

De bijdrage van houtverbranding aan PM10 en PM2.5 tijdens een winterperiode in Schoorl

G.P.A. Kos

E.P. Weijers

Verantwoording

Dit project is uitgevoerd met behulp basissubsidie van VROM en is bekend onder projectnummer 50099.

Abstract

In February 2009 the concentration of wood smoke in a residential area in Schoorl (Noord-Holland, Netherlands) was investigated over a period of three weeks. The aim was to assess the effect of local particulate matter (PM) emissions - caused by heating with wood stoves in this area - on local PM concentration. To reveal the additional contribution of wood smoke to PM_{2.5} and PM₁₀, measurements have been performed at two places: in Schoorl, as being the affected area, and at a farm in Burgerbrug, some 8 km distance from Schoorl. Burgerbrug is considered to be a background location where PM₁₀ and PM_{2.5} are not directly influenced by local wood smoke sources. The sampling took place during westerly winds, a wind direction with usually lower PM concentrations in the coastal region of Noord-Holland.

Besides establishing the difference in mass concentration of PM_{2.5} and PM₁₀ by weighing filter samples from both locations, also the amount of levoglucosan (LG) on the filter was analyzed. Combining the thus gathered information gave insight in the elevated levels of PM - at breathing height - caused by heating with residential wood stoves. It was found that local PM concentrations have indeed a significant higher level at the residential area in Schoorl. The difference of PM in comparison with that in Burgerbrug could be attributed to wood smoke, for also LG concentrations were elevated in Schoorl.

The contribution of wood smoke to the local PM concentration was estimated to be between 9% and 27% for PM₁₀ and between 30% and 39 % for PM_{2.5}.

The ratio between the amounts of LG and PM above the background, was calculated as a factor 42 for PM_{2.5} (concentration PM divided by concentration LG) and a factor 37 for PM₁₀.

Remarkable is that in Burgerbrug levoglucosan levels are found with westerly winds without influence of local sources, suggesting that on that site levoglucosan originates from remote sources (presumably in the United Kingdom).

Inhoud

Lijst van tabellen	4
Lijst van figuren	4
Samenvatting	5
1. Inleiding	7
2. Monsternames houtrookbepaling Schoorl en Burgerbrug	8
2.1 Gevolgde meetmethodiek	8
2.2 Meetlocaties	8
2.3 Meet- en monstermethode	8
2.4 Analysemethodes	9
2.4.1 Bepaling totale fijnstofmassa	9
2.4.2 Bepaling van de hoeveelheid levoglucosan per monster	9
2.5 Resultaten	10
3. Conclusie	15
Referenties	16
Bijlage A Verantwoording zeezoutaftrek	17
Bijlage B Meetlocaties: Schoorl en Burgerbrug	18
Bijlage C Impressie filters, morfologie	19

Lijst van tabellen

Tabel 2.1	<i>De levoglucosan-concentraties zoals die gevonden zijn op PM10- en PM2.5-filtermonsters van Schoorl. De PM10-concentraties zijn de sommaties over twee dagen (filter per dag), de PM2.5-concentraties zijn per tweedaags filter</i>	11
Tabel 2.2	<i>De concentraties PM10 en LG10 gemeten in Schoorl en Burgerbrug</i>	12
Tabel 2.3	<i>De concentraties PM2.5 en LG2.5 gemeten in Schoorl en Burgerbrug. De gemiddeldes zijn gebaseerd op de vetgedrukte waarden in de kolom erboven, behalve van de laatste drie kolommen, die waarden resulteren van de waarden in dezelfde regel (in blauw weergegeven).....</i>	13
Tabel A.1	<i>Vershil in zeezoutconcentratie in Schoorl en Burgervlotbrug</i>	17

Lijst van figuren

Figuur 2.1	<i>Dagen met verhoogde LG-waardes. Let op de verschillende schaling voor levoglucosan en fijnstofconcentratie (een factor 100).....</i>	10
Figuur 2.2	<i>De LG-concentraties gevonden in de PM2.5- en de PM10-filters, voor zover geanalyseerd. Alle concentraties gevonden in de PM2.5-fractie zijn enigszins lager dan die, die in de PM10-fracties gevonden zijn</i>	11
Figuur 2.3	<i>Aandeel van LG in deeltjesgrootte, zoals gemeten in Elverum in Noorwegen m.b.v. een Berner cascade-impactor. De massamediane diameter ligt rond 560nm en 80% van de massa ligt binnen de PM1-fractie (submicron aërosol)</i>	14
Figuur A.1	<i>Vershil in fijnstofconcentraties op diverse plaatsen binnen Noord-Holland, gemeten binnen één dagdeel. De aanzienlijk hogere PM10-concentraties in en rondom de stad zijn waarschijnlijk deels het gevolg van opwaaiend stof door het intensievere verkeer. Bij de dijk is de hogere PM10 en PM2.5-concentratie het gevolg van ongehinderde aanvoer van zeezoutaërosol.....</i>	17
Figuur B.1	<i>Monsternamelocaties die gebruikt zijn voor de bepaling van houtrookgehalten - boven de houtrookgehalten in het achtergrondaërosol - in Schoorl</i>	18
Figuur C.1	<i>Impressie van een deel van de bemonsterde filters.....</i>	19

Samenvatting

In februari 2009 zijn metingen verricht die tot doel hadden het geven van inzicht in de lokale *immissie* als gevolg van lokale *emissie* van houtkachels. Hiervoor zijn PM10- en PM2.5-concentraties gemeten in het gebied waar de emissies plaats vinden (Schoorl) en ook in een niet al te ver weg gelegen achtergrondgebied (open veld te Burgervlotbrug). Behalve bepaling van verschil in massaconcentratie is ook gekeken naar verschil in levoglucosangehaltes. Met het gevonden verschil aan levoglucosangehaltes en massaconcentraties, die gevonden werden bij monsternamen bij luchtaanvoer uit westelijke richtingen, kon aangetoond worden, dat er een significante houtrookbelasting op leefniveau is in woonwijken waar met hout gestookt wordt. Het aandeel van lokale houtrook aan lokaal fijnstof wordt voor de onderzochte periode geschat tussen 9% en 27% voor PM10 en tussen 30% en 39 % voor PM2.5. De verhouding van levoglucosan met de toegenomen fijnstofconcentratie is een factor 41.6 voor PM2.5 en een factor 36.5 voor PM10. Ook op de achtergrondlocatie werd (in veel mindere mate) levoglucosan aangetoond, wat er op duidt dat er ook een algemene aanvoer is van houtrook bij westelijke aanvoer-richting van de lucht.

