



**Vlaanderen**  
is milieu

# Inschatting van de bijdrage van houtverbranding door burgers aan luchtverontreiniging in Vlaanderen

Eindrapport

Eindrapport

# Inschatting van de bijdrage van houtverbranding door burgers aan luchtverontreiniging in Vlaanderen: Eindrapport

Van Poppel Martine, Aerts Wim, Bayens Bart, Brabers Rob, Peters Jan, Spruyt Maarten, Van Laer Jo

Studie uitgevoerd in opdracht van VMM  
2016/MRG/R/0825



## MANAGEMENTSAMENVATTING

- + Om een beeld te krijgen van de impact van houtverbranding door particulieren voerde VITO in opdracht van VMM een studie uit in een woonwijk in Dessel. Daarbij werden zowel metingen in omgevingslucht als in enkele schouwen uitgevoerd. Vooraf werden de inwoners ook bevroegd naar hun stookgedrag.
- + Twee verschillende methoden om houtverbranding in te schatten (via de tracer levoglucosan op filters en via  $BC_{WB}$  met een AE33 monitor) bleken zeer goed te correleren. Dit betekent dat de AE33 monitoren de rol van levoglucosan bepalingen op termijn kunnen vervangen.
- + De omrekeningen vanuit de twee methoden naar de totale bijdrage van houtverbranding aan fijn stof gaan momenteel nog gepaard met een vrij grote onzekerheid en moet verder onderzocht worden.
- + Afhankelijk van de gebruikte methode en omrekening varieert de totale bijdrage door houtverbranding in de onderzochte wijk tussen 4,5 en 15,0  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  en 17 en 54 %. Wanneer we voor beide methoden de meest waarschijnlijke omrekening hanteren vinden we dat 1/3<sup>e</sup> van het  $\text{PM}_{10}$  toe te schrijven is aan houtverbranding.
- + De uitgevoerde emissiemetingen tonen aan dat er een vrij grote range zit op emissies bij particulieren. De gevonden waarden zijn wel vergelijkbaar met de in de literatuur beschreven emissiefactoren.
- + Over het relatief aandeel van lokale, regionale en buitenlandse bijdrage aan fijn stof door houtverbranding kunnen er momenteel weinig uitspraken gedaan worden en is er nog verder onderzoek nodig.

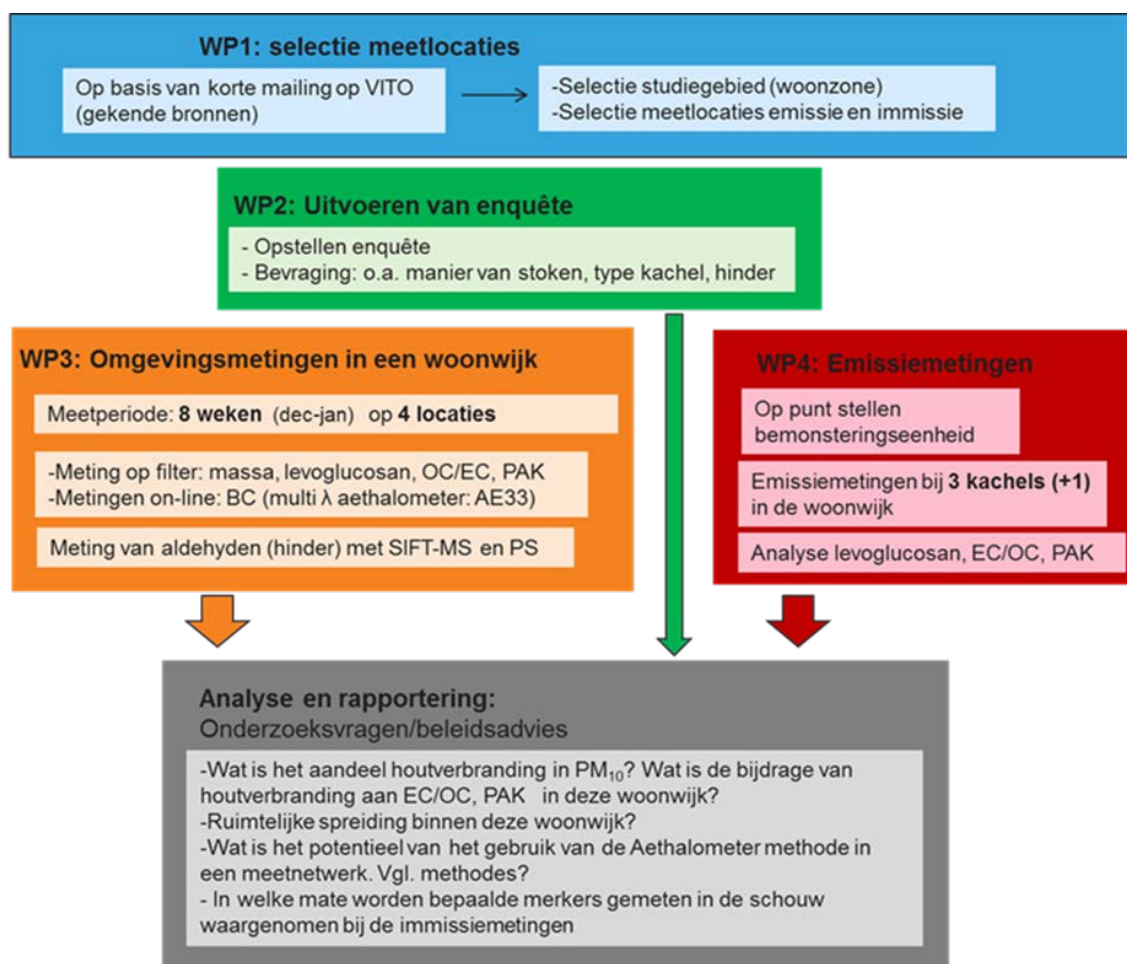
## SAMENVATTING

Deze studie werd uitgevoerd om een beter beeld te krijgen van het effect van houtverbranding door particulieren op de luchtkwaliteit in Vlaanderen. In een woonwijk werden zowel immissiemetingen uitgevoerd voor relevante parameters, als emissiemetingen om de bronnen te karakteriseren en een enquête om gebruik van houtverbranding en gerelateerde hinder na te gaan.

Deze studieopdracht omvatte:

1. Het opstellen van plan van aanpak en selectie meetlocaties.
2. Het uitvoeren van een enquête bij de burgers in de woonwijk over houtverbruik en hinder door houtstook.
3. Het uitvoeren van luchtkwaliteitsmetingen in een woonwijk met gekende bronnen van houtverbranding, waarbij verschillende luchtkwaliteitsparameters in kaart gebracht worden volgens state-of-the-art meettechnieken.
4. Het uitvoeren van emissiemetingen aan schouwen van houtkachels

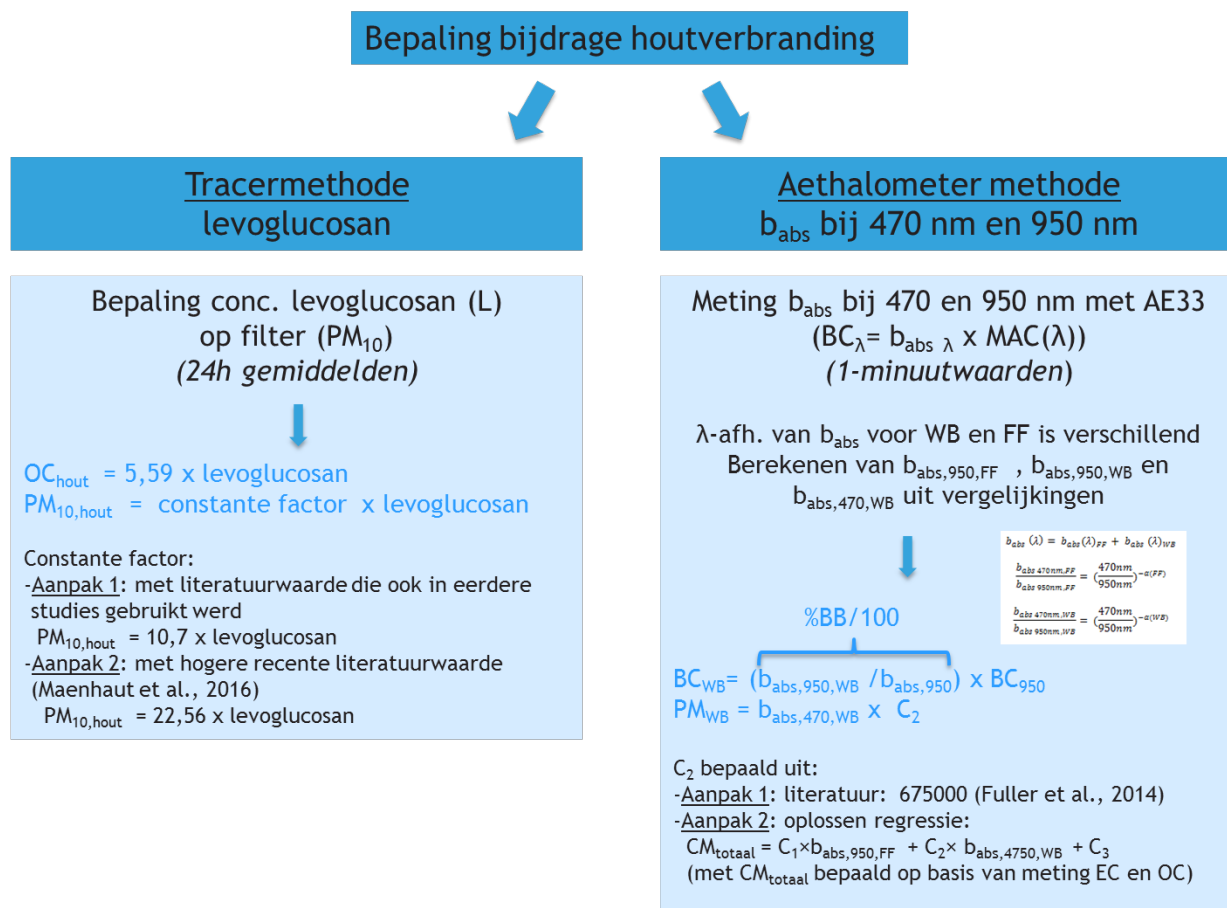
Onderstaande figuur geeft schematisch de verschillende deelpakketten van de studie weer.



→ **Meetopzet en studiegebied**

Het geselecteerde studiegebied bevond zich in Dessel. Ten W van de gewestweg N18 en ten N van het kanaal Bocholt-Herentals en ten ZO van het centrum van Dessel.

De bijdrage van houtverbranding werd bepaald op basis van twee verschillende methoden: de tracermethode met levoglucosan en de Aethalometer-methode op basis van de AE33 (zie schema hieronder). PM<sub>10</sub> werd bemonsterd met een filterbemonsteraar (Leckel 2,3 m<sup>3</sup>/h) en de filters werden na weging geanalyseerd op levoglucosan, PAK (Polycyclische Aromatische Koolwaterstoffen), EC (Elemental Carbon) en OC(Organic Carbon). BC (Black Carbon) werd gemeten met een multi-wavelength Aethalometer (AE33) en op basis van verschillende golflengten werd de bijdrage aan houtverbranding bepaald. Omgevingsmetingen werden uitgevoerd op drie locaties in het woongebied (A, B, C) en een achtergrondlocatie (op het VITO-domein, locatie E). De 'lokale bijdrage' op locaties A, B en C in het studiegebied werden berekend uit het verschil van de concentratie gemeten op de respectievelijke locaties (A, B en C) en de achtergrondlocatie E. op het ogenblik van de meetcampagne was er een omleidingsweg langs locatie B, waardoor deze meer door verkeer beïnvloed werd.



In het studiegebied werden emissiemetingen op drie verschillende houtverwarmingsinstallaties uitgevoerd: 2 cassettes en 1 kachel (locaties 1, 2 en 3). Bij één van de houtverwarmingsinstallaties werd een herhaalde meting uitgevoerd met een andere houtmix (locatie 1\_b). De gebruikte houtsoorten waren respectievelijk den (1), den en beuk (1\_b), eik (2) en den (3).

---

### → Resultaten enquête

De respons van de buurt-enquête was vrij hoog met 67% (52 van de 77). Uit de antwoorden bleek dat 44% (22) hout als brandstof gebruikt - meestal in de vorm van blokken hout - en de meest gebruikte verwarmingsbronnen zijn een cassette (57%) en een kachel (30%).

De meeste respondenten antwoordden dat ze de geur van houtverbranding in de buurt waarnemen; respectievelijk 29% en 31% antwoordde dat ze 'zelden' of 'regelmatig' geur van houtverbranding waarnemen. De meeste mensen vinden de geur niet storend.

### → Resultaten omgevingsmetingen

Tijdens de meetcampagne lagen de concentraties PM<sub>10</sub> vrij laag (gemiddelden tussen 15,7 en 18,7 µg/m<sup>3</sup>). Vijftien filters op elk van de locaties werden geselecteerd voor analyse van PAK, houtverbrandingstracers levoglucosan(L), mannosan (M), galactosan(G), elementair koolstof (EC) en organisch koolstof (OC).

De gemiddelde PM<sub>10</sub>-concentraties voor deze geselecteerde filters lagen hoger (tussen 23,8 en 26,3 µg/m<sup>3</sup>) en was meer in overeenstemming met de gemiddelde PM<sub>10</sub>-concentratie over alle Vlaamse meetstations over alle wintermaanden voor de periode 2011 – 2015 (28,2 µg/m<sup>3</sup>).

De gemiddelde concentratie van levoglucosan bedroeg 353 ng/m<sup>3</sup> op de achtergrondlocatie en lag tussen 403 - 435 ng/m<sup>3</sup> in het studiegebied. De waarden zijn vrij hoog in vergelijking met andere Europese studies en iets hoger dan de meeste eerder gemeten waarden in Vlaanderen. De concentraties in Dessel zijn van dezelfde grootteorde als gemeten tijdens een wintercampagne (PAK-studie van LNE, Koppen et al, 2016) in Menen en Genk. Op 19/1/16 werd in Dessel 695 – 808 ng/m<sup>3</sup> gemeten en 620 – 938 ng/m<sup>3</sup> in Genk. Op 21/1/16 werd in Dessel tussen 752 - 897 ng/m<sup>3</sup> gemeten en respectievelijk 285 – 444 ng/m<sup>3</sup> ; 500 - 746 ng/m<sup>3</sup> en 783 ng/m<sup>3</sup> in Genk, Menen en Houtem.

Op basis van de L/G verhouding werd het aandeel zacht hout geschat op gemiddeld 84 – 88%. Dit is hoger dan eerdere waarden gemeten in Vlaanderen. Deze waarde ligt hoog, hoewel uit de enquête naar voor kwam dat zowel hard als zacht hout gebruikt werden in het studiegebied. De hoge schatting kan te wijten zijn aan onzekerheden op de berekeningen of de analyse.

