemeten kan worden en een voorspellende waarde voor de gezondheidseffecten geeft. Over het algemeen wordt de grootte en de grootteverdeling relevant geacht, in relatie tot de diepte waartoe de deeltjes doordringen in de longen en de cellen.¹⁹ Evenzo lijkt een geïntegreerde meting van de fijnstof reactiviteit zoals oxidatief potentieel een goede kandidaat.

In dit rapport gaat de aandacht uit naar aspecten van fijnstof die relevant kunnen zijn voor gezondheid en in meetprogramma's meegenomen kunnen worden.

Voor het uitbreiden van onderzoek aan fijnstof uit de uitlaat worden verschillende aspecten genoemd:

1. Grootteverdeling van deeltjes, waarbij deeltjes uit de uitlaat typisch rond de 70-100 nanometer, met een grootteverdeling tussen een paar nanometer tot ongeveer 200 nanometer.
2. Aandeel elementair koolstof (EC, *elemental carbon*) in het fijnstof, van 10% voor tweewielers tot 90% voor oude dieselauto's.
3. Chemische samenstelling, met het aandeel organische koolwaterstoffen uit de brandstof, die deels kankerverwekkend zijn en een rol kunnen spelen in het genereren van oxidatieve stress.
4. Chemische, toxische stoffen die gevormd worden in de katalysatoren, zoals formaldehyde.
5. Aandelen mineralen en metalen, vanuit de katalysatoroppervlakken, door slijtage, en van oliën.

Afhankelijk van de veronderstelde mechanismes waarin fijnstof leidt tot gezondheidseffecten, is het relevant om één of meerdere van deze aspecten te meten.

In dit hoofdstuk worden drie belangrijke biologische routes die de waargenomen effecten van blootstelling aan fijn stof verklaren op een rij gezet.

4.1 Overzicht gezondheidseffecten

Dit rapport gaat verder niet in op de mechanismes waarmee deeltjes reageren in het lichaam en gezondheid beïnvloeden. Maar kortweg zijn er drie mechanismes bekend: Ten eerste, deeltjes reageren met zenuwreceptoren in long en daardoor activatie autonome zenuwstelsel (bijvoorbeeld bloeddrukverhoging en hartritmeverandering). Ten tweede, deeltjes hebben interactie met alveolaire long cellen: met oxidatie-stress en ontsteking tot gevolg (hierin lijken metalen en poly-aromatische koolwaterstoffen (PAK's) een rol te spelen.)

¹⁹ Peter Eastwood, *Particulate Emissions from Vehicles*, 2008, Wiley-SAE

Ten derde, zeer kleine nanometer-deeltjes kunnen systemisch beschikbaar komen (van long naar bloedbaan) doordat ze zo klein zijn, via verschillende wegen, naar hersenen toe gaan.

4.1.1 *Interactie longcellen*

Allereerst kunnen de deeltjes met de alveolaire cellen interacteren, waarbij oxidatieve stress reacties en lokale ontstekingsreacties kunnen ontstaan. Deze ontstekingsreacties kunnen zich ook via de bloedvaten naar de rest van het lichaam verspreiden. Hierdoor kunnen vervolg reacties getriggerd worden waardoor uiteindelijk ook disfunctioneren van bloedvaten en verstoring van de bloedstolling op kan treden. Overgangsmetalen en organische moleculen zoals PAK aanwezig op de deeltjes lijken een belangrijke rol te spelen in het genereren van deze oxidatieve stress in de long.

4.1.2 *Ultrafijn fractie*

Ten tweede kan de allerkleinste fractie van fijn stof, de zogenaamde ultrafijne fractie, gedefinieerd als deeltjes kleiner dan 100 nanometer, zich verplaatsen over het alveolaire membraan en zich zodoende via de bloedbaan systemisch bewegen door het lichaam. Tevens zijn er aanwijzingen dat deze deeltjes via de reukzenuw van de neus naar de reukkolf (bulbus olfactorius) in de hersenen kunnen worden getransporteerd.

4.1.3 *Activatie zenuwstelsel*

Als derde kunnen ingeademde deeltjes reageren met zenuw (neurale) receptoren in de long, waardoor het (autonome) zenuwstelsel geactiveerd wordt welke mogelijk leiden tot verhogingen van de bloeddruk en veranderingen in het hartritme.

4.2 **Eigenschappen van fijnstof voor gezondheidseffecten**

Binnen deze gezondheidsmechanismen spelen de volgende aspecten van fijnstof mensels een rol.

4.2.1 *Trojaans paard model*

Een populaire visualisatie van de toxiciteit van fijnstof is het Trojaanse paard model, waarbij de fijnstof deeltjes de dragers zijn van andere toxische elementen tot diep in de longen. De kleine deeltjes die diep doordringen in de longen en daar toxische stoffen afleveren is de combinatie die de toxiciteit geven in dit transportmodel. In dit geval is vooral ook de chemische samenstelling relevant, en wordt fijnstof van benzineauto's, met vaker onvolledige verbranding, als schadelijker gezien dan diesel fijnstof dat voor een groter deel uit elementair koolstof bestaat.