1. Inleiding

Verwacht wordt dat houtverbranding van toenemende invloed is op de PM10- en zeker op de PM2.5-concentraties in Nederland, door toename van houtverbrandingsinstallaties [1]. In Duitsland en in Vlaanderen is dit al geconstateerd. De relatieve bijdrage van houtrook zal belangrijker worden als andere emissies zullen verminderen.

Er zijn redenen waardoor houtstook zal kunnen toenemen, zoals besparing op energiekosten, sfeer scheppen, en - hoewel tegenstrijdig - milieuzorg (klimaatverandering). Ook omzetsijging in de brandhouthandel en kachelbranche duiden op een mogelijke toename.

Om in een woonwijk met houtkachelgebruikers het effect van houtverbranding op de luchtkwaliteit te kunnen vaststellen, is in de winter van 2009 een meetcampagne gehouden. Beoogd werd de bijdrage van houtverbranding aan PM10- en PM2.5-concentraties te bepalen. Tevens werd getracht de relatie van levoglucosan en houtrook te bepalen. De meetresultaten van het onderzoek naar lokale emissies door houtverbranding worden in dit rapport gepresenteerd.

2. Monsternames houtrookbepaling Schoorl en Burgerbrug

2.1 Gevolgde meetmethodiek

2.2 Meetlocaties

Om een beeld te krijgen van de invloed van houtverbranding op de plaatselijke luchtkwaliteit zijn twee locaties gevonden die niet ver van elkaar af liggen maar een groot verschil in kans hebben om met houtrook te maken te krijgen: één in Schoorl en één nabij Burgerbrug in het poldergebied juist ten westen van de N9.

De ligging van Schoorl is noordoostelijk van een breed duingebied van ruim 4 km breed, dat steeds smaller toeloopt naar het noordwesten, om tenslotte nabij Camperduin over te gaan in de Hondsbossche Zeewering. Bij westelijke windrichting wordt de luchtstroming getemperd door bos en duin. Lokale emissies zullen hierdoor iets minder goed verspreiden, ondanks de ligging nabij de kust. Zie Bijlage B voor de exacte ligging van de meetlocaties.

De meetlocatie in de polder van Burgerbrug is bij een windrichting tussen westzuidwest en noordwest niet beïnvloed door een bebouwde kom en dus niet door plaatselijke emissies. Slechts aerosol dat van ver of van zee aangevoerd wordt, zal invloed op de fijnstofconcentratie hebben. Meer nabije emissies van de woongebieden Petten en Schoorl en de provinciale weg - de nabije N9 - zijn slechts bij andere windrichtingen nog van invloed. Wel is er al een afstand van kilometers t.o.v. die woonkernen, waardoor verdunning optreedt.

De aangevoerde grootschalige luchtverontreiniging zal op de meetlocaties niet veel verschillend zijn, gezien de relatief nabije ligging. Een klein verschil aan achtergrondaerosol kan veroorzaakt worden door de zeezoutbijdrage vanwege zowel het verschil in doorstromingsnelheid van de lucht vanuit het westen als ook het verschil in ruwheid van het terrein. De meetlocatie bij Burgerbrug was iets verder verwijderd van zee, maar de wind zet veel beter door, veroorzaakt door de kale dijk en de vlakke polder, waardoor uiteindelijk minder tijd en geschikt oppervlak is voor depositie. De golvende duinen met naaldboombegroeiing zorgen voor een luchtvertraging en interceptie van zeezoutdeeltjes door naalden en turbulente luchtbeweging.

Voor een bepaling van het verschil in zeezoutconcentratie bij westelijke windrichting bij de meetlocaties, is op een - qua meteorologie geschikte dag met westelijke wind en aanvoer van schone lucht - gemeten met een optische deeltjegrootteteller (Las-X van PMS, USA: bereik van 0.1 tot 10 μm). Er werd bij de meetlocatie Burgerbrug gemeten - zonder verstoring van eventuele windopwaartse bebouwingen - en in Schoorl bij de duinvoet zonder verstoring van lokale emissies.

Het verschil in zeezoutgehalte in het aerosol bij Burgerbrug en in Schoorl werd vastgesteld op een dag met droog en lichtbewolkt weer, bij een relatieve vochtigheid van ca. 70% en een windsnelheid van 6 m/s. Het gehele verschil van 2.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ in aerosolconcentratie, werd toegeschreven aan een verschil van zeezoutconcentratie, aangezien andere lokale bronnen - zoals verkeer en opwaaiend stof - op de gekozen meetlocaties vermeden waren.

2.3 Meet- en monstermethode

De monsternamen van het aerosol tijdens de meetcampagne in de winterperiode (februari 2009) werd uitgevoerd met z.g. Leckels die uitgerust waren met PM2.5- en PM10-voorafscheiders.

Deze Kleinfiltergeräte (Leckels of hier kortweg KFG's) zijn gecertificeerde monsternemers volgens NEN-EN 12341, die luchtstof in de grootteklasse PM10 en PM2.5 op kwartsvezelfilters verzamelen. Op beide locaties (zie 2.2) stonden twee KFG's: één voor PM2.5 en één voor PM10. De KFG's zijn geautomatiseerd zodat er een hoeveelheid filters in filterhouders in voorraad in de KFG geplaatst kan worden en er tevens via een programma volgens tijdschema gemonsterd kan worden. De monsters werden voor PM2.5 per twee dagen genomen en voor PM10 per dag. Het verschil in monsternamperiodes vloeit voort uit het verschil in debiet dat opgelegd werd door het type voorafscheider. De kwaliteit en samenstelling van de filters wordt bepaald door de te analyseren componenten. Voor onze toepassing, het bepalen van levoglucosan (verder LG genoemd in tabellen), bleek kwartsvezel de beste filterkeus.