De gemiddelde EC en OC-concentraties lagen tussen 0,72 en 1,43 µg/m<sup>3</sup> voor EC, en 4,98 en 6,28 µg/m<sup>3</sup> voor OC. De EC-concentratie lag op de locaties in het studiegebied gemiddeld 64 tot 100% hoger in vergelijking met de achtergrondlocatie. De relatief grote verschillen bij de EC-concentratie zijn vooral te wijten aan de lokale verkeersbijdrage. De OC-concentratie lag gemiddeld 14 tot 26% hoger op de locaties in het studiegebied in vergelijking met de achtergrondlocatie. De lokale bijdrage (concentratie in het studiegebied verminderd met de achtergrondlocatie) voor OC ligt tussen 0,68 ± 0,55 en 1,29 ± 0,80 µg/m<sup>3</sup> en voor EC bedraagt deze tussen 0,46 ± 0,61 en 0,72 ± 0,86 µg/m<sup>3</sup>.<sup>1</sup>

De gemiddelde B(a)P-concentratie lag tussen 0,62 en 0,79 ng/m<sup>3</sup>. De B(a)P-concentraties in het studiegebied lagen gemiddeld 0,03 ± 0,18 ; 0,16 ± 0,25; 0,09 ± 0,12 ng/m<sup>3</sup> hoger op locaties A, B en C in vergelijking met de achtergrondlocatie. De som van de PAK volgt dezelfde trend als B(a)P. De

---

<sup>1</sup> ± SD (standaard deviation) is berekend voor 1σ (68% betrouwbaarheidsinterval)

meest voorkomende PAK op alle locaties zijn chryseen, benzo(b)fluorantheen, benzo(ghi)peryleen en vervolgens ook benzo(a)pyreen en indeno(1,2,3-cd)pyreen.

Correlaties tussen enerzijds indicatoren voor houtverbranding ( $BC_{WB}$  en levoglucosan) en anderzijds de som van de PAK en de individuele PAK werden onderzocht. Ook werd de correlatie van  $BC_{FF}$  met de PAK onderzocht om na te gaan of er een betere correlatie is van bepaalde PAK met fossiele brandstoffen (verkeer en ander fossiele bronnen). Voor alle locaties samen vonden we een goede tot redelijke correlatie tussen houtverbrandingsindicatoren, BC afkomstig van fossiele brandstoffen en PAK. Verder stelden we vast dat de som van de PAK beter gecorreleerd is met houtverbrandings-parameters dan met parameters voor fossiele brandstoffen. Wanneer we naar de afzonderlijke PAK kijken, zien we een iets minder goede correlatie van houtverbrandingsparameters (levoglucosan en  $BC_{WB}$ ) met fluorantheen en pyreen ( $R^2 = 0,69 - 0,75$ ) in vergelijking met de andere PAK ( $R^2 = 0,86 - 0,93$ ). De correlaties met levoglucosan lagen hoger in vergelijking met  $BC_{WB}$ , vermoedelijk omdat PAK en levoglucosan op dezelfde filter gemeten zijn, maar de verschillen zijn niet groot. De correlaties voor de afzonderlijke locaties waren vrij vergelijkbaar. De correlaties van fluorantheen en pyreen met  $BC_{FF}$  lagen hoger op locatie B. Dit wijst er op dat deze locatie het meest beïnvloed is door verkeer.

Voor alle polluenten werd een verhoging ten opzichte van de achtergrond gemeten in het studiegebied en kleine verschillen werden waargenomen binnenin het studiegebied. De mate van verhoging ten opzichte van de achtergrond varieerde per polluent. Er is een toename vastgesteld van 12-17% voor  $PM_{10}$ , 12-21% en 9-23% voor respectievelijk levoglucosan en  $BC_{WB}$ , 32 - 75% voor  $BC_{FF}$  en 6 - 26% voor de PAK. De waargenomen trend in enerzijds verschil in PAK tussen de locaties en anderzijds het verschil in  $BC_{FF}$  en  $BC_{WB}$  tussen de locaties wijst erop dat zowel verkeer als houtverbranding lokaal bijdragen tot de PAK-concentraties.

De metingen laten niet toe om in te schatten wat de aandelen zijn van lokale, regionale en buitenlandse emissies aan fijn stof afkomstig van houtverbranding. Hiervoor zou bijkomende en uitgebreider onderzoek nodig zijn.

In deze studie werden twee methoden om het aandeel van houtverbranding te bepalen vergeleken: de tracermethode op basis van levoglucosan en de Aethalometermethode.

Via de in het verleden reeds gebruikte tracermethode werd het gemiddelde aandeel houtverbranding aan  $PM_{10}$  bepaald op 3,85 tot 4,66  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  (of 16,1 tot 16,9%). Van de lokale bijdrage  $PM_{10}$  (op basis van verschil met de achtergrondlocatie) kan 20% toegeschreven worden aan houtverbranding.

Ook via de Aethalometermethode werd het aandeel houtverbranding (aan BC en PM) berekend. Uitgemiddeld over de ganse meetperiode lag het aandeel houtverbranding aan BC tussen  $24,6 \pm 4,4 \%$  en  $28,5 \pm 6,0 \%$  en bedroeg de gemiddelde absolute waarde voor  $BC_{WB}$  tussen  $0,34 \pm 0,06 \mu\text{g}/\text{m}^3$  en  $0,53 \pm 0,06 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Voor de periode waarop de filters geselecteerd zijn is het gemiddelde percentage vergelijkbaar (tussen  $24,5 \pm 5,3 \%$  en  $29,3 \pm 6,5 \%$ ) maar ligt de gemiddelde absolute waarde voor  $BC_{WB}$  hoger, met name tussen  $0,70 \pm 0,55 \%$  en  $0,86 \pm 0,56 \mu\text{g}/\text{m}^3$ .

Voor de berekening van het aandeel houtverbranding aan PM via de Aethalometermethode werd eerst een factor toegepast uit de literatuur ( $C_2 = 675000 \mu\text{g m}^{-2}$ ) om de gemeten absorptie voor houtverbranding om te zetten in stofmassa afkomstig van houtverbranding.

Berekend met deze factor bedroeg de relatieve bijdrage tussen  $42,2 \pm 17,4 \%$  en  $47,8 \pm 28,2 \%$  en de gemiddelde absolute waarde voor  $PM_{WB}$  tussen  $7,2 \pm 7,3 \mu\text{g}/\text{m}^3$  en  $9,3 \pm 7,6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Op basis van deze factor vonden we voor de periode waarop de filters geselecteerd zijn een veel hogere

absolute bijdrage aan PM van houtverbranding ( $PM_{WB}$ ) tussen  $14,0 \pm 11,1 \mu\text{g}/\text{m}^3$  en  $15,7 \pm 10,0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . De relatieve bijdrage voor de geselecteerde periode was slechts iets hoger (tussen  $53,2 \pm 13,7 \%$  en  $55,3 \pm 15,5 \%$ ).

De gebruikte factor is gebaseerd op literatuurwaarden uit buitenlandse studies en het is niet zeker of we deze voor Vlaanderen kunnen toepassen.

De bepaling van houtverbranding op basis van de Aethalometermethode (voor eenzelfde periode) vertoont een goede correlatie met de tracermethode ( $R^2 = 0,90$ ). Uit de metingen is gebleken dat we de levoglucosan concentratie kunnen inschatten op basis van volgende formule:

$$\text{levoglucosan} = 0,5 \times BC_{WB}$$

Ondanks de zeer goede correlatie leiden beide methoden momenteel wel tot een verschillende inschatting van de totale bijdrage van houtverbranding aan  $PM_{10}$ . Bij het gebruik van de standaard omrekeningsfactor voor beide methoden liggen de resultaten van de Aethalometermethode 3,47 keer hoger dan bij de levoglucosamethode. Dit is deels te wijten aan een vermoedelijke onderschatting door de tracermethode. Secundair organisch aerosol dat gevormd wordt na de emissie zal er voor zorgen dat de werkelijke factor hoger is dan de aangewende factor 10,7. Wanneer een recentere conversiefactor (22,56) voor de tracermethode wordt gebruikt uit een recente publicatie van Maenhaut et al. (2016) liggen de waarden van de Aethalometermethode een factor 1,65 hoger. Mogelijk is de recente factor wel aan de hoge kant omwille van secundaire aerosolvorming - waarbij componenten in gasfase worden uitgestoten en later in deeltjesfase terechtkomen - of eventuele afbraak van levoglucosan wanneer de bron verderaf gelegen is. Het lijkt ook waarschijnlijk dat de Aethalometermethode een overschatting geeft door de gebruikte factor.

In een extra stap werd daarom de factor ( $C_2$ ) die gebruikt werd bij de Aethalometermethode afgeleid uit de EC en OC metingen die simultaan werden uitgevoerd in deze studie. Deze inschatting gaat ook gepaard met onzekerheden want bij de berekening van de factor zijn ook een aantal aannames nodig (onder andere factor  $f_{OC-OM}$  voor omrekening van gemeten OC naar OM (Organic Matter)) en de beschikbare dataset van EC en OC-metingen in deze studie is beperkt (15 analyses per locatie). Bovendien heeft ook het al dan niet aftrekken van blancowaarden voor OC een effect. De factor werd berekend voor  $f_{OC-OM} = 1, 4$  en  $1,8$  en voor deze laatste ook met aftrek van blancowaarden voor OC. De factor 1,4 werd in het verleden gebruikt in Chemkar-studies maar is aan de lage kant daarom zal de berekening met factor 1,8 een realistischere waarde geven.

De resulterende factor  $C_2$  was functie van de aannames maar voor elk van de aannames lager (tussen 152980 – 388220) dan deze uit de literatuur (675000). Wanneer we de factoren gebruiken vinden we een veel lagere inschatting van het aandeel houtverbranding; Voor de berekening met  $f_{OC-OM} = 1,8$  en blanco-correctie ( $C_2 = 388220$ ) ligt de berekende bijdrage houtverbranding ruim 40% lager dan wanneer we de literatuurwaarde gebruiken. Bovenstaande geeft aan dat in beide methoden voor de bepaling van de bijdrage van houtverbranding tot de  $PM$  onzekerheden zijn over de gebruikte factor. Het is daarom aan te bevelen om deze methoden verder te onderzoeken. Het voordeel van de Aethalometermethode is de hoge tijdsresolutie waardoor het mogelijk is om zeer lokale bronnen te identificeren.

Deze tabel toont de gemiddelde schatting van de bijdrage van houtverbranding aan  $PM_{10}$  op basis van de 4 mogelijke berekeningswijzen:



| <i>methode</i><br><i>PM<sub>WB</sub></i><br><i>(μg/m<sup>3</sup>)</i> | <i>Locatie A</i><br><i>gem (min – max)</i><br><i>% PM<sub>WB</sub> in PM<sub>10</sub></i> | <i>Locatie B</i><br><i>gem (min – max)</i><br><i>% PM<sub>WB</sub> in PM<sub>10</sub></i> | <i>Locatie C</i><br><i>gem (min – max)</i><br><i>% PM<sub>WB</sub> in PM<sub>10</sub></i> | <i>Locatie E</i><br><i>gem (min – max)</i><br><i>% PM<sub>WB</sub> in PM<sub>10</sub></i> |
|---|---|---|---|---|
| Aethalometermethode<br>C <sub>2</sub> literatuur (675000)             | 14,4 (5,6 – 33,4)<br>53,2 ± 13,7%   | 15,0 (5,2 – 34,1)<br>54,6 ± 14,9%   | 15,7 (5,4 – 35,9)<br>55,3 ± 15,5%   | 14,0 (2,5 – 41,5)<br>54,6 ± 19,1%   |
| Aethalometer methodePM <sub>WB</sub><br>C <sub>2</sub> = 388220*      | 8,30 (3,22 – 19,22)<br>30,6 ± 7,9%  | 8,63 (3,01 – 19,59)<br>31,4 ± 8,6%  | 9,04 (3,10 – 20,66)<br>31,8 ± 8,9%  | 8,04 (1,44 – 23,87)<br>31,4 ± 11,0%   |
| Levoglucosan<br>(factor 10,7)   | 4,31 (1,53 – 9,10)<br>16,4 ± 5,1%   | 4,63 (1,97 – 8,65)<br>17,3 ± 5,2%   | 4,66 (2,02 – 8,61)<br>17,5 ± 5,8%   | 3,85 (0,75 – 9,60)<br>15,7 ± 5,7%   |
| Levoglucosan<br>(factor 22,56)  | 9,10 (3,22 – 19,18)<br>34,6 ± 10,8%   | 9,75 (4,15 – 18,24)<br>36,4 ± 11,0%   | 9,82 (4,27 – 18,15)<br>36,8 ± 12,3%   | 8,11 (1,58 – 20,24)<br>33,1 ± 11,9%   |

\* berekend met aannames  $f_{OC-OM} = 1,8$  en blanco-correctie voor OC

Op basis van bovenstaande kunnen we stellen dat wanneer we voor beide methoden (Aethalometermethode en tracermethode) de meest waarschijnlijke omrekening hanteren, 1/3<sup>e</sup> van het PM<sub>10</sub> toe te schrijven is aan houtverbranding.

#### → Resultaten Emissiemetingen

Emissiemetingen werden uitgevoerd op drie verschillende kachels waarbij een kachel herhaald werd met een andere mix van hout. Resultaten van de metingen worden uitgedrukt in concentraties omdat het exacte verbruik tijdens de bemonstering niet gekend is. Het houtverbruik werd opgevolgd en op basis daarvan werd ingeschat dat dit in alle testen ongeveer 3 kg/h bedroeg. Dit verbruik komt overeen met waarden uit de literatuur. De condities tijdens bemonstering (debiet, verdunning) waren vrij vergelijkbaar en de temperatuur in de verdunningstunnel was voldoende laag (12,7 – 18,2 °C) om eventuele verliezen bij bemonstering te vermijden. De CO/CO<sub>2</sub>-verhouding was vrij vergelijkbaar maar lag iets lager bij locatie 2 (0,054) in vergelijking met de andere drie metingen (0,071 – 0,86). Ook bij de opstart die werd gemeten voor meting 1\_b lag de CO/CO<sub>2</sub>-verhouding lager (0,049).

De resultaten van de emissiemetingen toonden een groot verschil in emissies tussen de verschillende metingen welke te wijten kunnen zijn aan houtverwarmingsinstallatie, houtsoort, stookgedrag. Voor een van de locaties werd voor alle pollutanten de laagste concentratie gemeten. Het verschil tussen de kachels was verschillend voor de verschillende pollutanten; de hoogste waarde lag respectievelijk een factor 3,5; 5,0 en 6,6 hoger voor PM, OC en EC. Voor levoglucosan waren de verschillen kleiner met een concentratie tussen 3916 – 7688 μg/m<sup>3</sup>. Voor de PAK waren de verschillen groter tussen de houtverwarmingsinstallaties (factor 11,6 voor B(a)P). De verschillen tussen de pollutanten geven aan dat enkel stofemissies onvoldoende informatie geven over de schadelijkheid van emissies bij stoken.

De PM/L ratio varieert tussen 10,5 en 26,9 en de OC/L varieert tussen 4,2 en 15,5. De hoge waarde voor PM/L geeft ook aan dat de bepaling van aandeel houtverbranding op basis van de veel gebruikte factor 10,7 waarschijnlijk onderschat is en een eventuele herziening van deze factor nodig is om de bijdrage van houtverbranding beter te kunnen inschatten.