4.2.2 *Harde deeltjes*

Een andere school focust op de harde deeltjes en de mechanische schade. Elementair koolstof en de kleinste deeltjes van enkele tientallen nanometers die op het niveau van een cel, met een omvang van ongeveer 10 micrometer, kan acteren en doordringen door de celwand.

4.2.3 *Toxische cocktail*

Uitlaatgas bestaat vaak naast fijnstof ook uit verbrandingsgassen, zoals NO₂ en CO. De combinatie van fijnstof en deze gassen wordt door sommigen als belangrijke combinatie gezien voor de toxiciteit van uitlaatgas.

De verschillende stoffen apart hebben minder effect. De stoffen in uitlaatgas versterken elkaar bij reacties in levende cellen. Experimenten waarbij uitlaatgas gefilterd wordt, en bijvoorbeeld de gasvormige delen verwijderd, leveren andere uitkomsten bij onderzoek aan cellen.

4.2.4 *Oxiderende deeltjes*

Metaaldeeltjes, zoals van remschijven, en de oxiderende werking leidend tot oxidatieve stress in cellen is een ander mechanisme dat kan leiden tot pathologische schade. Ook andere stoffen, in fijnstof, zijn zuur of oxiderend. In het bijzonder wordt zwavelzuur genoemd, wat met de verminderde zwavel in transportbrandstoffen, vooral nog samenhangt met zeevaartemissies.

4.3 **Relevante karakteristieken van fijnstof**

In het verleden zijn er meerdere onderzoeken en analyses gedaan om aan aanwijzingen uit het veld, of inzichten uit luchtkwaliteitsonderzoek, tegemoet te komen. Meettechnieken zijn hier op aangepast. Veelal leverde dat niet veel op. Het effect van oliegebruik en de impact van directe injectie technologie bij benzinemotoren waren beide overschat op basis van simpele laboratoriumexperimenten en beperkte metingen. Ook is er uitgebreid onderzoek²⁰ naar elementair koolstof gedaan, terwijl in de luchtkwaliteitsmetingen dat al snel een minder belangrijke rol speelde. Ook wordt er vaak voorbij gegaan aan het feit dat een meting in uitlaatgas zelden vergelijkbaar is met een meting in de buitenlucht waar hele andere condities en meetprincipes gehanteerd worden. Desondanks is voor de relevantie van uitlaatemissiemetingen het wel belangrijk dat het verband met luchtkwaliteit en gezondheid wordt gelegd. In dit geval zou een brede blik, die alle verschillende aspecten en mechanismes in overweging neemt, belangrijker zijn dan de focus op één hypothese en één mechanisme.

²⁰ Elemental carbon emission factors of vehicles for Dutch air-quality assessments, TNO rapport 2018 R11689.

5 Conclusies

Meten van emissies aan de uitlaat staat niet op zichzelf, maar moet worden gezien in de context van milieu en gezondheid. Daar waar gasvormige emissies, zoals CO en NO_x, eenduidig bepaald worden, en deze metingen aan de uitlaat een directe relatie hebben met luchtkwaliteit, is het verband voor fijnstof complexer. Filtermetingen, opaciteitsmetingen, deeltjesaantallen metingen, en chemische analyses behoren allemaal tot de mogelijkheden. De keuze van het soort metingen wordt bepaald door meerdere aspecten. Ten eerste, een historische reeks van metingen kan goed gecorreleerd worden met trends in luchtkwaliteit. Het is daarom zaak niet lichtzinnig van meetmethode te veranderen of uit te breiden. Ten tweede, sommige metingmethoden zijn gelijk de wettelijke standaarden. Dat maakt het mogelijk om de effectiviteit van wetgeving te controleren in de praktijk. Ten derde, sommige meetmethoden zijn ontwikkeld om technologie te kunnen beoordelen. Ten vierde, sommige metingen zijn complex, duur, of hebben beperkte reproduceerbaarheid. Een keuze voor een simpele, stabiele en betaalbare meetmethode maakt het mogelijk om ontwikkelingen breed in kaart te brengen.

Vanuit luchtkwaliteit zijn er meerdere verschuiving geweest, zoals van PM10 naar PM2,5 concentraties, wat weinig effect heeft op uitlaatgas fijnstofmetingen omdat bijna alle deeltjes uit de uitlaat ruim kleiner zijn. Een korte tijd was er veel aandacht voor EC (elementair koolstof), maar deze lijkt vervaagd, mede door de verschillende interpretaties en meetmethodes voor deze stof. Aandacht voor deeltjesaantallen is waarschijnlijk relevant. Maar men moet zich er goed van bewust zijn dat het meten van deeltjesaantallen in de buitenlucht niet gelijk is aan het meten van deeltjesaantallen in de uitlaat.

Een coherent en consistent beeld van relevante aspecten van fijnstof is noodzakelijk om richting te geven aan de meet- en monitoringsprogramma's. En alleen goede, brede, en langlopende meetprogramma's kunnen het verband tussen fijnstofemissies, fijnstof in de buitenlucht en gezondheid verder nuanceren. Dit verband tussen bronnen en gezondheid staat weer aan de basis van doelgericht beleid voor schonere lucht.

6 Ondertekening

Den Haag, 30 mei 2022



Geoff Holmes
Projectmanager

TNO



Norbert E. Ligterink
Auteur