De reeksen verzamelde filtermonsters werden zowel gewogen als geanalyseerd, respectievelijk om *het totaal fijnstofgehalte* en de hoeveelheid levoglucosan te bepalen. De wegingen zijn uitgevoerd bij de GGD in Amsterdam en ze zijn uitgevoerd volgens NEN EN 14907 en NTA 8019. De chemische analyse beperkte zich tot levoglucosan, een voor houtrook kenmerkende koolwaterstofverbinding. Door nu het verschil in de totale massabelading te bepalen en dat verschil te vergelijken met de verschillen in levoglucosan kon een factor bepaald worden waarmee van een concentratie levoglucosan naar een totale aerosolmassa van houtrook kan omrekenen. Zodoende kan met behulp van de aldus bepaalde *conversiefactor* op meer plaatsen in het land een bijdrage van houtrook geschat worden, zonder steeds achtergrondmetingen te hoeven verrichten, die representatief zijn voor het bepalen van het achtergrondniveau van het aerosol dat naar de te bemeten locatie aangevoerd wordt. Hierbij moet wel opgemerkt worden dat de in de literatuur gevonden conversiefactoren nogal verschillend zijn, een variatie die waarschijnlijk voornamelijk bepaald wordt door de gebruikte brandstof c.q. houtsoort.

2.4 Analysemethoden

2.4.1 Bepaling totale fijnstofmassa

Voor de bepaling van de totale fijnstofmassa die per filter verzameld is werd gebruik gemaakt van een microbalans van het type Mettler Toledo type PR503. onder geconditioneerde omstandigheden.

2.4.2 Bepaling van de hoeveelheid levoglucosan per monster

De LG-analyses werden gedaan met een gas-chromatograaf met massaspectrometer, TRACE GC ULTRA en DSQII. Een heel of deel van een filter wordt 3x ultrasoon geëxtraheerd met een DCM/MeOH mengsel.

Na indampen en filtratie wordt de droogrest gederivatiseerd met TMSI. Na oplossen in toluen wordt het gehalte levoglucosan-derivaat bepaald met GCMS, die is uitgerust met een α -polaire scheidingskolom.

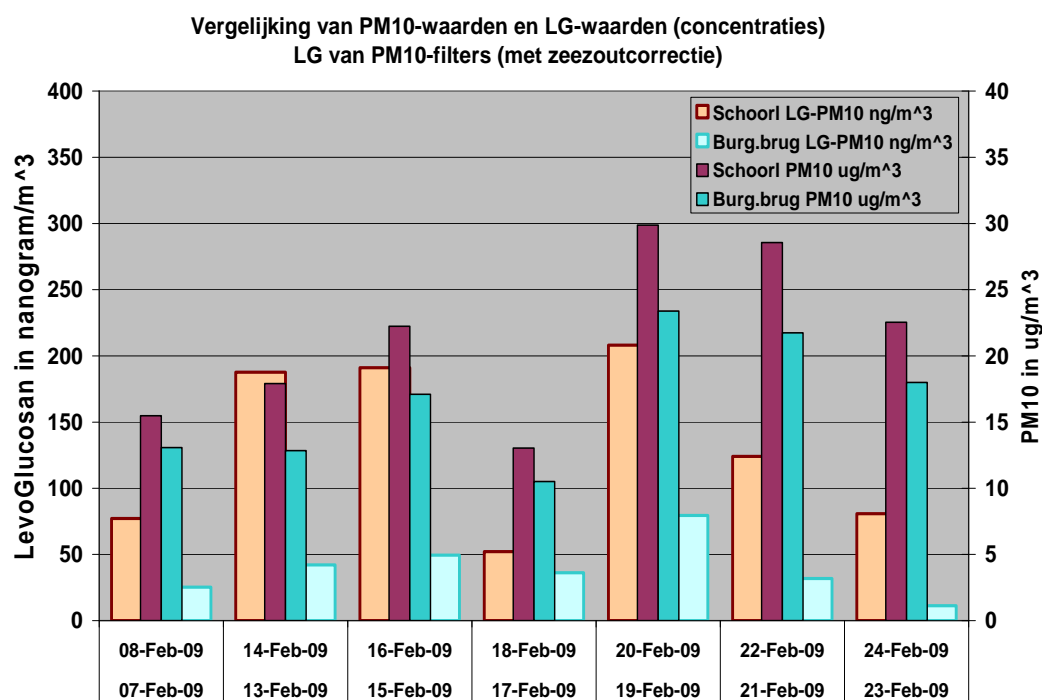
Voor het bepalen van de efficiëntie van de LG-opwerking worden recovery-standaarden toegevoegd aan het te analyseren monster (filter), zodoende wordt gecontroleerd of alle bewerkingen die nodig zijn voor de uiteindelijke analyse goed zijn uitgevoerd.

De volgende stoffen worden in het proces gebruikt:

Interne standaarden, 1,5-anhydro-D-mannitol en anthracene D10 en recovery standaarden: 1,2,3-hexanetriol, 1,2,6-hexanetriol en 6-methylchrysene.

2.5 Resultaten

Er is gemonsterd in de periode van 7 tot 24 februari 2009 met niet echt winterweer. Voor de Bilt geldt dat de maand iets boven normaal eindigde (3.3 graden t.o.v. 3 graden normaal) waarbij het koudste deel geregistreerd werd nog voor de monsternamen. Er is dus niet extra stookactiviteit geweest. Binnen de onderzochte periode viel ook nog eens de voorjaarsvakantie, waardoor ook minder hout gestookt kan zijn. Op een aantal dagen was de wind uit het oosten waarbij dan op de gekozen locatie in Schoorl vrijwel geen aanvoer van houtrook mogelijk was, doordat de meetlocatie zich vrijwel aan de oostzijde van de bebouwing bevindt. Ook zijn monsters bij oostenwind ongeschikt omdat oost van de achtergrondlocatie een drukke provinciale weg ligt. Bij de dagen met westelijke windrichting werd binnen de onderzoeksperiode op een flink aantal dagen levoglucosan aangetoond, zoals te zien is in Figuur 2.1.