**→ Conclusies**

Deze studie toont aan dat houtverbranding in een woongebied een rol speelt in lokale pollutie. De goede correlatie tussen houtverbrandingstracers en de PAK tonen aan dat houtverbranding een bron is van PAK.

De inschatting van houtverbranding op basis van de Aethalometermethode biedt potentieel omdat continue opvolging hiermee mogelijk is. Toch is er nog onzekerheid over de toe te passen conversiefactor en is er verder onderzoek nodig om de factor te bepalen. Wanneer we voor beide methoden (Aethalometermethode en tracermethode) de meest waarschijnlijke omrekening hanteren vinden we dat  $1/3^e$  van het  $PM_{10}$  toe te schrijven is aan houtverbranding.

Emissiemetingen tonen aan dat er grote verschillen zijn in emissies tussen vier metingen van houtverwarmingsinstallaties. Voor de PAK zijn de verschillen het grootst. Factoren die van belang kunnen zijn, zijn type houtverwarmingsinstallatie, hout en stookgedrag.

Over het relatief aandeel van lokale, regionale en buitenlandse bijdrage aan fijn stof door houtverbranding kunnen er momenteel weinig uitspraken gedaan worden en is er nog verder onderzoek nodig.

## INHOUD

|  |             |
|--|-------------|
| <b>Verspreidingslijst</b>  | <b>I</b>    |
| <b>Managementsamenvatting</b>  | <b>II</b>   |
| <b>Samenvatting</b>  | <b>III</b>  |
| <b>Inhoud</b>  | <b>X</b>    |
| <b>Lijst van tabellen</b>  | <b>XIII</b> |
| <b>Lijst van figuren</b>   | <b>XIV</b>  |
| <b>Lijst van afkortingen</b>   | <b>XVI</b>  |
| <b>HOOFDSTUK 2. Inleiding</b>  | <b>1</b>    |
| 2.1. <i>Situering</i>  | 1           |
| 2.2. <i>Literatuur over houtverbranding in Europa</i>  | 3           |
| <b>HOOFDSTUK 3. Projectbeschrijving omgevingsmetingen</b>                                    | <b>9</b>    |
| 3.1. <i>Inleiding</i>  | 9           |
| 3.2. <i>Studiegebied en meetlocaties omgevingsmetingen</i>                                   | 9           |
| 3.3. <i>Resultaten enquête</i>   | 12          |
| 3.4. <i>Bepalen van de lokale bijdrage</i>   | 13          |
| 3.5. <i>Bemonsteringen filters</i>   | 13          |
| 3.6. <i>Analyse filters</i>  | 13          |
| 3.6.1. <i>OC/EC</i>  | 13          |
| 3.6.2. <i>Houtverbrandingstracers</i>  | 14          |
| 3.6.3. <i>PAK</i>  | 14          |
| 3.7. <i>Metingen van BC en bepaling van aandeel houtverbranding met AE33</i>                 | 14          |
| 3.7.1. <i>BC meting met AE33</i>   | 14          |
| 3.7.2. <i>Bepaling aandeel houtverbranding op basis van Aethalometermethode</i>              | 16          |
| 3.7.3. <i>Voorafgaande vergelijking AE33</i>   | 23          |
| 3.8. <i>Bepaling van aldehyden</i>   | 27          |
| 3.8.1. <i>Bepaling van aldehyden met passieve samplers</i>                                   | 27          |
| 3.8.2. <i>Bepaling van aldehyden met SIFT-MS</i>   | 27          |
| 3.9. <i>Meting van levoglucosan en bepaling aandeel houtverbranding met de tracermethode</i> | 28          |
| 3.9.1. <i>Levoglucosan en andere tracers</i>   | 28          |
| 3.9.2. <i>Analysemethode voor levoglucosan en isomeren</i>                                   | 28          |
| 3.9.3. <i>Bepaling aandeel houtverbranding via de tracermethode (levoglucosan)</i>           | 29          |
| <b>HOOFDSTUK 4. Meetopzet emissiemetingen</b>  | <b>31</b>   |
| 4.1. <i>Meetopstelling</i>   | 31          |
| 4.2. <i>Meettechnieken</i>   | 32          |

|                     |   |           |
|---------------------|---|-----------|
| 4.2.1.              | Debiet, temperatuur en watergehalte _____   | 32        |
| 4.2.2.              | Bepaling van het zuurstofgehalte _____  | 32        |
| 4.2.3.              | Bepaling van CO en CO <sub>2</sub> _____  | 33        |
| 4.2.4.              | Bepaling van stikstofoxides _____   | 34        |
| 4.2.5.              | Bepaling van zwaveldioxides _____   | 34        |
| 4.2.6.              | Bepaling van polycyclische aromatische koolwaterstoffen in het afgas _____  | 34        |
| 4.2.7.              | Bepaling van de massaconcentraties PM <sub>10</sub> en PM <sub>2,5</sub> in een geleide gasstroom met behulp van een tweetrapsimpactor (Jonas impactor) _____ | 36        |
| 4.2.8.              | Bepaling OC/EC en levoglucosan _____  | 38        |
| 4.2.9.              | Bepaling stofmassa _____  | 39        |
| 4.3.                | <i>Meetomstandigheden</i> _____   | 40        |
| 4.3.1.              | Gemeten houtverbrandingsinstallaties _____  | 40        |
| 4.3.2.              | Gebruikt hout _____   | 42        |
| <b>HOOFDSTUK 5.</b> | <b>Resultaten omgevingsmetingen _____</b>   | <b>43</b> |
| 5.1.                | <i>Meteocondities tijdens de meetcampagne</i> _____   | 43        |
| 5.1.1.              | Windrichting _____  | 43        |
| 5.2.                | <i>Resultaten stoffilters</i> _____   | 45        |
| 5.2.1.              | Stofmassa _____   | 45        |
| 5.2.2.              | Selectie filters voor analyse _____   | 47        |
| 5.3.                | <i>EC/OC</i> _____  | 47        |
| 5.4.                | <i>Levoglucosan, mannosan en galactosan</i> _____   | 51        |
| 5.4.1.              | Concentraties houtverbrandingstracers _____   | 51        |
| 5.4.2.              | Verhouding levoglucosan/mannosan _____  | 52        |
| 5.5.                | <i>Vergelijking met andere studies (ECOC en houtracers)</i> _____   | 53        |
| 5.6.                | <i>Lokale bijdrage</i> _____  | 55        |
| 5.7.                | <i>Resultaten PAK</i> _____   | 57        |
| 5.7.1.              | Som PAK en B(a)Pyreen _____   | 57        |
| 5.7.2.              | Soorten PAK _____   | 60        |
| 5.8.                | <i>Resultaten AE33: BC-concentraties en aandeel houtverbranding in BC</i> _____   | 61        |
| 5.9.                | <i>Aandeel houtverbranding in PM op basis van de AE33</i> _____   | 65        |
| 5.9.1.              | Gebruik van literatuurwaarden _____   | 65        |
| 5.9.2.              | Aan de hand van regressie met resultaten van EC/OC-metingen _____   | 65        |
| 5.10.               | <i>Aandeel houtverbranding in PM<sub>10</sub> op basis van de tracermethode met levoglucosan</i> _____  | 69        |
| 5.11.               | <i>Vergelijking van AE33 en de tracermethode</i> _____  | 69        |
| 5.12.               | <i>Gebruik van de AE33 voor het opvolgen van de tijdstrend van de bijdrage van houtverbranding</i> _____  | 72        |
| 5.12.1.             | Tijdstrends totale concentraties op alle locaties _____   | 72        |
| 5.12.2.             | Tijdstrends van de lokale bijdrage op locaties A, B en C _____  | 76        |
| 5.13.               | <i>BC concentraties en bijdrage houtverbranding in functie van de windrichting.</i> _____   | 78        |
| 5.14.               | <i>Correlaties tussen verschillende parameters</i> _____  | 81        |
| 5.14.1.             | BC bij verschillende golflengten gemeten: 880 nm versus 950 nm _____  | 81        |
| 5.14.2.             | Houtverbrandingstracers en BC, PM <sub>10</sub> _____   | 81        |
| 5.14.3.             | Verschillende parameters voor koolstofhoudend aerosol: EC/OC, TC, BC _____  | 82        |

|  |            |
|--|------------|
| 5.14.4. Correlaties tussen individuele PAK en houtverbrandingstracers en tracer voor verbranding van fossiele brandstoffen | 85         |
| 5.15. Resultaten voor de aldehyden   | 96         |
| 5.15.1. Passieve samplermetingen   | 96         |
| 5.15.2. tijdstrends met SIFT-MS  | 97         |
| <b>HOOFDSTUK 6. Resultaten emissiemetingen</b>   | <b>101</b> |
| 6.1. <i>Conditie tijdens de metingen</i>   | 101        |
| 6.2. <i>Verdunning</i>   | 101        |
| 6.3. <i>Uitdrukken van de resultaten</i>   | 102        |
| 6.3.1. Emissiefactoren in de literatuur  | 102        |
| 6.3.2. Bepaling van de hoeveelheid hout  | 103        |
| 6.4. <i>Resultaten voor het totaal stofgehalte</i>   | 103        |
| 6.5. <i>Resultaten van de grootteverdeling: fracties PM<sub>10</sub> en PM<sub>2,5</sub></i>                               | 104        |
| 6.6. <i>Resultaten Analyse stoffilters</i>   | 106        |
| 6.7. <i>Resultaten voor de PAK</i>   | 108        |
| 6.8. <i>Resultaten afgassen</i>  | 113        |
| 6.1. <i>Opstartfase</i>  | 114        |
| <b>HOOFDSTUK 7. Conclusies</b>   | <b>117</b> |
| <b>Literatuurlijst</b>   | <b>122</b> |
| <b>Bijlage A: Resultaten buurtenquête</b>  | <b>128</b> |
| 7.1. <i>Doel en Opzet van de enquête</i>   | 128        |
| 7.1.1. Doel  | 128        |
| 7.1.2. Inhoud enquête  | 128        |
| 7.1.3. Geselecteerd gebied en respons  | 128        |
| 7.2. <i>Resultaten</i>   | 129        |
| 7.2.1. Gebruik van houtverbranding   | 129        |
| 7.2.2. Mate waarin houtverbranding wordt waargenomen in het studiegebied   | 130        |
| 7.3. <i>Vragenlijst buurtenquête</i>   | 131        |
| <b>Bijlage B: Selectie filters</b>   | <b>137</b> |
| <b>Bijlage C: Temperatuursprotocol EC/OC-analyse met TOT</b>   | <b>139</b> |

## LIJST VAN TABELLEN

|  |     |
|--|-----|
| Tabel 1: Overzicht meetlocaties omgevingsmetingen  | 12  |
| Tabel 2: MAC gebruikt in de AE33 in deze studie  | 16  |
| Tabel 3: Overzicht van gebruikte $\alpha$ -waarden voor houtverbranding en fossiele brandstoffen uit de literatuur   | 17  |
| Tabel 4: Literatuurwaarden voor $C_1$ , $C_2$ en $C_3$   | 21  |
| Tabel 5: Regressieresultaten vergelijkende metingen ten opzichte van AE33_81   | 24  |
| Tabel 6: Gemiddelde waarden voor $BC_{FF}$ en $BC_{WB}$ gedurende de vergelijkende metingen (1/2/16 – 19/2/16) uitgevoerd na afloop van de meetcampagne  | 27  |
| Tabel 7: Samenvatting karakteristieken gemeten houtverbrandingsinstallaties  | 40  |
| Tabel 8: Type hout gebruikt bij emissiemetingen voor locaties 1 – 3.   | 42  |
| Tabel 9: Overzicht gemiddelde, minimum, maximum, mediaan en interkwartielrange (P25 – P75) voor $PM_{10}$ concentratie ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) voor de ganse meetperiode en voor de geselecteerde filters | 46  |
| Tabel 10: Overzicht van de gemiddelde $PM_{10}$ -concentraties ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) voor de wintermaanden over alle Vlaamse meetstations voor de periode 2011 – 2015.                                  | 47  |
| Tabel 11: Overzicht gemiddelde, minimum, maximum, mediaan en interkwartielrange (P25 – P75) voor EC/OC/TC ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) en levoglucosan/mannosan en galactosan ( $\text{ng}/\text{m}^3$ )       | 48  |
| Tabel 12: Resultaten meetcampagne PAK studie in vergelijking met de huidige studie   | 54  |
| Tabel 13: Overzicht gemiddelde, minimum, maximum, mediaan en interkwartielrange (P25 – P75) voor de som van de PAK en B(a)P  | 57  |
| Tabel 14: Overzicht van de gemiddelde (en standaarddeviatie) resultaten van de AE33 over de ganse meetcampagne op basis van 24h-gemiddelden  | 64  |
| Tabel 15: Overzicht van de gemiddelde, minimum, maximum, mediaan en interkwartielrange (P25 – P75) voor resultaten van de AE33 en aandeel houtverbranding voor de dagen waarop filters geselecteerd zijn.      | 64  |
| Tabel 16: Resultaten regressie $CM_{\text{totaal}}$ versus $b_{\text{abs},950,FF}$ en $b_{\text{abs},4750,WB}$   | 68  |
| Tabel 17: Resultaten $PM_{WB}$ aan de hand van $C_2 = 152980, 201280$ en $388220$  | 69  |
| Tabel 18: Aandeel houtverbranding ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) in OC en $PM_{10}$ berekend met de tracermethode (levoglucosan)   | 69  |
| Tabel 19: Resultaten $PM_{WB}$ berekend via tracermethode en Aethalometermethode, $PM_{10}$ massa en % $PM_{WB}$ in $PM_{10}$ , voor de vier locaties  | 71  |
| Tabel 20: Resultaten correlatie ( $R^2$ ) voor de som van de PAK, B(a)P en fluorantheen met $BC_{WB}$ , $BC_{FF}$ en levoglucosan, weergegeven voor de verschillende locaties samen en afzonderlijk.           | 85  |
| Tabel 21: Condities in de verdunningstunnel en in omgevingslucht   | 101 |
| Tabel 22: $CO_2$ gehalten, debiet en verdunningsfactor   | 102 |
| Tabel 23: Resultaten voor de stofmeting  | 104 |
| Tabel 24: Resultaten voor de grootteverdeling $PM_{10}$ en $PM_{2,5}$  | 106 |
| Tabel 25: Resultaten voor EC, OC, TC en levoglucosan(L), mannosan (M) en galactosan (G) bepaald op filter  | 106 |
| Tabel 26: L/M- en L/M+G-ratio voor de vier emissiemetingen en het soort hout dat werd gebruikt   | 108 |
| Tabel 27: Resultaten voor de PAK emissiemetingen   | 110 |
| Tabel 28: Resultaten PAK profiel   | 111 |
| Tabel 29: Resultaten voor de gassen bij de emissiemetingen   | 113 |
| Tabel 30: Resultaten voor de PAK tijdens opstartfase   | 114 |
| Tabel 31: % aandeel van type kachels in studiegebied en in de WoET-studie  | 130 |
| Tabel 32: Details van het NIOSH870 en IMPROVEA protocol gebruikt bij immissie- en emissiemetingen en ter vergelijking het EUSAAR2 protocol   | 139 |