Figuur 2.1 Dagen met verhoogde LG-waarden. Let op de verschillende schaling voor levoglucosan en fijnstofconcentratie (een factor 100)

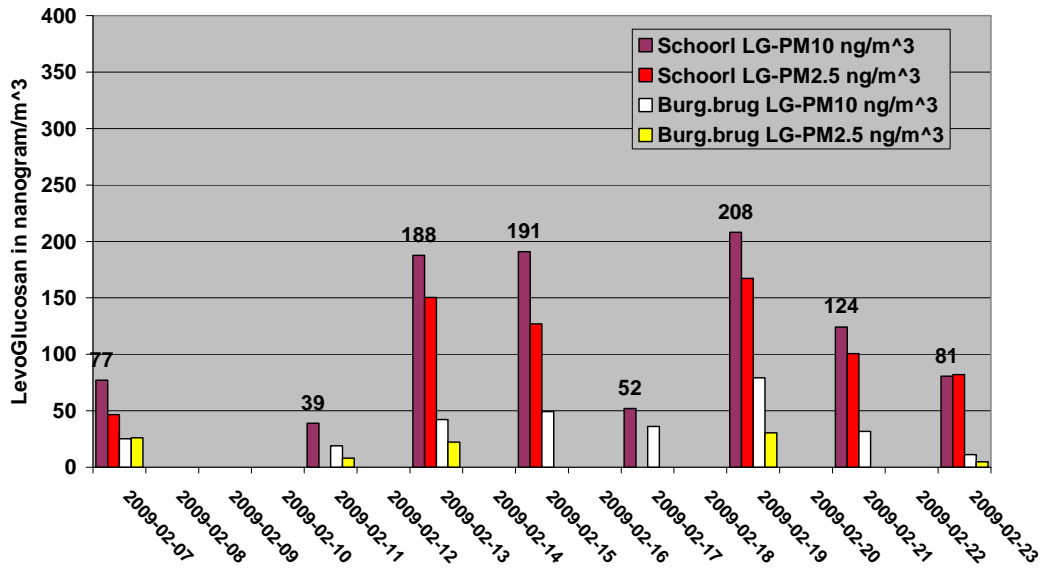
De dagen die lijken te ontbreken in de tijdreeks, zijn dagen waarop wel gemonsterd is, maar waarvan de filtermonsters niet geanalyseerd zijn op levoglucosan, omdat er op die dagen een oostelijke wind was.

Duidelijk is te zien dat op locatie Schoorl zowel de totale massaconcentratie van het fijnstof hoger ligt evenals de LG-concentraties.

De resultaten zijn gecorrigeerd voor een verschil in zeezoutconcentratie op de twee meetlocaties, bij westelijke windrichting, van 2.4 µg/m³. Zie voor de verantwoording: Bijlage A.

Om meer zekerheid te krijgen over de representativiteit van de LG-concentraties die m.b.v. PM10-filters verkregen zijn, zijn er ook LG-analyses gedaan van PM2.5-filters die parallel aan de PM10-filters gemonsterd waren. Daarbij is een selectie gemaakt van een beperkt aantal filters, dat volgens de al gerapporteerde analyses vrijwel zeker een redelijk meetbare hoeveelheid LG zouden moeten bevatten. Er bleek een goede overeenstemming te zijn van de LG-concentraties gevonden op PM10-filters en de geselecteerde PM2.5-filters, zoals in Figuur 2.2 goed te zien is. Dit geeft vertrouwen in de LG-analyses en de monsternamen.

Vergelijking van PM10-waarden en LG-waarden (concentraties)
LG van PM10- en PM2.5-filters



Figuur 2.2 De LG-concentraties gevonden in de PM2.5- en de PM10-filters, voor zover geanalyseerd. Alle concentraties gevonden in de PM2.5-fractie zijn enigszins lager dan die, die in de PM10-fracties gevonden zijn

Door buitenlands onderzoek is bekend dat houtrook gemiddeld genomen voor ca. 90% binnen PM2.5 terug te vinden is. [2]

Als we voor de in Schoorl gevonden LG-concentraties de verhouding berekenen van PM2.5 en PM 10 waardes dan vinden we een factor 0,8, echter met een zodanige standaarddeviatie dat een factor 0,9 binnen bereik blijft (zie tabel 2.1).

Tabel 2.1 De levoglucosan-concentraties zoals die gevonden zijn op PM10- en PM2.5-filtermonsters van Schoorl. De PM10-concentraties zijn de sommaties over twee dagen (filter per dag), de PM2.5-concentraties zijn per tweedaags filter

	Schoorl LG-10 ng/m ³	Schoorl LG-2.5 ng/m ³	Schoorl LG2.5/ LG10 ng/m ³
07-08-Feb-2009	77	47	0.60
11-12-Feb-2009			
13-14-Feb-2009	188	150	0.80
15-16-Feb-2009	191	127	0.67
17-18-Feb-2009			
19-20-Feb-2009	208	167	0.80
21-22-Feb-2009	124	101	0.81
23-24-Feb-2009	81	81	1.02
gemiddeld	145	112	0.8
stdev			0.14

Uit de bekende PM10-concentraties, vastgesteld met wegingen, en de LG-concentraties, verkregen uit de analyse, zijn ook de verschilconcentraties vast te stellen voor Schoorl en Burgerbrug: voor zowel totaal fijnstof (PM) als voor levoglucosan. Voor het verschil van deze concentraties (na aftrek van zeezoutconcentraties) moet de lokale emissie in Schoorl verantwoordelijk zijn.

Het is met behulp van deze concentratieverschillen dan ook mogelijk om aan te geven, of de verhoging een relevante bijdrage in de totaalconcentratie fijn stof geeft in het emissiegebied. In tabel 2.2 staan de resultaten voor PM10.

Tabel 2.2 *De concentraties PM10 en LG10 gemeten in Schoorl en Burgerbrug*

	Schoorl	B.brug	Schoorl	B.brug	Schoorl minus BB (A)	Schoorl minus BB (B)	Ver- houding netto (A/B)
	PM10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	PM10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	LG-PM10 ng/m^3	LG-PM10 ng/m^3	PM10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	LG-PM10 ng/m^3	PM/LG factor
7-Feb-09	15.5	13.1	93.6	25.3	2.4	68.3	35
11-Feb-09	15.8	14.9	39.0	19.0	0.9	20.0	45
13-Feb-09	17.9	12.8	322.2	42.1	5.1	280.1	18
15-Feb-09	22.2	17.1	308.3	49.4	5.1	258.9	20
17-Feb-09	13.0	10.5	52.1	36.0	2.5	16.0	158
19-Feb-09	29.9	23.4	300.6	79.3	6.5	221.2	29
21-Feb-09	28.6	21.7	53.2	31.8	6.8	21.4	319
23-Feb-09	22.5	18.0	53.9	11.2	4.6	42.7	107
Gemiddelde	20.7	16.4	152.9	36.8	4.2	116.1	36.5

Zoals uit tabel 2.2 is af te leiden, is er gemiddeld genomen voor de op windrichting geselecteerde dagen een concentratieverhoging t.o.v. achtergrondgebied Burgerbrug van ruim $4 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Dit is bij een totaalconcentratie van ruim $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ en dat geeft dan een aandeel van 20% in het fijnstofgehalte op de belaste locatie.