## LIJST VAN FIGUREN

|   |    |
|---|----|
| Figuur 1: Overzicht van de verschillende deeltaken in deze studie   | 2  |
| Figuur 2: Ligging van het studiegebied in Vlaanderen  | 10 |
| Figuur 3: Ligging van studiegebied met woonzone (rood kader), achtergrondlocatie (oranje stip in oranje kader) en VMM meetstation Dessel (gele stip).   | 10 |
| Figuur 4: Ligging van de achtergrondlocatie op het VITO-domein.   | 11 |
| Figuur 5: Overzicht meetlocaties omgevingsmetingen  | 12 |
| Figuur 6: Schema dat de aanpak volgens de Aethalometer approach weergeeft, met $b_{abs}$ in functie van golflengte en onderscheid tussen aerosol van WB (woodburning) en FF (fossil fuel) (Sandradewi et al., 2008 b) | 16 |
| Figuur 7: Opstelling tijdens de vergelijkende metingen op locatie E na de meetcampagne  | 23 |
| Figuur 8: Neutral density kit gebruikt bij de verificatie van de detector (van AE33_81) voor en na de meetcampagne.   | 24 |
| Figuur 9: Tijdstrends voor gecorrigeerde BC metingen tijdens de vergelijking voor BC(950) (boven) en BC(470) (onder)  | 25 |
| Figuur 10: Tijdstrends voor gecorrigeerde metingen tijdens de vergelijking voor $BC_{WB}$ (boven) en $BC_{FF}$ (onder)  | 26 |
| Figuur 11: Schematische voorstelling van de meetopstelling  | 31 |
| Figuur 12: Schema van de opstelling voor de bepaling van anorganische afgassen  | 33 |
| Figuur 13: Opstelling bemonsteringstrein voor PAK (links) en filter voor stofmassa, levoglucosan en OC/EC (rechts)  | 35 |
| Figuur 14: Schematische voorstelling van de bemonsteringstrein voor PAK   | 36 |
| Figuur 15: Schematische voorstelling van een tweetraps impactor, met PM10 en PM2,5 impactortrappen en de back-up filter   | 37 |
| Figuur 16: Schematische voorstelling van een bemonsteringstrein voor bepaling van stoffracties  | 38 |
| Figuur 17: Houtverwarmingsinstallaties op locatie 1 (boven), 2 (midden) en 3 (onder)  | 41 |
| Figuur 18: Percentielplots in functie van de windrichting voor de meetperiode 4/12/15 – 31/1/1643   |    |
| Figuur 19: Windrichting (°) en windsnelheid (m/s) tijdens de meetperiode en dagen waarop filters geselecteerd zijn voor analyse (rode kruisjes)   | 44 |
| Figuur 20: Temperatuur (°C) tijdens de meetperiode en dagen waarop filters geselecteerd zijn voor analyse (rode kruisjes)   | 44 |
| Figuur 21: Neerslag (mm) tijdens de meetperiode en dagen waarop filters geselecteerd zijn voor analyse (rode kruisjes)  | 45 |
| Figuur 22: Boxplots $PM_{10}$ concentraties voor geselecteerde dagen voor filter-analyse (boven) en voor de ganse meetperiode (onder)   | 46 |
| Figuur 23: Boxplots voor EC, OC, EC/TC en TC/ $PM_{10}$   | 49 |
| Figuur 24: Daggemiddelde concentraties EC (onder) en OC(boven) op de 4 locaties   | 50 |
| Figuur 25: Verhouding EC/TC op de vier locaties   | 51 |
| Figuur 26: Boxplots voor levoglucosan ( $ng/m^3$ ) en levoglucosan/OC   | 52 |
| Figuur 27: Daggemiddelde concentraties voor Levoglucosan gemeten op de 4 locaties   | 52 |
| Figuur 28: Lokale bijdrage voor OC, EC levoglucosan en L/M  | 56 |
| Figuur 29: Boxplots voor lokale bijdrage van OC, EC en levoglucosan   | 56 |
| Figuur 30: Daggemiddelde concentraties voor B(a)P gemeten op de 4 locaties(boven) en lokale bijdrage in het studiegebied (onder)  | 58 |
| Figuur 31: Daggemiddelde concentraties voor de som van de PAK gemeten op de 4 locaties(boven) en lokale bijdrage in het studiegebied (onder)  | 59 |
| Figuur 32: Samenstelling PAK op de vier locaties  | 60 |
| Figuur 33: Gemiddelde concentraties voor verschillende PAK gemeten op de 4 locaties (boven) en % verschil ten opzichte van achtergrondlocatie (onder)   | 61 |

|  |     |
|--|-----|
| Figuur 34: Hoeveelheid $CM_{\text{totaal}}$ bepaald uit EC en OC _____   | 66  |
| Figuur 35: Correlatie PM afkomstig van houtverbranding berekend via de Aethalometermethode en de tracermethode _____   | 71  |
| Figuur 36: Voorbeeld van verhoogde concentratie op een van de locaties wanneer houtverbrandingsgeur werd waargenomen op deze locatie _____   | 72  |
| Figuur 37: Tijdsprofiel BC_FF en BC_BB op locatie A (boven) en B (onder) _____   | 74  |
| Figuur 38: Tijdsprofiel BC_FF en BC_BB op locatie C (boven) en E (onder) _____   | 75  |
| Figuur 39: Weekgemiddeld dagprofiel voor alpha, %BB, $BC_{WB}$ en $BC_{FF}$ _____  | 76  |
| Figuur 40: Weekgemiddeld dagprofiel voor de lokale bijdrage van $BC_{WB}$ en $BC_{FF}$ op locaties A, B en C en weekgemiddeld dagprofiel van $BC_{WB}$ en $BC_{FF}$ op locatie E _____ | 77  |
| Figuur 41: Percentielplots van de BC-concentratie in functie van de windrichting op locaties A, B, C en E (achtergrond) _____  | 79  |
| Figuur 42: Percentielplots van $BC_{FF}$ (boven) en $BC_{WB}$ (onder) in functie van de windrichting op locaties A, B, C en E (achtergrond) _____                                      | 80  |
| Figuur 43: Black Carbon gemeten bij verschillende golflengten in IR (880 nm versus 950 nm) _____   | 81  |
| Figuur 44: Correlatie tussen levoglucosan en $BC_{WB}$ berekend met de Aethalometer _____  | 82  |
| Figuur 45: Correlatie BC versus EC _____   | 83  |
| Figuur 46: Correlatie $BC_{FF}$ versus EC voor de vier locaties _____  | 84  |
| Figuur 47: BC/EC-verhouding voor locaties A,B,C en E en concentraties van EC, $BC_{FF}$ en $BC_{WB}$ gemeten op locatie B _____  | 84  |
| Figuur 48: Correlatieplots van $BC_{WB}$ , $BC_{FF}$ en levoglucosan met de individuele PAK en de som van de PAK _____   | 87  |
| Figuur 49: Correlatieplots van $BC_{WB}$ , $BC_{FF}$ en levoglucosan met de individuele PAK en de som van de PAK voor locatie A _____  | 88  |
| Figuur 50: Correlatieplots van $BC_{WB}$ , $BC_{FF}$ en levoglucosan met de individuele PAK en de som van de PAK voor locatie B _____  | 89  |
| Figuur 51: Correlatieplots van $BC_{WB}$ , $BC_{FF}$ en levoglucosan met de individuele PAK en de som van de PAK voor locatie C _____  | 90  |
| Figuur 52: Correlatieplots van $BC_{WB}$ , $BC_{FF}$ en levoglucosan met de individuele PAK en de som van de PAK voor locatie E _____  | 91  |
| Figuur 53: Correlatieplots van de lokale bijdrage $BC_{WB}$ , $BC_{FF}$ en levoglucosan met de lokale bijdrage voor de individuele PAK en de som van de PAK _____                      | 92  |
| Figuur 54: Correlatieplots van de lokale bijdrage $BC_{WB}$ , $BC_{FF}$ en levoglucosan met de lokale bijdrage voor de individuele PAK en de som van de PAK, voor locatie A _____      | 93  |
| Figuur 55: Correlatieplots van de lokale bijdrage $BC_{WB}$ , $BC_{FF}$ en levoglucosan met de lokale bijdrage voor de individuele PAK en de som van de PAK, voor locatie B _____      | 94  |
| Figuur 56: Correlatieplots van de lokale bijdrage $BC_{WB}$ , $BC_{FF}$ en levoglucosan met de lokale bijdrage voor de individuele PAK en de som van de PAK, voor locatie C _____      | 95  |
| Figuur 57: Resultaten voor formaldehyde _____  | 96  |
| Figuur 58: Concentratie van de aldehyden op de vier locaties _____   | 97  |
| Figuur 59: Tijdstrends van de aldehyden (acroleïne en formaldehyde) en $BC_{WB}$ en $BW_{FF}$ over de ganse meetperiode _____  | 99  |
| Figuur 60: Tijdstrends van de aldehyden (acroleïne en formaldehyde) en $BC_{WB}$ en $BW_{FF}$ voor weken 1 tot en met 4. _____   | 100 |
| Figuur 61: Som van de PAK concentraties in de deeltjesfase en gasfase _____  | 109 |
| Figuur 62: Relatieve bijdrage van de verschillende PAK in de deeltjesfase _____  | 112 |
| Figuur 63: Relatieve bijdrage van de verschillende PAK in de deeltjesfase tijdens de opstart _____   | 115 |
| Figuur 64: Concentratie van $O_2$ en $CO_2$ tijdens de opstartfase - locatie 1_b _____   | 116 |
| Figuur 65: Concentratie van $CO$ , $SO_2$ , $NO_2$ en $NO$ tijdens de opstartfase - locatie 1_b _____  | 116 |
| Figuur 66: Studiegebied waar de enquête werd uitgevoerd _____  | 129 |



## LIJST VAN AFKORTINGEN

|   |  |
|---|--|
| ACTRIS  | Aerosol Clouds Trace gases and Research Infra Structure Network  |
| AMS   | Aerosol Mass Spectrometer  |
| ASE   | Accelerated Sovent Extraction  |
| B(a)P   | Benzo(a)pyreen   |
| BB  | Biomass Burning  |
| BC  | Black Carbon   |
| BCUV  | Black Carbon Ultra Violet (BC measured in UV wavelength)   |
| BC <sub>FF</sub><br>(= BC <sub>950,FF</sub> ) | Bijdrage BC afkomstig van fossiele brandstoffen (o.a. verkeer) zoals berekend met de Aethalometermethode (op basis van 470 en 950 nm kanaal van AE33, tenzij anders vermeld) |
| BC <sub>WB</sub><br>(= BC <sub>950,WB</sub> ) | Bijdrage BC afkomstig van houtverbranding zoals berekend met de Aethalometermethode (op basis van 470 en 950 nm kanaal van AE33, tenzij anders vermeld)                      |
| BrC   | Brown Carbon   |
| boxplot                                       | samenvattende statistiek van dataset met mediaan, 25-75% (box) en min-max (whiskers)   |
| Chemkar<br>(I, II, III, IV, V)                | Chemische karakterisering van fijn stofdeeltjes; Studies uitgevoerd door VMM   |
| EC  | Elemental Carbon   |
| FF  | Fossil Fuel  |
| G   | galactosan   |
| GC-MS   | Gas Chromatography - Mass Spectrometry   |
| IR  | Interkwartiel range: tussen P25 en P75   |
| IR  | Infrarood  |
| L   | levoglucosan   |
| LC-UV   | Liquid chromatography - Ultraviolet  |
| L/M   | levoglucosan/mannosan  |
| (L)LOQ  | (Lower) Limit of Quantification  |
| LOD   | Limit of Detection   |
| M   | mannosan   |
| MAC   | Mass absorption coefficient  |
| MS  | Massaspectrometry  |
| NC  | Normal Conditions  |
| ND  | Neutral Density  |
| NDUV  | Niet Dispersief Ultra Violet   |
| Nm <sup>3</sup> dr                            | normaal kubieke meter, gasvolume bij 0 °C en 101,3 kPa, in droge omstandigheden  |
| OC  | Organic Carbon   |
| OM  | Organic Matter of organische massa   |
| PAKs  | Polycyclische aromatische koolwaterstoffen   |
| PM  | Particulate Matter   |
| PM10  | Particulate Matter met aerodynamische diameter < 10 µm   |
| PMF   | Positive Matrix Factorisation  |
| PS  | Passieve Sampler   |
| RC  | Richtingscoëfficiënt   |
| RV  | Relatieve Vochtigheid  |
| SC  | Smouldering Conditions   |
| SIFT-MS                                       | Selected Ion Flow Tube - Mass Spectrometry   |

---

|                    |   |
|--------------------|---|
| sigma ( $\sigma$ ) | mass attenuation cross section = MAC * multiple scattering factor |
| sigma ( $\sigma$ ) | standard deviatie van een populatie                               |
| TC                 | Total Carbon  |
| TOT                | Thermal-Optical Transmittance                                     |
| TVOS               | Totale Vluchtige Organische Stoffen                               |
| UV                 | Ultraviolet   |
| VOS                | Vluchtige Organische Stoffen                                      |
| WB                 | Wood Burning  |
| WoET               | Wood Emission Tool  |
| WR                 | Windrichting  |
| WS                 | Windsnelheid  |



## HOOFDSTUK 2. INLEIDING

---

### 2.1. SITUERING

Houtverbranding is populair als primaire of secundaire verwarmingsbron voor huishoudens. Het staat vast dat bij houtverbranding pollutanten vrijkomen die gezondheidseffecten induceren,  $PM_{2,5}$ , CO, NOx en een aantal gekende carcinogene stoffen zoals benzeen en PAK. Bovendien kan houtstook leiden tot hinder in een woongebied. Hinder kan gaan van geurhinder, prikkelende ogen tot gezondheidsklachten zoals moeilijke ademhaling (Studiedag houtstook, 2014). Ook internationale studies geven aan dat houtrook schadelijk kan zijn (o.a. Bølling et al., 2009). In hun review paper stellen Bølling et al. (2009) dat er op basis van epidemiologische en experimentele studies een toename in bewijs is voor associaties tussen blootstelling aan houtrook en verschillende gezondheidseffecten zoals vermindering van longfunctie, verminderde weerstand voor infecties, en toename in aantal en ernst van acute astma. Bovendien hebben inhalatiestudies aangetoond dat blootstelling aan houtverbranding ook systemische effecten kan veroorzaken die mogelijk een link hebben naar cardiovasculaire effecten. In vitro-studies suggereren dat deeltjes van onvolledige verbranding toxischer zijn dan deeltjes gegenereerd onder meer volledige verbrandingscondities. Ze besluiten dat er ook meer kennis nodig is over fysicochemische eigenschappen en de invloed ervan op biologische effecten om beleid rond houtverbranding vorm te geven. Hiervoor is samenwerking nodig over verschillende disciplines (aerosolwetenschappen, verbrandingswetenschappen en epidemiologie en toxicologie)