Dit is echter gebaseerd op het verschil van Schoorl en Burgerbrug en *hoeft niet* de absolute hoeveelheid houtrook te zijn: als bij Burgerbrug al een verhoogd niveau is van houtrook - en dat lijkt ook zo te zijn omdat daar immers ook levoglucosan gevonden wordt - kan dat zowel daar als in Schoorl *van verder weg aangevoerde houtrook zijn* en dan moeten we ook die hoeveelheid houtrook verdisconteren. Dat kan gedaan worden door uit te gaan van de gemiddeldes uit tabel 2.2, waarbij dan de LG-concentratie gevonden bij Schoorl vermenigvuldigd wordt met de gevonden verhoudingsfactor 37 (PM10/LG): daaruit volgt een concentratie van $5,7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ voor het absolute aandeel van houtrook in PM10 in Schoorl.

Waarschijnlijk ligt de werkelijke houtrookconcentratie gegenereerd in Schoorl, ergens tussen 4.2 en $5.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ofwel tussen 20 en 27%, dit, omdat we immers niet zeker weten of er ook houtrook van verder weg gelegen bronnen interfereert.

Overigens gelden die waarden bij de toegepaste zeezoutaftrek. Zouden we die aftrek achterwege laten, dan komen we op percentages van respectievelijk 9 en 16%..

De gevonden achtergrondconcentratie bij de westelijke windrichtingen, zou afkomstig kunnen zijn van Engeland. Tegelijkertijd met het onderzoek in Nederland heeft een onderzoek in Engeland in Londen plaatsgevonden [3], waarbij van 10 januari tot eind februari 2009 gemonsterd is: de gemiddelde concentratie op 3 sites was $185 \text{ ng}/\text{m}^3$, $223 \text{ ng}/\text{m}^3$ en $243 \text{ ng}/\text{m}^3$, dat was resp. in Bexley en twee plaatsen in Greenwich. Er werden grote variaties gevonden rond de gemiddelde concentratie: minimaal 20 tot maximaal $800 \text{ ng}/\text{m}^3$. De EC-concentraties liepen daar goed parallel aan de LG-concentraties met een verhouding van naar schatting een factor 8¹).

¹ Houtrook is een combinatie van EC en OC, dus deze factor 8 is geen indicatie van een conversiefactor naar totaal houtrook op basis van de LG-concentratie, maar geeft wel aan dat die conversiefactor ver boven 10 zal liggen, omdat in houtrook veel OC ook zit.

De in Engeland gevonden concentraties aan levoglucosan geven aan dat we niet alleen van het continent aanbod van houtrook hoeven te verwachten. Het aandeel van houtrook aan de PM10-concentraties werd voor het Londense gebied op gemiddeld 3 tot 4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ berekend, gebruik makend van een conversiefactor van ca. 20 van levoglucosan naar PM10. Deze factor is gebaseerd op het laatste werk van Yttri et al [4] waarbij een variatie in die factor gevonden werd van 15 tot 25 met voorkeur voor de laatste factor van **25**. Caseiro et al [5] komen niet verder dan een factor 10.5 voor omzetting naar PM10, maar mogelijk dat de in Oostenrijk gebruikte houtsoort daarbij een rol zou kunnen spelen.

De gevonden factor van 37 voor de verhouding van levoglucosan en PM10 ligt niet ver van de factoren die we binnen ander (internationaal) onderzoek kunnen terugvinden. Eerder onderzoek van Yttri et al [4] gaf een aandeel van 2.6 % voor het aandeel van LG in PM10 (factor 38) op een locatie waar vrijwel de volledige fijnstofconcentratie veroorzaakt werd door houtrook en dus emissie ter plaatse, zoals ook in het huidige onderzoek het geval was.

Behalve de bepaling van levoglucosan in PM10 heeft er dus ook een bepaling van LG-gehalte in PM2.5 plaatsgevonden. Aangezien de PM2.5-metingen merendeels als back-up voor de PM10-metingen dienden en als controle op enkele LG-concentraties van PM10-monsters uitgevoerd zijn, is er maar een beperkte dataset beschikbaar. Omwille van de volledigheid worden ook deze uitkomsten weergegeven, zie voor de resultaten van de LG-analyses van PM2.5 in tabel 2.3.

Tabel 2.3 *De concentraties PM2.5 en LG2.5 gemeten in Schoorl en Burgerbrug. De gemiddeldes zijn gebaseerd op de vetgedrukte waarden in de kolom erboven, behalve van de laatste drie kolommen, die waarden resulteren van de waarden in dezelfde regel (in blauw weergegeven)*

	Schoorl	B.Brug	Schoorl	B.Brug	Sch-BB	Sch-BB		
	PM2.5	PM2.5	LG-PM2.5	LG-PM2.5	PM2.5	LG-PM2.5	PM2.5/LG	PM2.5/LG
	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	ng/m^3	ng/m^3	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	ng/m^3	factor	factor
7- 8 Feb-09	5.3	5.6	46.7	26.0	-0.26	20.6	n.a,	
11-12 Feb-09	6.2	4.5		8.1	1.74			
13-14 Feb-09	9.2	4.9	150.4	22.2	4.34	128.2	33.9	
15-16 Feb-09	12.6	8.2	127.0		4.44	127.0	35(max.)	
17-18 Feb-09	15.7	12.4			3.34			
19-20 Feb-09	16.8	10.3	167.4	30.5	6.54	136.9	47.8	
21-22 Feb-09	15.3	10.7	100.6		4.64	100.6	46.1(max.)	
23-24 Feb-09	10.1	6.8	82.1	4.9	3.34	77.3	47.9	
<i>Gemiddelde</i>	<i>12.0</i>	<i>7.3</i>	<i>133.3</i>	<i>19.2</i>	<i>4.7</i>	<i>114.1</i>	<i>41.5</i>	<i>41.6</i>
<i>St.dev.</i>								<i>7.1</i>

Opvallend is dat voor PM2.5 minder spreiding in de factoren gevonden wordt dan bij de PM10-waarden voor de verhouding van LG en PM. De toegepaste zeezoutaftrek, die eerder al verklaard is, is hier op 0.84 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ gehouden, 35% van de PM10-waarde voor de zeezoutaftrek. (deze verhouding is zoals in het BOP-rapport " *The contribution of sea salt to PM10 and PM2.5 in the Netherlands*" beschreven staat) Hoewel de spreiding minder groot is, is de uiteindelijk resulterende verhoudingsfactor van LG en PM niet veel anders dan die gevonden voor PM10.

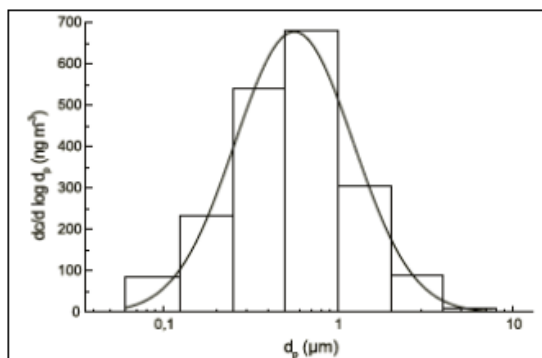
Omdat houtrook voor minstens 90% binnen de PM2.5-fractie valt, is de factor op basis van PM2.5 monsters wel iets groter 41.6 i.p.v. 36.5.

Resumerend: we hebben dus bepaald wat de massaverschillen zijn tussen PM10 en PM2.5 gemonsterd in Schoorl en Burgerbrug. Ook hebben we de zeezoutverschillen verdisconteerd en de overgebleven verschillen (Schoorl minus Burgerbrug) kennen we toe aan verschil door hout-

rook. Daarna hebben we gekeken wat de verhouding is tussen levoglucosanverschillen in PM10 en PM2.5 en de massaverschillen van dezelfde monsters. Als er geen andere bronnen van fijn stof het verschil bepalen *dan alleen houtrook*, moeten de verhoudingsfactoren gelijk zijn voor PM10 en PM2.5. Per monster kan er natuurlijk een afwijking zijn omdat er ook variatie is in levoglucosangehalte in houtrook. Gemiddeld genomen moeten de verhoudingsfactoren echter dicht bij elkaar komen te liggen: met 41.6 voor PM2.5 en 36.5 voor PM10 is dat ook zo.

In Figuur 2.3 is de massaverdeling van LG te zien (overgenomen uit het rapport van Yttri et al in 2005 [6] waarbij deze verdeling tevens de massaverdeling van houtrook zelf naar deeltjesgrootte goed weergeeft. Vrijwel alle LG valt binnen de PM2.5-fractie en als de verhouding LG en totaal aan houtrook per deeltjesgrootte gelijk blijft, zal dus ook vrijwel alle houtrook binnen die fractie vallen.

Het aandeel van houtrook in PM2.5 komt met $4.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ t.o.v. een gemiddeld totaal van $12.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ op gemiddeld 39% voor de onderzochte periode waarvan ook de analyses bekend zijn (8 dagen van 17). De 3 dagen die zonder LG-analyse van de achtergrondlocatie zijn gegeven duiden eveneens op een forse bijdrage van houtrook. Twee dagen ontbreken vanwege een oostelijke windrichting: uiteindelijk zijn 12 van 15 onderzoekbare dagen aantoonbaar met houtrook belast. Daarmee moet het aandeel van 39% teruggebracht worden tot minstens 30% aandeel van houtrook in de PM2.5-fractie, over een halve maand beschouwd. Opgemerkt moet worden dat dit wel geldt voor een westelijke windrichting, waarbij over het algemeen de aangevoerde PM2.5-concentraties lager zijn dan bij afluende windrichting. Blijft staan dat bijna $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ verhoging in de PM2.5-fractie qua massa nog steeds een significante bijdrage zou kunnen zijn aan PM2.5-concentraties die de dagnorm van $25 \mu\text{g}/\text{m}^3$ overschrijden. De chemische samenstelling is van dien aard dat we dit aandeel aan fijn stof van belang is. Analyses van RIVM aan deze monsters lieten zien dat er een significant Redox-potentiaal in het stof aanwezig is.



Figuur 2.3 *Aandeel van LG in deeltjesgrootte, zoals gemeten in Elverum in Noorwegen m.b.v. een Berner cascade-impactor. De massamediane diameter ligt rond 560nm en 80% van de massa ligt binnen de PM1-fractie (submicron aërosol)*

3. Conclusie

Deze rapportage geeft aan dat er een belangrijke fijnstofbron binnen woonkernen aanwezig kan zijn als daar biomassa verbrand wordt: dit kan worden afgeleid van de gevonden verhoogde concentraties LG en PM op de belaste locatie (Schoorl) ten opzichte van de achtergrondlocatie (Burgerbrug). Een indicatie hiervoor is ook de morfologie van de filters: de in Schoorl bemonsterde filters zijn vaak zwarter dan die, die in Burgervlotbrug bemonsterd zijn. (morfologie filters, bijlage C).

Deze houtrookbron zal het sterkst zijn in de winterperiode, dit als gevolg van de toename van het verwarmen van de huizen. Hierin wordt deels voorzien door aanvullende houtstook met open haarden, voorzetkachels of houtkachels. Volgens InfoNu [7] heeft 1 op de vijf huishoudens een dergelijke houtverbrandingsinstallatie.