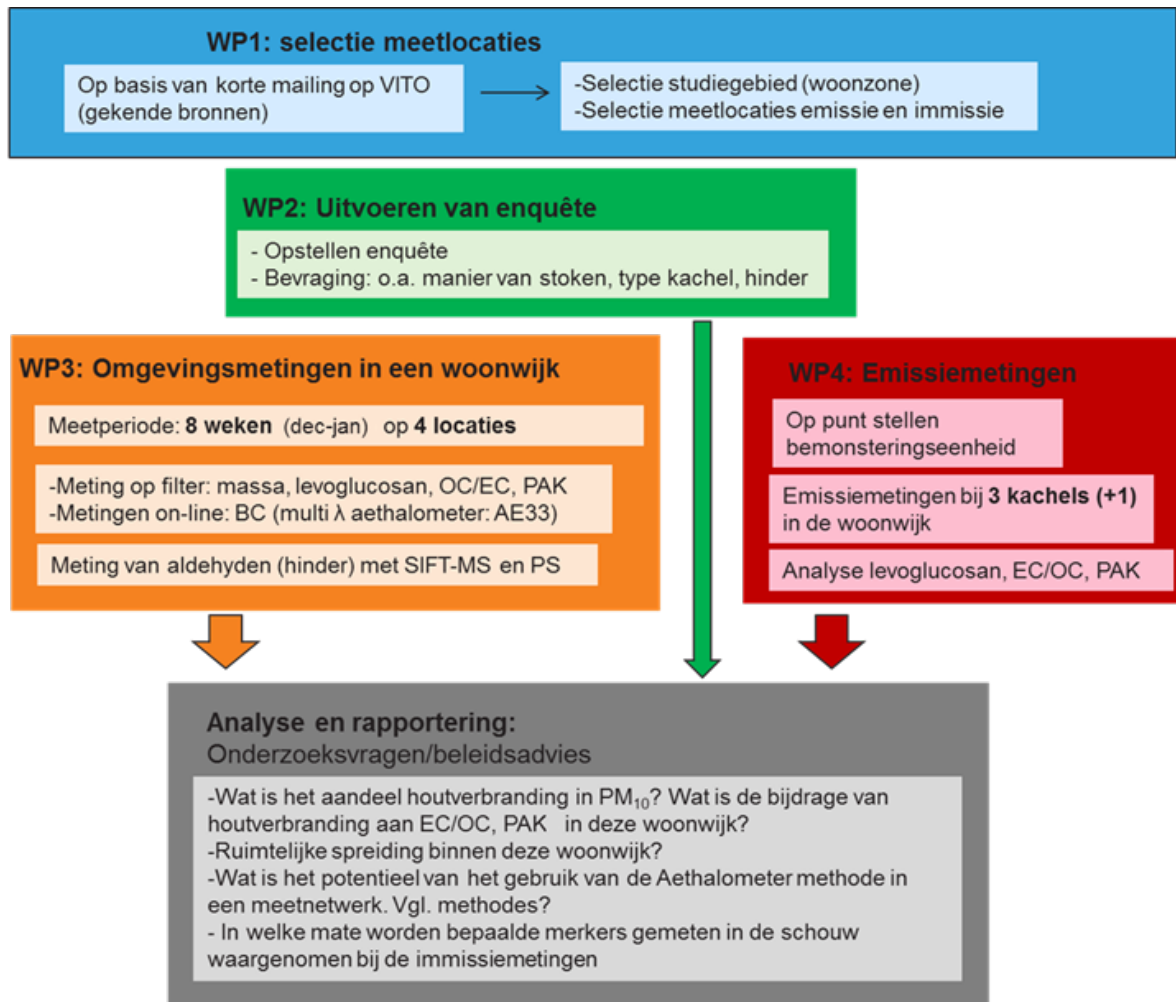
In verschillende Europese studies werd aangetoond dat de bijdrage aan houtverbranding in de winter groot is. Zo werd in een Duitse studie (Bari et al., 2010) aangetoond dat in een woongebied in de winter gemiddeld 59% van  $PM_{10}$  afkomstig was van houtverbranding. Verder tonen internationale studies aan dat houtverbranding in Europese steden belangrijk kan zijn en in bepaalde gevallen zelfs vergelijkbaar met bijdrage van het verkeer. (o.a. Caseiro et al., 2009; Fuller et al., 2014)

De resultaten van Chemkar III en IV (VMM, 2011; VMM, 2013) wijzen op een niet te verwaarlozen bijdrage van houtverbranding tot de totale gemeten fijn stof concentraties in Vlaanderen. Vooral in de winter is het aandeel vaak hoger dan 10%. In Chemkar IV werden de resultaten grotendeels bevestigd op basis van metingen op 4 stedelijke achtergrondlocaties. In een recente studie van Maenhaut et al. (2016) wordt gesteld dat de bijdrage van houtverbranding wordt onderschat op basis van de in de Chemkar-studies gebruikte tracermethode met een  $PM_{10}$ /levoglucosan-factor van 10,7.

Om een beter beeld te krijgen van het effect van houtverbranding door particulieren op de luchtkwaliteit in Vlaanderen werd onderhavige studie uitgevoerd. De studie omvatte in hoofdzaak de analyse van de impact van houtverbranding op lokale schaal (woonwijk). In een woonwijk werden zowel immissiemetingen uitgevoerd voor relevante parameters, als emissiemetingen om de bronnen te karakteriseren en een enquête om gebruik van houtverbranding en gerelateerde hinder na te gaan.

Deze studieopdracht omvatte (zie ook Figuur 1):

1. Het opstellen van plan van aanpak en selectie meetlocaties.
2. Het uitvoeren van een enquête bij de burgers in de woonwijk over houtverbruik en hinder door houtstook.
3. Het uitvoeren van luchtkwaliteitsmetingen in een woonwijk met gekende bronnen van houtverbranding, waarbij verschillende luchtkwaliteitsparameters in kaart gebracht worden volgens state-of-the-art meettechnieken.
4. Het uitvoeren van emissiemetingen aan schouwen van houtkachels



Figuur 1: Overzicht van de verschillende deeltaken in deze studie

In deze studie werden beproefde methoden en nieuwe methoden toegepast. Zo werd de tracer levoglucosan gebruikt voor de bepaling van bijdrage houtverbranding aan PM, wat ook in de Chemkar studies is gebruikt. Daarnaast werd een nieuwe methode toegepast op basis van een automatische BC monitor AE33 (Aethalometer methode) welke een potentieel biedt voor het inzetten in meetnetten.

Verder werd ook de bijdrage van houtverbranding aan PAK, EC en OC bepaald. De omgevingsmetingen verschaffen inzicht in de lokale spreiding van PM en deelpolluenten door houtverbranding in een woonwijk met houtverbranding.

Het specifieke karakter van de studie was de focus op een lokale woonwijk waar het aandeel van houtverbranding op lokale concentraties nog groter kan zijn dan gemiddeld over Vlaanderen. In deze studie werd de impact van houtverbranding in een woonwijk in detail onderzocht.

## 2.2. LITERATUUR OVER HOUTVERBRANDING IN EUROPA

Hieronder wordt een beknopt literatuuroverzicht gegeven van enkele belangrijke studies waarin het aandeel houtverbranding op verschillende pollutanten in de omgeving wordt onderzocht. Het is niet de bedoeling om hier een extensief literatuuroverzicht te geven.

In een studie van **Jedynska et al. (2015)**, werd in het kader van de ESCAPE studie levoglucosan gemeten in vier Europese regio's (Oslo, Nederland, Munchen/Augsburg en Catalonië) telkens op drie locaties (straat, stedelijke achtergrond en regionale achtergrond). De regionale achtergrond waren locaties in kleinere dorpen en gelegen op een afstand van meer dan 50 m van een weg met meer dan 3000 voertuigen. De metingen werden uitgevoerd in drie verschillende seizoenen (winter, zomer en lente of herfst), waarbij telkens twee weken werd bemonsterd. Naast levoglucosan werden ook PM<sub>2,5</sub>, PM<sub>2,5</sub> absorptie en PM<sub>10</sub>, PAK, NO<sub>x</sub>, EC/OC, hopanen, steranen en elementen (o.a. K) bepaald. De gemiddelde levoglucosanconcentraties in de regio's (Munchen, Oslo, Nederland en Catalonië) lagen tussen 64 - 102 ng/m<sup>3</sup> met maximale waarden in elk van de regio's tussen 122 – 263 ng/m<sup>3</sup>. De bijdrage houtverbranding aan PM<sub>2,5</sub> bedroeg gemiddeld tussen 7,3 – 28,3%.

De beste correlatie (mediaan R = 0,65 en 0,58) werd gevonden tussen levoglucosan en respectievelijk de som van de PAK (16 EPA PAK) en B(a)P in alle regio's. De laagste correlatie werd gevonden tussen levoglucosan en verkeersmerkers: som van hopanen/steranen en NO<sub>x</sub> (mediaan R = -0,22 voor beide) zie ook **Jedynska et al. (2014)**;

**Bari et al. (2009)** onderzochten de bijdrage van houtverbranding in een woongebied. Ze onderzochten de organische samenstelling van zowel emissies als omgevingsmetingen.

De studie werd uitgevoerd in een residentieel gebied Dettenhausen in Duitsland, omgeven door bossen, gelegen in het Z van Duitsland. De studie werd uitgevoerd op 1 locatie gedurende de winter november '05 – maart '06. Er werd gebruik gemaakt van low-volume samplers (Leckel 2,3 m<sup>3</sup>/h). Filters werden bemonsterd gedurende 48 uur tijdens de week en 75 uur in het weekend. De helft van de filter werd gebruikt voor PAK analyse, een vierde voor levoglucosan.

In de studie werden 21 PAK gemeten (waaronder de 16 EPA PAK), verschillende organische houtverbrandingstracers (o.a. levoglucosan, mannosan, galactosan). Er werden ook emissiemetingen uitgevoerd in testfaciliteiten en in reële omstandigheden in Dettenhausen. Voor de bepaling van fingerprints voor PAK werden o.a. experimenten met beukenhout en dennenhout uitgevoerd maar er werden geen details gegeven over de manier waarop de bemonstering werd uitgevoerd. Bari et al. (2009) slaagden er in een eerdere studie in 'fingerprints' van bronnen te bepalen voor zacht en hard hout, verkeer, verbranding van lichte stookolie. De dominante PAK waren:

- voor zacht hout: reteen, benzo[ghi]peryleen, indeno[1,2,3-cd]pyreen, benzo[a]pyreen, benzo[e]pyreen en benzo[k+b]fluorantheen;
- voor hard hout: fluorantheen, pyreen, benzo[a]anthraceen en chryseen;
- voor verkeer werden vooral benzo[a]anthraceen, benzo[k+b]fluorantheen, benzo[a]pyreen en indeno[1,2,3-cd]pyreen gemeten;
- de gemeten PAK bij het gebruik van lichte stookolie waren hoofdzakelijk fenanthreen, benzo[a]anthraceen, benzo[e]pyreen, benzo[k]fluorantheen, benzo[a]pyreen en chryseen maar de concentraties lagen laag omwille van een goede verbranding.

De hierboven onderlijnde PAK maken deel uit van het standaardpakket van PAK gemeten in  $PM_{10}$  in het immissie meetnet door VMM.

In 2009 werd door deze auteurs een nieuwe meetcampagne uitgevoerd, waarbij PM massa en PAK gemeten werden (Bari et al., 2011). Voor de emissiemetingen was 90% van PM-massa aanwezig in de  $PM_{10}$ -fractie en voor de omgevingsmetingen was 79% van  $PM_{10}$  aanwezig in de  $PM_{2,5}$ -fractie.

In een andere recente studie van **Thatcher et al. (2014)** werd de variabiliteit van luchtparameters in een klein woongebied in de VS onderzocht. De studie werd uitgevoerd in een woongebied van 1  $km^2$  met ongeveer 400 huizen.

In de studie werden 15 intensieve veldcampagnes uitgevoerd bij gunstige weersomstandigheden: lage temperaturen (meer houtstook), lage windsnelheid (minder dispersie), inversie (minder verticale dispersie) en droog weer (om uitwassen te vermijden). Metingen werden enkel uitgevoerd 's nachts (12 uur) en gelijktijdig werd een IR (infrarood) camera gebruikt om na te gaan waar er gestookt werd. Personal Environmental Monitors (PEM) werden gebruikt en na sampling werd op basis van lichttransmissie de BC concentratie bepaald. Daarnaast werden ook BC metingen (met multi- en dual wavelength Aethalometer) uitgevoerd.

Hieruit bleek dat er een grote variatie was in concentraties binnen het studiegebied (met verschillen tot een factor 10) en bijgevolg een groot verschil in blootstelling. Er werden ook verschillen waargenomen tussen de meetdagen: gemiddeld tussen <50 en 441  $ng/m^3$  BC.

**Hellén et al. (2008)** voerden een studie uit in Kurkimäki (Finland) op 15 km van Kuoppio. Metingen werden uitgevoerd in de residentieel gebied en op 1,5 km als achtergrond. In 154 van de 164 huizen werd hout gebruikt als secundaire energiebron.

$PM_{10}$ ,  $PM_{2,5}$ , PAK en VOS werden gemeten. De gemiddelde  $PM_{10}$  concentraties waren niet significant hoger in de woonzone in vergelijking met de achtergrondlocatie. Wel werden verhoogde piekconcentraties waargenomen in het woongebied. De impact van houtverbranding was duidelijker voor organische componenten dan voor fijn stof. De impact op organische componenten was zowel zichtbaar in het dagprofiel als in de 2-weekgemiddelde concentraties.

Gemiddeld waren de PAK-concentraties 1,6 keer hoger dan op de achtergrondlocatie. Enkele keren was de concentratie van bepaalde PAK (bv. B(a)P) vijf tot tien keer hoger dan de achtergrond. Ook benzeenconcentraties toonden eenzelfde profiel als de houtverbranding.

De correlatie tussen B(a)P en de som van de PAK was zeer goed ( $R = 0,92$ ).

In Nederland werden door **Kos and Weijers (2009)** omgevingsmetingen uitgevoerd in Schoorl om een inzicht te krijgen in de lokale immissie als gevolg van lokale emissie van houtkachels. Hiervoor werden  $PM_{10}$ - en  $PM_{2,5}$ -concentraties gemeten in het gebied waar de emissies plaats vinden (Schoorl) en in een achtergrondgebied (open veld te Burgervlotbrug) op een afstand van ongeveer 4 km. Hierbij werd gekeken naar het verschil in  $PM_{10}$  en levoglucosan-gehalten. De meetcampagne werd uitgevoerd gedurende bijna drie weken in februari.

Ze vonden dat 80% van het levoglucosan te vinden was in  $PM_{2,5}$ , wat in lijn ligt met literatuurwaarden van 90%. De gemiddelde levoglucosan-concentraties bedroegen respectievelijk 152,9  $ng/m^3$  in het gebied met houtverbranding en 36,8  $ng/m^3$  op de achtergrondlocatie.

Op basis van de verschilconcentraties tussen Schoorl en achtergrond werd de verhouding  $PM_{10}/L$  bepaald op 37. De resulterende bijdrage  $PM_{10}$  uit houtverbranding in het gebied werd geschat tussen 4,2 en 5,7  $\mu g/m^3$  (of tussen 20 en 27%).