Bij de relatie levoglucosan en houtrook moet altijd in gedachten gehouden worden dat er met een gevonden hoeveelheid levoglucosan, niet eenvoudig kan worden vastgesteld wat de totaalhoeveelheid houtrook voor een bepaald gebied is. Men kan niet slechts de gevonden levoglucosawaarde met een factor vermenigvuldigen. Bij metingen direct aan de emissie van houtkachels in Århus in Denemarken werd namelijk een grote variatie in emissie van levoglucosan aangetoond. Het kan verschillen per houtverbrandingsbron maar ook over de tijd gezien per bron [8]. De conversie geldt als een *benadering* om tot de totale hoeveelheid houtrook te komen en pas bij langduriger monstern - of bij een veelvoud van bronnen op een belaste locatie - zal de conversie redelijk betrouwbaar zijn.

De spreiding in het aandeel van LG is in PM10 groter dan in PM2.5, wat duidt op grotere relatieve bijdrage in PM2.5. Dat is verklaarbaar aan de hand van de deeltjesgrootteverdeling van houtrook, het grootste deel van het spectrum is in de PM2.5-fractie terug te vinden (Figuur 2.3). Anders verwoord komen we tot het volgende:

Op de hoeveelheid aërosol tussen 2.5 en 10 μm heeft houtrook vrijwel geen invloed, op de hoeveelheid kleiner dan 2.5 μm wel. Een houtrookemissie zal dus tot een verhoging van de PM10-concentratie leiden door toename in voornamelijk de PM2.5-fractie. De relatieve toename in de PM2.5-fractie is dus het grootst.

Voor Schoorl werd het aandeel van lokale houtrook aan lokaal fijnstof voor de onderzochte periode geschat op minimaal 9% en maximaal 27% voor PM10 en op minimaal 30% tot maximaal 39% voor PM2.5. Uitgedrukt in toenames is dat tussen 10 en 37% toename van PM10 en tussen 43 en 61% toename van PM2.5.

De ratio van de boven de achtergrondwaarde uitgestegen hoeveelheid LG en PM, was voor PM2.5 een factor 42 (concentratie PM gedeeld door de concentratie LG) en een factor 37 voor PM10.

Referenties

- [1] <http://www.energieraad.nl/newsitem.asp?pageid=2879>
- [2] NILU: OR 97/2006 Steinar Larssen en Leif Otto Hagen. Studie van bijdrage van houtverbranding en andere bronnen aan verontreiniging door luchtstofdeeltjes in de lucht in Oslo.
- [3] (voorlopige publicatie) Establishing a biomass burning baseline for London –initial results Gary Fuller et al King’s College London, Karl Espen Yttri–NILU
- [4] J. Air & Waste Manage. Assoc. 55, (2005) 1169-1177. Yttri, K.E., et al. Quantification of monosaccharide anhydrides by negative electrospray HPLC/HRMS-TOF – Application to aerosol samples from an urban and a suburban site influenced by small scale wood burning.
- [5] Atmospheric Environment 43 (2009) 2186–2195; Alexandre Caseiro, Heidi Bauer, Christoph Schmidl a, Casimiro A. Pio, Hans Puxbaum) Wood burning impact on PM10 in three Austrian regions;
- [6] Norwegian Institute for Air Research. Karl Espen Yttri. Carbonaceous particulate matter – a great challenge.
- [7] <http://huis-en-tuin.infonu.nl/wonen/48496-eeen-houtkachel-of-open-haard.html>
- [8] <http://www2.dmu.dk/Pub/AR235.pdf>

Bijlage A Verantwoording zeezoutaf trek

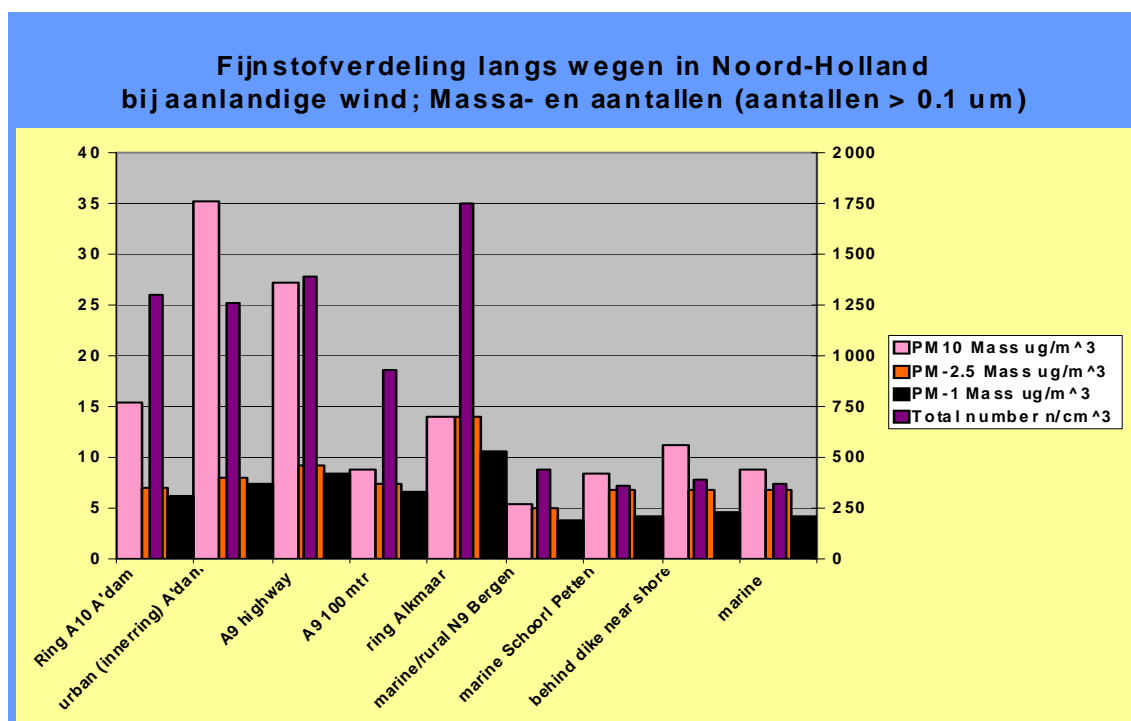
Gebaseerd op de meting met de Las-X - een optisch meetapparaat voor het bepalen van de deeltjesgrootteverdeling van luchtstof - is er een correctie uitgevoerd voor verschillen in zeezoutconcentratie op de verschillende meetlocaties. De uitvoering van deze meting is eerder in dit rapport al beschreven. Bij Burgerbrug wordt een hogere zeezoutconcentratie dan in Schoorl gevonden bij westen wind, en het verschil is in mindering gebracht op de fijnstofconcentratie daar. Dat de zeezoutconcentraties achter het duingebied lager zijn dan achter de dijk en het daaropvolgend kale, vlakke landschap, is al bekend uit in het verleden gedane metingen, die de gedane correctie ondersteunen.(Fig. A1)

Die eerdere metingen zijn toen gedaan over langere trajecten in Noord-Holland, met een meetwagen waarin ook een Las-X (PMS, bereik van 0.1 tot 10 μm) was geplaatst en die via een inlaatsysteem aërosolconcentraties bepaalde in de buitenlucht tijdens het rijden.