**Caseiro et al. (2009)** onderzochten de bijdrage aan houtverbranding in drie Oostenrijkse regio's waarbij drie type locaties werden bemeten (stedelijk verkeersstation, stedelijke residentieel en achtergrond). Een bijdrage van houtverbranding aan OC tot 70% werd waargenomen in de achtergrondstations. De gemiddelde levoglucosanconcentraties in de winter lagen tussen 0,19 - 0,86  $\mu g/m^3$ . Mannosan en galactosan vertoonden een gelijkaardig seizoensprofiel als levoglucosan

en een goede correlatie, maar de concentraties van levoglucosan waren hoger. Ze bepaalden ook het aandeel zacht hout op basis van de L/M-ratio en formule van Schmidl et al. (2008). Het aandeel zacht hout werd geschat op 60 – 85%. Als conversiefactoren werden 6,1; 9,1 en 10,7 toegepast voor de bepaling van de bijdrage houtverbranding aan respectievelijk OC (organische componenten), OM (Organic Matter) en PM. Ze besluiten dat houtrook de belangrijkste bron is van organisch materiaal in landelijke gebieden en kleine steden in centraal Europa: de gemiddelde bijdrage aan OC en OM in de winter bedroeg respectievelijk tussen 31%- 70% en 27% - 62%. De bijdrage van houtverbranding aan PM<sub>10</sub> ligt tussen 10% (in regio Wenen) en 20% in meer landelijke bosrijke gebieden. In de herfstperiode was de bijdrage van houtverbranding op bepaalde locaties nog hoger dan in de winter te wijten aan het grote aandeel houtverbranding via bijverwarming in het tussenseizoen.

**Fuller et al. (2014)** bepaalden de bijdrage van houtverbranding aan PM<sub>10</sub> in Londen aan de hand van enerzijds een korte campagne van 6 weken in januari – februari 2010, waarbij levoglucosan bepaald werd op 24h-filters en anderzijds een tijdsreeks van 3 jaar van Aethalometer-data. Levoglucosan werd gemeten op 5 achtergrondlocaties en 1 locatie op 20 m van een stookinstallatie met houtpellets voor verwarming van een educatief centrum. De levoglucosan-concentraties bedroegen  $160 \pm 17 \text{ ng/m}^3$  in centraal Londen en lagen  $30 \pm 26 \text{ ng/m}^3$  hoger in de buitenwijken. De inschatting van houtverbranding op basis van levoglucosan enerzijds en de Aethalometer anderzijds waren in overeenstemming, respectievelijk  $1,8 \mu\text{g/m}^3$  en  $2,0 \mu\text{g/m}^3$ .

**Favez et al. (2009)** onderzochten de bijdrage van houtverbranding in de winter (10 januari tot 21 februari 2005) in Parijs. Ze vonden een significant hogere gemiddelde  $\alpha$ -waarde van  $1,25 \pm 0,11$  in de winter in vergelijking met de zomer  $1,07 \pm 0,04$ . De  $\alpha$ -waarde werd bepaald op basis van de golflengten 370 – 950 nm. Het gemiddelde dagprofiel toonde de laagste waarden voor  $\alpha$  tijdens de piekuren en de hoogste waarden tijdens de nacht ( $1,33 \pm 0,10$ ) in de winter. Het dagprofiel is dagelijks te zien wat volgens de auteurs wijst op lokale bronnen, eerder dan regionale bijdrage van houtverbranding. Ze vonden een goede overeenkomst tussen de  $\alpha$ -waarde en de OC/EC-verhouding wat wijst op de belangrijke bijdrage van organische componenten op de spectrale afhankelijkheid van lichtabsorptie. De bijdrage van houtverbranding in PM<sub>2,5</sub> werd bepaald op 20% in de winter.

Resultaten van de Vlaamse Chemkar III studie (meetperiode 2010 – 2011) werden gepubliceerd (**Maenhaut et al., 2012**) en vergeleken met andere Europese studies. De levoglucosan-concentraties op 5 van de 7 meetlocaties waren gelijkaardig wat aangeeft dat houtverbranding een regionaal probleem is dat gelijktijdig plaats vindt in verschillende huizen. Op een van de locaties was de concentratie lager (Houtem) ten gevolge van aanvoer van zuivere zeelucht en een andere locatie (Hamme) vertoonde hogere concentraties te wijten aan de aanwezigheid van huizen met houtverbranding in de nabijheid van de meetlocatie. De berekende bijdrage houtverbranding aan PM<sub>10</sub> lag op zes van de zeven locaties jaargemiddeld tussen 4,8 – 6,3% en het gemiddelde voor de winter lag tussen 8,6 – 11,3%. De berekende bijdrage van houtverbranding aan PM<sub>10</sub> liep in Hamme op tot 13,3% voor de jaargemiddelde concentratie en 21,9% voor de concentraties in de winter. Deze waarden liggen in lijn met andere Europese studies. Het aandeel zacht hout werd ingeschat op 70%. De jaargemiddelde L/M-verhouding lag tussen 6,2 – 7,1 en er werd weinig variatie over de seizoenen vastgesteld.

In een recentere publicatie (**Maenhaut et al., 2016**) worden resultaten van een Chemkar IV (meetperiode 2011 – 2012) uitgevoerd in vier steden, besproken. De berekende bijdrage van houtverbranding aan PM<sub>10</sub> op basis van PMF (Positive Matrix Factorisation) bedroeg 12,5 – 20% in de winter. Deze waarde was veel hoger dan bepaald op basis van de tracermethode met levoglucosan, wat erop wijst dat de gebruikte factor 10,7 mogelijk te laag is. De nieuwe inschatting



van de factor  $PM_{WB}/levoglucosan$  bedroeg 22,56. Mediaanwaarden over een gans jaar voor de bijdrage van houtverbranding aan EC en OC lagen respectievelijk tussen 2,8 – 6,6% en 15,1 – 30%.

**Glasius et al. (2006)** onderzochten de bijdrage van houtverbranding in een kleine gemeente (2200 inwoners). Hierbij werd een meetstation in het midden van het woongebied geplaatst en een meetstation op 10 km als achtergrond. In 1 op 4 huizen werd hout gestookt. In de winterperiode bedroeg de lokale bijdrage aan  $PM_{2,5}$   $4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Deeltjesgrootteverdeling toonde dat de grootste volumeconcentratie rond 400 – 500 nm lag.

**Herich et al. (2011)** onderzochten de bijdrage van houtverbranding in Zwitserland. Ze maakten onderscheid tussen de bijdragen van fossiele brandstoffen en houtverbranding aan de BC-concentraties met behulp van de multi-wavelength Aethalometer. Ze onderzochten data van 2,5 jaar (2008-2010) op twee landelijke en één stedelijke achtergrondsite. Ze vonden een bijdrage van 24-33% van houtverbranding aan BC in de winter. Ze gebruikten hiervoor lichtabsorptie bij 470 nm en 880 nm (met  $\alpha_{FF} = 0,9$ ;  $\alpha_{WB} = 1,9$ ). Ze vonden een goede correlatie tussen  $BC_{WB}$  enerzijds en kalium ( $R^2 = 0,77$ ) en levoglucosan ( $R^2 = 0,67$ ) anderzijds. Voor  $BC_{FF}$  daarentegen werd geen goede correlatie gevonden (0,14 voor kalium en 0,01 voor levoglucosan).  $BC_{FF}$  vertoonde daarentegen wel een goede correlatie met NOx.

**Piazzalunga et al. (2011)** bepaalden de bijdrage van houtverbranding aan PM in Italië via de tracermethode waarbij twee verschillende methoden werden gebruikt om de emissiefactor  $PM/levoglucosan$  te bepalen. Enerzijds gebruikten ze een gewogen emissiefactor op basis van type hout dat gebruikt wordt in de regio, omdat de emissiefactor sterk afhangt van type hout dat verbrand wordt. Anderzijds gebruikten ze PMF (Positive Matrix Factorisation) om de emissiefactor af te leiden. De auteurs vinden weinig verschil wanneer een aangepaste emissiefactor gebruikt wordt op basis van inschatting van type hout verbruikt, mogelijk omdat het aandeel zacht hout vrij groot is. Wanneer ze echter gebruik maken van de emissiefactor bepaald via PMF vinden ze een bijdrage van houtverbranding die 60% hoger ligt. Ze besluiten dat de bijdrage van houtverbranding mogelijk sterk onderschat wordt wanneer factoren op basis van emissiemetingen gebruikt worden en geen rekening gehouden wordt met veroudering van het houtverbrandingsaerosol.

**Fine et al. (2004)** (en eerdere studies van Fine et al.) onderzochten de emissies van een aantal types hout in drie verschillende types verbrandingsbronnen: open haard en houtkachel zonder en met katalytische filter. Deze laatste bevat een honingraatfilter, gecoat met Pt of Pd om de verbrandingstemperatuur te verlagen en de verbranding efficiënter te laten verlopen. Tijdens de metingen werd ook het vochtgehalte bepaald (zie ook **Fine et al., 2001**). Fine et al. rapporteerden PM-emissiefactoren van 0,88 tot 3,4 g/kg hout voor een niet-katalytische houtkachel. De waarden voor katalytische kachels lagen lager. De bijdrage EC en OC tot de totale stofmasse bedroeg respectievelijk tussen 3,3 – 22,8% en 43,6 – 77,8%. Levoglucosan-emissies per hoeveelheid OC waren verschillend voor verschillende types kachels (vb. houtkachel in vergelijking met open haard) en hout. Gemiddeld bedroeg de hoeveelheid levoglucosan per hoeveelheid OC  $129 \pm 78 \text{ mg/g}$ .

**Tissari et al. (2007)** onderzochten het effect van verbrandingsomstandigheden op emissies. Ze gebruikten hiervoor een eigen ontwikkeld meetsysteem (zie ook Tissari et al., 2004). Ze vonden dat de manier van stoken een grote invloed heeft op de resulterende emissies. Tijdens smeulende condities (smouldering conditions : SC) is de hoeveelheid CO 3,5 keer zo groot, TVOS 14 keer en  $PM_1$  6 keer zo groot als bij normale condities (NC). Daarentegen waren de hoeveelheid anorganische componenten en het aantal deeltjes lager voor SC in vergelijking met NC.

**Alves et al. (2011)** onderzochten de emissies van een open haard en een kachel voor verschillende types hout. Ze vonden hogere  $PM_{2,5}$ -emissies voor open haard in vergelijking met de kachel. Verder

was het type hout ook bepalend voor de emissies. De OC/TC-verhouding lag tussen 0,85 - 0,97 en was vergelijkbaar voor beide type installaties.

**Genberg et al. (2013)** vergeleken modelberekeningen en metingen voor de bepaling van de bijdrage van houtverbranding aan EC en BC. Ze vergeleken EC metingen met BC en vergeleken ook gemeten concentraties met modelberekeningen via EMEP. Ze vonden dat resultaten van het EMEP-model (met recente emissie-inventaris van EC) goed overeenkwamen met gemeten EC-concentraties in regionale achtergrondstations in N-Europa. EC en BC werden gemeten met acht verschillende technieken of protocollen en het verschil in techniek bepaalde in zekere mate de verschillen in waargenomen concentraties.

In het kader van het JOAQUIN-project (**Cordell et al., 2016**) werden in 2013 – 2014 in verschillende partnersteden (Wijk-aan-Zee, Amsterdam, Antwerpen (Borgerhout), Leicester en Lille) metingen uitgevoerd van levoglucosan in  $PM_{10}$ . De levoglucosan-concentraties waren verhoogd tussen november en maart. In deze periode bedroegen de gemiddelde concentraties tussen  $23 \pm 9,7$  en  $283 \pm 163$  ng/m<sup>3</sup>. De gemiddelde berekende bijdrage houtverbranding in de winter lag tussen  $2,7 \pm 1,4\%$  en  $11,6 \pm 3,8\%$ . In Borgerhout bedroeg de bijdrage 6%, wat hoger is dan in Amsterdam (ongeveer 5%) en lager dan in Lille (11,6%). De overeenkomstige  $PM_{10}$  massa lag tussen 0,56 en 2,08  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . Er werd geen goede correlatie waargenomen tussen de gemeten levoglucosan-concentraties op de verschillende locaties, wat erop wijst dat houtverbranding een relatief lokale impact heeft op de luchtkwaliteit.



## HOOFDSTUK 3. PROJECTBESCHRIJVING OMGEVINGSMETINGEN

---

### 3.1. INLEIDING

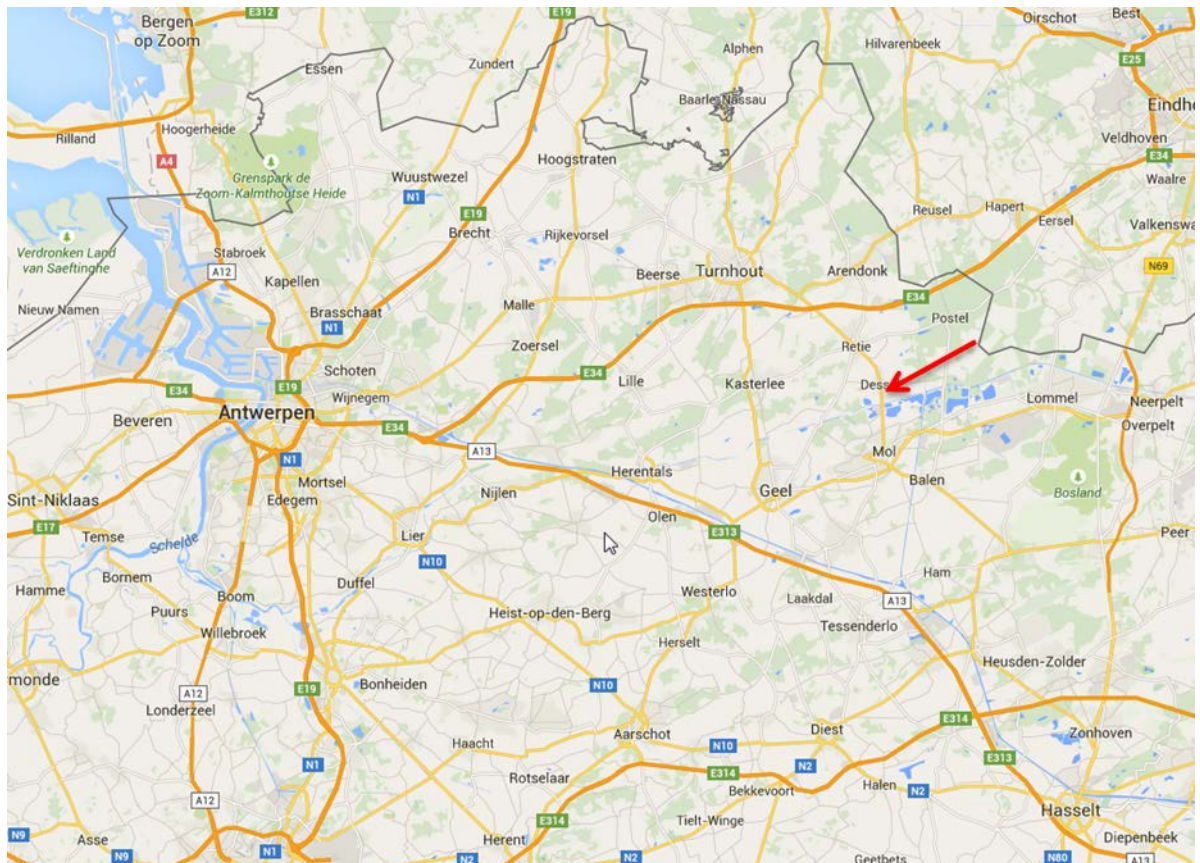
Metingen werden uitgevoerd op 3 locaties in de woonwijk en 1 niet-beïnvloede locatie (achtergrond). De drie locaties werden gekozen in functie van gekende houtverbrandingsbronnen en verspreid over de woonwijk. Er werd getracht om de locaties zo te kiezen dat ze een goed beeld geven van de variaties binnen de woonwijk.

De meetcampagne had plaats in de winter 2015-2016, gedurende 8 weken van 4/12/15 tot en met 31/1/16. Op basis van  $PM_{10}$  massa, meteo en heersende concentraties werden een deel van de filters geselecteerd voor verdere analyse (PAK, EC/OC en levoglucosan).

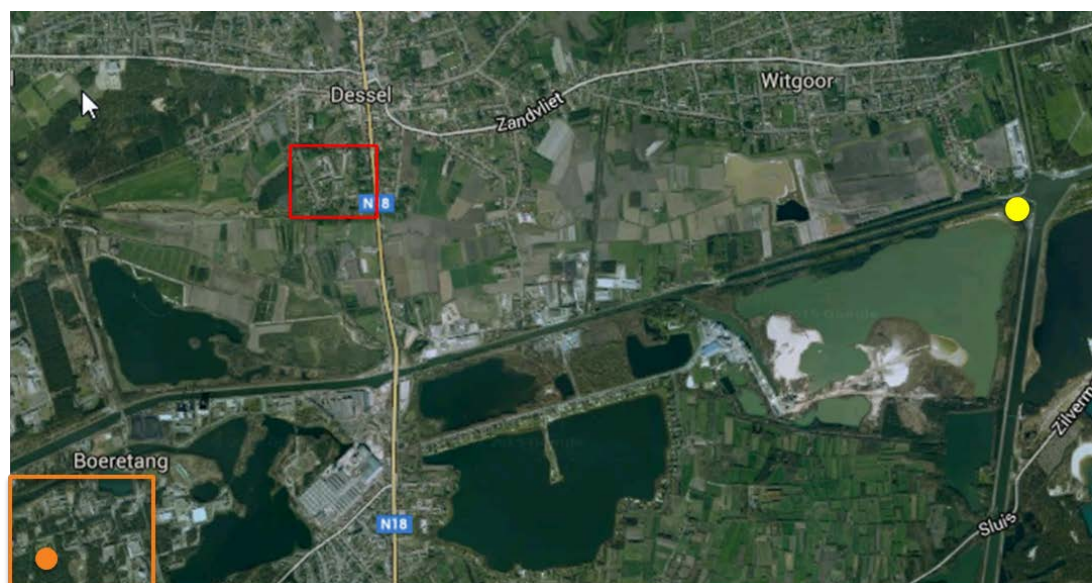
### 3.2. STUDIEGEBIED EN MEETLOCATIES OMGEVINGSMETINGEN

Na voorafgaande rondvraag bij werknemers van VITO naar woongebieden met houtstook, werd er een studiegebied geselecteerd. Het studiegebied bevond zich in Dessel (zie Figuur 2). Dessel is een gemeente in de Kempen met 9350 inwoners. De geselecteerde woonwijk in Dessel is aangeduid op Figuur 3 (kader in rood is de geselecteerde woonwijk).

De gewestweg N18 loopt door de gemeente en bevindt zich ten O van het geselecteerde gebied . Ten Z van de gemeente bevindt zich het kanaal Bocholt-Herentals. Het studiegebied ligt ten ZO van het centrum van Dessel.



Figuur 2: Ligging van het studiegebied in Vlaanderen



Figuur 3: Ligging van studiegebied met woonzone (rood kader), achtergrondlocatie (oranje stip in oranje kader) en VMM meetstation Dessel (gele stip).

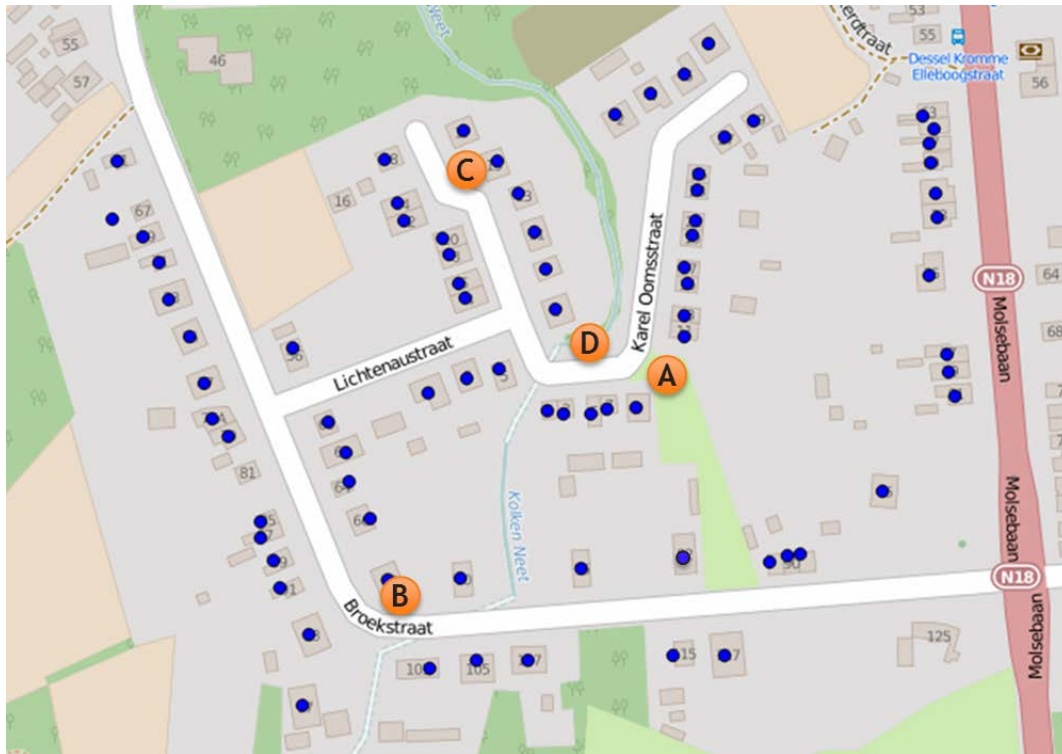
Meer details over het studiegebied zijn weergegeven in onderstaande.

Als **achtergrondlocatie** werd het VITO-domein in Mol gekozen. Het studiegebied in Dessel is op ongeveer 2 km (in vogelvlucht ) gelegen van de achtergrondlocatie (VITO). De achtergrondlocatie (E) is gelegen ten ZW van het studiegebied in Dessel (locaties A – D) en tussen beide is geen bebouwing. Meer detail van de ligging van achtergrondlocatie E is weergegeven in Figuur 4 .



*Figuur 4: Ligging van de achtergrondlocatie op het VITO-domein.*

De ligging van de meetlocaties in het studiegebied is weergegeven in Figuur 5. A-D duiden de omgevingsmetingen aan waarbij op D enkel meteo gemeten is. De emissiemetingen werden ook uitgevoerd in het studiegebied. De blauwe bolletjes geven de adressen aan waar een enquête werd afgegeven. In Tabel 1 wordt een overzicht gegeven van de meettoestellen op de verschillende locaties. Tijdens de meetcampagne waren er wegwerkzaamheden ter hoogte van de N18 waardoor verkeer werd omgeleid langs de Broekstraat, waarlangs meetlocatie B gelegen is. Hierdoor werd locatie B van alle locaties in het studiegebied het sterkst door verkeersemisies beïnvloed.



Figuur 5: Overzicht meetlocaties omgevingsmetingen

Tabel 1: Overzicht meetlocaties omgevingsmetingen

| nr. locatie | Toestellen  |
|-------------|---|
| A           | AE33 en SIFT-MS in Aeromax meetwagen<br>Leckel (PM <sub>10</sub> )    |
| B           | AE33 in weersbestendige behuizing IrCel<br>Leckel (PM <sub>10</sub> ) |
| C           | AE33 in weersbestendige behuizing IrCel<br>Leckel (PM <sub>10</sub> ) |
| D           | meteowagen  |
| E<br>(VITO) | AE33 in weersbestendige behuizing VITO<br>Leckel (PM <sub>10</sub> )  |

### 3.3. RESULTATEN ENQUÊTE

In het studiegebied werd een enquête afgenomen naar het reële houtverbruik en/of ervaringen met hinder door houtstook. Het hoofddoel van de enquête was houtverbruik, manier van stoken en hinder door houtstook in kaart te brengen.

De respons was 67%. Van de 52 respondenten gebruikt 42% (22) hout als brandstof. Het werkelijke percentage dat hout gebruikt ligt dus tussen 28 en 64%. Dit is een voldoende hoog % voor deze

studie. De meeste mensen (91%) gebruiken hout als bijverwarming of voor de gezelligheid. De meest gebruikte houtverwarmingsinstallaties zijn cassette (57%) en kachel (30%). Ook in de WoET-studie waren kachel (39%) en cassette (37%) het meest gebruikte verwarmingstoestellen op hout. Het iets hogere aandeel van cassette is mogelijk te wijten aan een groot aandeel relatief nieuwe huizen in het studiegebied.

De meeste mensen gebruiken blokken hout van verschillende houtsoorten. Zowel hard hout (eik, beuk, accacia) als zacht hout (den, berk) worden gebruikt in het studiegebied. Het is echter niet duidelijk in welke verhouding omdat soms verschillende houtsoorten worden opgegeven.

### **3.4. BEPALEN VAN DE LOKALE BIJDRAGE**

Om de lokale bijdrage van houtverbranding in het studiegebied in te schatten werd het verschil gemaakt van de concentratie in het studiegebied (locatie A,B,C) en de concentratie gemeten op de achtergrondlocatie E. We merken op dat indien er toch een ongekende bron op de achtergrondlocatie E is die de concentratie sterk beïnvloedt, deze aanpak kan leiden tot negatieve waarden voor de inschatting van de lokale bijdrage in het studiegebied. Om een nauwkeurige inschatting van de lokale bijdrage te bepalen zou men over meerdere achtergrondlocaties moeten beschikken, maar dat was binnen de opzet van deze studie niet mogelijk.

### **3.5. BEMONSTERINGEN FILTERS**

PM<sub>10</sub> werd bemonsterd op filters met een Leckel SEQ47/50 aan een debiet van 2,3 m<sup>3</sup>/h. De bemonsterde filters (Pall Tissuquartz) werden geanalyseerd voor PM<sub>10</sub> massa, EC/OC (via thermal-optical transmittance (TOT) volgens NIOSH2 of NIOSH\_870 protocol, Birch and Cary, 1996) en PAK (volgens GC-MS analyse na aceton/hexaan extractie met ASE).

Na bemonstering werd de filter geconditioneerd gedurende minstens 48 h en vervolgens 2 maal gewogen in een geconditioneerde weegkamer (T: 20°C ± 1 en RV: 50 ± 5%) volgens EN 12341 (1999). Na weging werden de filters bewaard in de koelkast (4°C). Dit is voornamelijk nodig om geen verliezen te hebben van OC in afwachting van de analyse.

Na de weging op VITO werden de filters gedeeld waarbij twee punches werden genomen (1 punch van 1,5 cm<sup>2</sup> voor EC/OC, 1 punch van 1 cm<sup>2</sup> voor levoglucosan) en de rest van de filter werd gebruikt voor PAK-analyse.

### **3.6. ANALYSE FILTERS**

#### **3.6.1. OC/EC**

OC en EC werden gemeten met behulp van NIOSH (NIOSH 870) protocol. Eerdere OC- en EC-analysen in het kader van Chemkar-studies gebruikten hetzelfde protocol. NIOSH geeft voor stalen met bijdrage van houtverbranding een betere scheiding<sup>2</sup> dan EUSAAR2 omdat het de fractie

---

<sup>2</sup> Persoonlijke communicatie met Pavlos Panteliadis (GGD Amsterdam)



afkomstig van houtverbranding, het zogenaamde ‘brown carbon’ quasi volledig toeschrijft aan OC. Dit werd ook vastgesteld in de recente literatuurreview over thermo-optische analysemethoden voor EC en OC door Karanasiou et al. (2015).

Sinds kort adviseert een Europese werkgroep voor EC/OC bepaling (CEN TC264/WG35) om in plaats van het NIOSH protocol het EUSAAR2 protocol te gebruiken. In de vergelijkende studie uitgevoerd in verschillende labo's (Panteliadis et al., 2015) werden volgende verbanden tussen verschillende T-protocols vastgesteld:

$$TC_{\text{NIOSH870}} = 0,98 \times TC_{\text{EUSAAR2}} \quad (R^2 = 1,00)$$

$$EC_{\text{NIOSH870}} = 0,80 \times EC_{\text{EUSAAR2}} \quad (R^2 = 0,96)$$

Blanco-waarden werden gemeten als steekproef waarbij 3 labo-blanco's en 5 veldblanco's werden bepaald. De blanco's bedroegen  $0,00 \mu\text{g}/\text{m}^3$  voor EC en  $0,33 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (laboblanc) en  $0,87 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (veldblanc) voor OC. De blanco-waarden waren aanvaardbaar; de Europese werkgroep stelt dat OC-veldblanco's van  $4 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  voor OC aanvaardbaar zijn, wat overeenkomt met een concentratie van en  $0,87 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  voor OC voor de bemonsteringskarakteristieken in deze studie. Ter vergelijking: in de Chemkar III studie bedroeg de blanco voor OC  $0,80 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (mediaan) op basis van meer dan 100 filters.

Veldblanco's werden niet afgetrokken in de huidige studie; dit is een aanbeveling van de Europese werkgroep. Enkel voor één van de berekeningen voor de bepaling van het aandeel houtverbranding werd OC-blancowaarde afgetrokken. (zie 5.9.2)

### 3.6.2. HOUTVERBRANDINGSTRACERS

Zie 3.9.1

### 3.6.3. PAK

PAK van de omgevingsmetingen werden bepaald met ASE (Accelerated Solvent Extraction) met aceton/hexaan gevolgd door een solvent switch naar toluen en kwantificatie met Gas Chromatography – Mass Spectrometry (GC-MS).

De PAK die bepaald werden bij de immissiemetingen zijn: fluorantheen (Flu), pyreen (Pyr), benzo(a)anthraceen (B(a)A), chryseen (Chr), benzo(b)fluorantheen (B(b)Flu), benzo(j)fluorantheen (B(j)Flu), benzo(k)fluorantheen (B(k)Flu), benzo(a)pyreen (B(a)P), indeno(1,2,3-cd)pyreen (IP), dibenzo(a,h)anthraceen (dBz(ah)An) en benzo(g,h,i)peryleen (B(ghi)P).

## 3.7. METINGEN VAN BC EN BEPALING VAN AANDEEL HOUTVERBRANDING MET AE33

In deze studie wordt de bijdrage houtverbranding aan BC en  $\text{PM}_{10}$  ook bepaald aan de hand van de ‘Aethalometer’ methode (Sandradewi et al., 2008 a,b). Hieronder wordt kort het principe van deze methode toegelicht.