De tabel hieronder geeft gemeten verschil in zeezoutconcentratie in Schoorl en Burgervlotbrug.

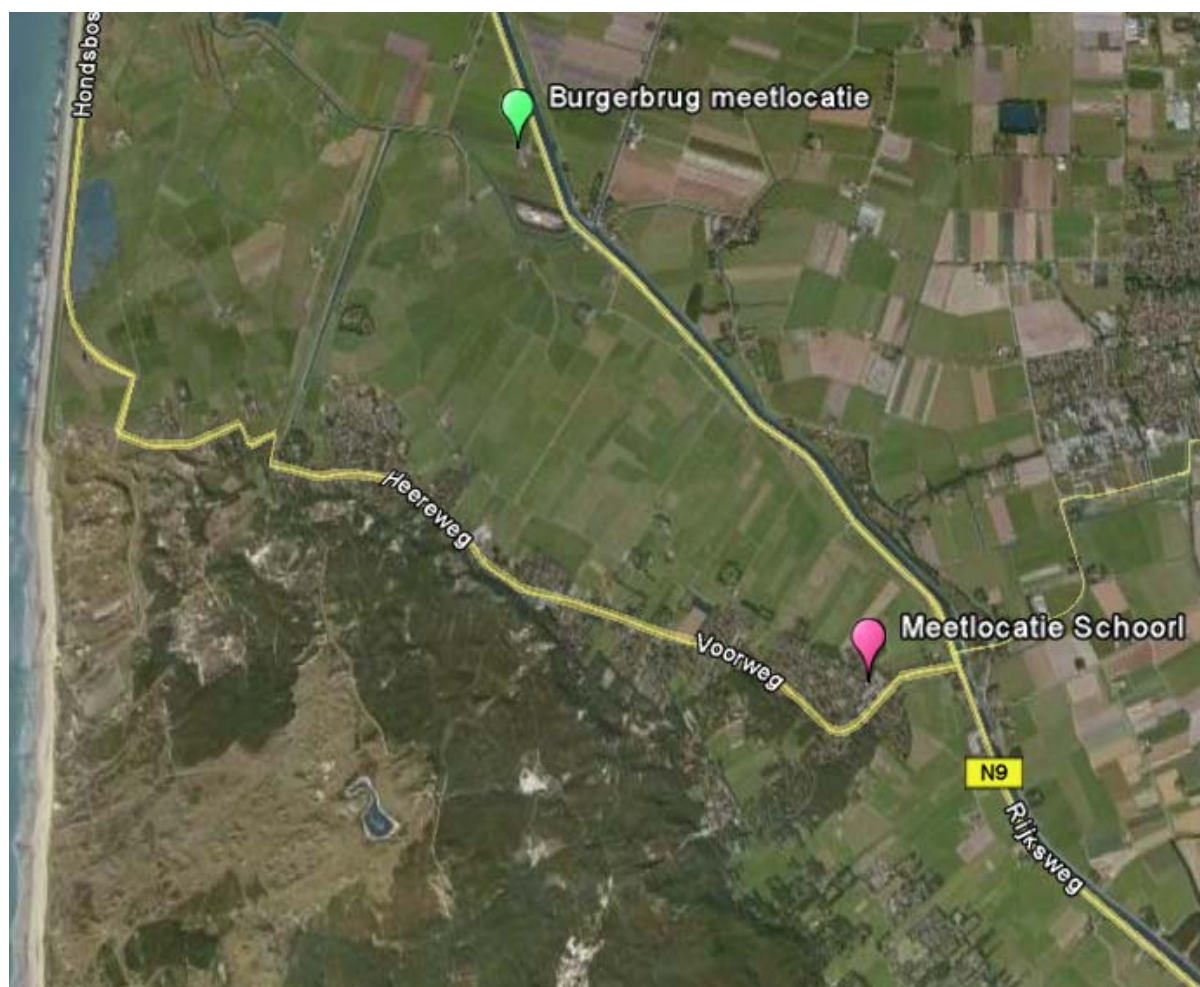
Tabel A.1 *Vershil in zeezoutconcentratie in Schoorl en Burgervlotbrug*

	Total number n/cm^3	PM10 Mass $\mu\text{g/m}^3$
Schoorl gemiddeld	754	12.2
Burgerbrug	1080	14.6
Vershil	326.3	2.4



Figuur A.1 *Vershil in fijnstofconcentraties op diverse plaatsen binnen Noord-Holland, gemeten binnen één dagdeel. De aanzienlijk hogere PM10-concentraties in en rondom de stad zijn waarschijnlijk deels het gevolg van opwaaiend stof door het intensievere verkeer. Bij de dijk is de hogere PM10 en PM2.5-concentratie het gevolg van ongehinderde aanvoer van zeezoutaërosol.*

Bijlage B Meetlocaties: Schoorl en Burgerbrug



Figuur B.1 *Monsternamelocaties die gebruikt zijn voor de bepaling van houtrookgehaltenes - boven de houtrookgehaltenes in het achtergrondäerosol - in Schoorl*

Bijlage C Impressie filters, morfologie

Impressie van een deel van de bemonsterde filters; gelijke periodes zijn gepaard.

Oneven code betreft Burgerbrug referentielocatie, even code betreft de belaste locatie, 59 en 60 zijn blanco filters.

De linkerparen zijn PM10-filtermonsters de rechterparen zijn PM2.5-filtermonsters.

Qua periode komen 4 linkerparen overeen met 2 rechterparen.



Figuur C.1 *Impressie van een deel van de bemonsterde filters*