### 3.7.1. BC METING MET AE33

BC wordt gemeten met de multi-wavelength Aethalometer (AE33, Magee Scientific). Het toestel collecteert deeltjes op een filtertape door continu omgevingslucht aan te zuigen over de tape. Het totaal debiet is 5L/min. De transmissie wordt continu (tijdsresolutie 1 min) gemeten en vergeleken

met een onbeladen referentiespot. Hieruit wordt de attenuatie (vermindering van licht door de filter) berekend. De BC concentratie wordt dan bepaald op basis van de verandering in attenuatie (ATN) in functie van de tijd en specifieke absorptiecoëfficiënt bij de respectievelijke golflengte.

$$ATN = 100 * \ln(I_0/I)$$

met  $I_0$  = transmissie over onbeladen filterspot

$I$  = transmissie over beladen filterspot

De attenuatiecoëfficiënt ( $b_{ATN}$ ) wordt dan berekend uit de verandering in attenuatie ( $\Delta ATN$ ) in functie van de tijd via onderstaande formule:

$$b_{ATN} = (\Delta ATN/100)/(F * \Delta t * S)$$

met  $S$  = oppervlakte spot;  $F$  = Flow,  $\Delta t$  = tijdsinterval

De absorptiecoëfficiënt ( $b_{abs}$ ) wordt dan berekend uit de attenuatiecoëfficiënt ( $b_{ATN}$ ) via onderstaande formule, waarbij rekening gehouden wordt met multiple scattering veroorzaakt door het filtermateriaal. Door multiple scattering van de lichtbundel op de filtervezels zal er een verhoogde absorptie zijn van de aerosoldeeltjes die in het filtermateriaal zitten ten opzichte van die aerosoldeeltjes in de lucht. Dit fenomeen werd beschreven door Weingartner et al. (2003) aan de hand van een calibratiefactor  $C$ , welke functie is van het filtermateriaal (1,57 voor teflon-gecoate glasvezelfilter en 2,14 voor kwartsvezelfilter volgens Drinovec et al., 2015).

$$b_{abs} = b_{ATN}/C = (\Delta ATN/100)/(F * \Delta t * S * C)$$

met  $C$  = multiple scattering parameter, bepaald op 1,57 voor het hier gebruikte filtermateriaal teflon-gecoate glasvezelfilter (T60A20) (Drinovec et al., 2015)

De BC concentratie wordt berekend uit de absorptiecoëfficiënt  $b_{abs}$  en de specifieke absorptiecoëfficiënt (MAC: Mass absorption Cross section, soms ook  $\sigma_{air}$  genoemd) bij de respectievelijke golflengte:

$$BC_{\lambda} (\mu g/m^3) = b_{abs} \lambda / MAC(\lambda)$$

met  $MAC(\lambda)$  de mass absorption cross section (functie van de golflengte)

Hierbij moeten we opmerken dat er een verschil is tussen mass attenuation cross section ( $\sigma$ ) en mass absorption cross section (MAC of  $\sigma_{air}$ ). De eerste geeft aan hoeveel 1 ng/m<sup>3</sup> BC aerosol absorbeert wanneer het in een filter zit en de laatste geeft aan wat de absorptie is van evenveel BC aerosol in de lucht. De MAC is dus een eigenschap van het aerosol. De correctie  $C$  geeft aan in welke mate de filter de absorptie versterkt. Dit is een belangrijk gegeven wanneer we literatuurwaarden en toestelsettings van verschillende versies vergelijken. Een MAC van 7,77 @ 880 nm komt overeen met een mass attenuation cross section ( $\sigma$ ) van 12,20 voor het hier gebruikte filtermateriaal en van 16,63 voor het filtermateriaal (kwartsfilter) gebruikt in de AE31 door o.a. Weingartner et al. (2003). In sommige studies wordt de term mass absorption efficiency (MAE) gebruikt in plaats van MAC (vb. Sciare et al., 2011).

BC wordt gemeten bij verschillende golflengtes (respectievelijk 370 nm, 470nm, 520 nm, 590 nm, 660 nm, 880 nm en 950 nm). De gebruikte MAC voor elk van de kanalen is weergegeven in Tabel 2.

De AE33 voert zelf een correctie uit voor belading op basis van meting op 2 spots (dual spot) bij een verschillend debiet. Het algoritme gebruikt voor ladingcorrectie is beschreven in Drinovec et al. (2015) en gebaseerd op de methode van Virkkula et al. (2007). De filtertape schuift automatisch door wanneer een attenuatie van 120 is bereikt.

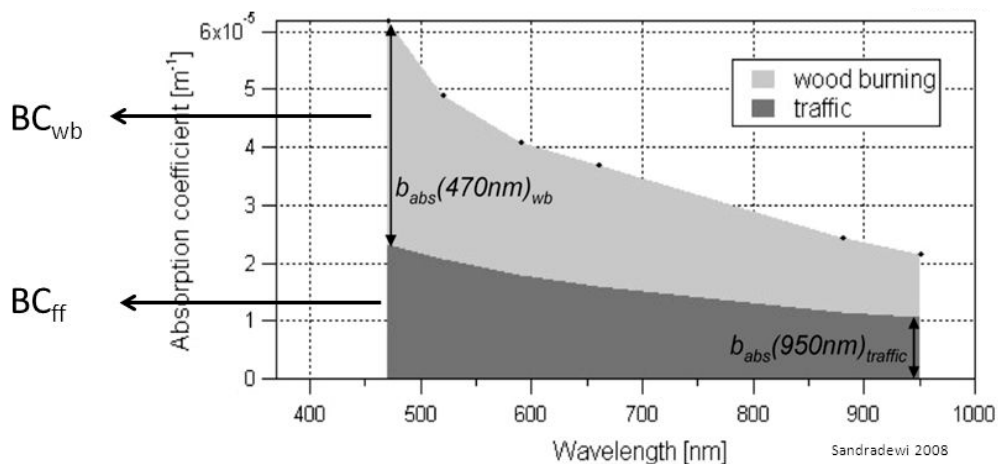
Tabel 2: MAC gebruikt in de AE33 in deze studie

|   | 370 nm | 470 nm | 520 nm | 590 nm | 660 nm | 880 nm | 950 nm |
|---|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|
| MAC of $\sigma_{air}^*$ (m <sup>2</sup> /g) | 18,47  | 14,54  | 13,14  | 11,58  | 10,35  | 7,77   | 7,19   |

\* de overeenkomstige  $\sigma$  kan berekend worden door bovenstaande waarden te vermenigvuldigen met C = 1,57

**3.7.2. BEPALING AANDEEL HOUTVERBRANDING OP BASIS VAN AETHALOMETERMETHODE**

De Aethalometermethode is gebaseerd op het feit dat houtrook ('brown carbon') beter licht absorbeert bij lagere golflengten (UV) in vergelijking met hogere golflengten (IR), terwijl voor BC (Black Carbon) afkomstig van fossiele brandstoffen de golflente-afhankelijkheid minder sterk is. De golflengteafhankelijkheid wordt beschreven door de Ångström coëfficiënt  $\alpha$  via de relatie  $b_{abs} = cte \cdot \lambda^{-\alpha}$ , waarbij  $b_{abs}$  de gemeten absorptie is en  $\lambda$  de golflengte waarbij de absorptie gemeten is. Wanneer de golflengteafhankelijkheid van zwarte en bruine koolstof (black carbon en brown carbon) gekend is, kan het aandeel houtverbranding bepaald worden in een ongekend mengsel. Op basis van de gemeten absorptie bij verschillende golflengten (IR en UV) kan dan het aandeel houtverbranding tot BC (en PM<sub>10</sub>) worden bepaald. Dit noemt men de Aethalometer methode (Sandradewi et al., 2008 a,b). Figuur 6 geeft dit schematisch weer. Typische  $\alpha$ -waarden voor verkeer en houtverbranding bevinden zich respectievelijk rond 1 en 2 (zie Tabel 3).



Figuur 6: Schema dat de aanpak volgens de Aethalometer approach weergeeft, met  $b_{abs}$  in functie van golflengte en onderscheid tussen aerosol van WB (woodburning) en FF (fossil fuel) (Sandradewi et al., 2008 b)

Op basis van de gemeten absorptie bij 470 en 950 nm kan de  $\alpha$ -waarde voor een meting berekend worden via onderstaande formule.

$$\frac{b_{abs\ 470nm}}{b_{abs\ 950nm}} = \left(\frac{470nm}{950nm}\right)^{-\alpha}$$

De berekende  $\alpha$ -waarde is een rechtstreekse indicatie van het aandeel houtverbranding bij de meting: hoe verder deze afwijkt van 1 hoe meer houtverbranding. De Aethalometer geeft op basis van de berekende  $\alpha$ -waarde ook het % houtverbranding (%BB).

In de Aethalometer methode - ontwikkeld door Sandradewi et al. (2008 a,b) - wordt ervan uitgegaan dat de gemeten absorptie bij elke golflengte de som is van de absorptie door partikels afkomstig van houtverbranding en afkomstig van fossiele brandstoffen, waarbij deze elk een andere afhankelijkheid vertonen in functie van de golflengte (zie ook Figuur 6). Dit kan worden weergegeven in onderstaande formules:

$$b_{abs}(\lambda) = b_{abs}(\lambda)_{FF} + b_{abs}(\lambda)_{WB}$$

$$\frac{b_{abs\ 470nm,FF}}{b_{abs\ 950nm,FF}} = \left(\frac{470nm}{950nm}\right)^{-\alpha(FF)}$$

$$\frac{b_{abs\ 470nm,WB}}{b_{abs\ 950nm,WB}} = \left(\frac{470nm}{950nm}\right)^{-\alpha(WB)}$$

Waarbij de coëfficiënten FF en WB respectievelijk verwijzen naar fossiele brandstoffen (FF) (voornamelijk verkeer) en houtverbranding (WB of BB).

Wanneer literatuurwaarden voor alpha (voor houtverbranding en fossiele brandstoffen) worden ingevuld in bovenstaande vergelijkingen kan het aandeel houtverbranding aan BC worden afgeleid. De laatste versie van de software van de AE33 gebruikt golflengte 950 en 470 nm om % houtverbranding (%BB) te berekenen.

Tabel 3 geeft een overzicht van de waarden gebruikt in de literatuur. Een sensitiviteitsanalyse uitgevoerd door Fuller et al. (2014) resulteerde in  $\alpha_{FF} = 0,96$  en  $\alpha_{WB} = 2,0$ , zeer dicht bij de waarden (1 en 2) die in de AE33 gebruikt worden. Bij een  $\alpha_{FF}$ -waarde van 0,96 resulteerde een wijziging van  $\pm 10\%$  in  $\alpha_{WB}$  in een verandering van de inschatting van  $PM_{WB}$  van  $-10\%$  en  $+16\%$ . Een wijziging van  $\pm 10\%$  in  $\alpha_{FF}$  gaf aanleiding tot een grotere verandering van  $PM_{WB}$ , met name  $+20\%$  en  $-26\%$ .

In deze studie worden verder  $\alpha_{FF} = 1$  en  $\alpha_{WB} = 2$  ( $=\alpha_{BB}$ ) gebruikt. Dit resulteert in

$$\frac{b_{abs\ 470nm,FF}}{b_{abs\ 950nm,FF}} = \left(\frac{470nm}{950nm}\right)^{-1} = 2,021$$

$$\frac{b_{abs\ 470nm,WB}}{b_{abs\ 950nm,WB}} = \left(\frac{470nm}{950nm}\right)^{-2} = 4,084$$

Tabel 3: Overzicht van gebruikte  $\alpha$ -waarden voor houtverbranding en fossiele brandstoffen uit de literatuur

| Referentie               | $\alpha_{FF}$ | $\alpha_{WB}$ |                   |
|--------------------------|---------------|---------------|-------------------|
| Sandradewi et al. (2008) | 1,1           | 1,8-,1,9      | bij 470 en 950 nm |
| Herich et al. (2011)     | 0,9           | 1,9           | bij 470 en 880 nm |
| Fuller et al. (2014)     | 0,96          | 2,0           | bij 370 en 880 nm |
| Harrison et al. (2012)   | 1,05          | 2,0           | bij 470 en 950 nm |
| interne software AE33    | 1             | 2             | bij 470 en 950 nm |

### → Bijdrage houtverbranding aan BC

Het % houtverbranding (%BB) wordt ook door de toestelsoftware berekend en op basis daarvan kan rechtstreeks het aandeel houtverbranding aan BC bepaald worden:

$$BC_{WB} = BC_{950,WB} = \%BB * BC(950)$$

Dit komt op hetzelfde neer als de  $b_{abs,950}$  te delen door de MAC(950) (zie laatste formule in 3.7.1).

We kiezen hier voor  $BC_{950}$  (ofwel BC gemeten bij 950 nm) omdat de toestelsoftware het % BB berekend op basis van deze golflengte en 450 nm. Bovendien is er weinig verschil tussen BC gemeten bij 880 nm en 950 nm. Op deze manier kan  $BC_{WB}$  eenvoudig berekend worden uit de parameters die door het toestel worden weergegeven.

### → Bijdrage houtverbranding aan PM

Zoals eerder gezegd is houtverbranding vooral verantwoordelijk voor zogenaamd 'brown carbon' (BrC), wat een grotere bijdrage heeft in PM dan black carbon (BC) afkomstig van houtverbranding. De gemeten  $b_{abs,470,WB}$  kan daarom ook gebruikt worden als tracer voor totaal PM van houtverbranding. In de literatuur werd  $b_{abs,470,WB}$  (of  $b_{abs,370,WB}$ ) reeds gebruikt als tracer voor houtverbranding (Sandradewi et al., 2008 a,b; Favez et al., 2009; Sciare et al., 2011; Fuller et al., 2014).

De massa PM afkomstig van houtverbranding kan berekend worden door  $b_{abs,470,WB}$  te vermenigvuldigen met een specifieke factor die de absorptiesterkte per massa houtverbrandingspolluent (zogenaamde brown carbon) bij deze golflengte weergeeft. Dit kan gebeuren door:

- Gebruik van literatuurwaarden voor deze factor
- Deze factor af te leiden op basis van simultane metingen van koolstofhoudend aerosol en regressie-analyse

*Voor een eerste inschatting van  $PM_{WB}$  op basis van de Aethalometermethode werden literatuurwaarden gebruikt. Op basis van  $b_{abs,470,WB}$  ( $m^{-1}$ ) wordt de hoeveelheid PM afkomstig van houtverbranding berekend door te vermenigvuldigen met de factor  $675\ 000\ \mu g\ m^{-2}$ . Deze factor werd ook door Fuller et al. (2014) afgeleid op basis van een aantal literatuurwaarden. Literatuurwaarden voor deze factor ( $C_2$ ) zijn weergegeven in*

Tabel 4.

Indien EC/OC metingen beschikbaar zijn kan de bijdrage van deze factor ook geschat worden door regressie tussen de hoeveelheid OM (organic matter) - bepaald uit EC en OC-metingen - enerzijds, en de  $b_{abs,950,FF}$  en  $b_{abs,470,WB}$  die afgeleid werden uit de vergelijking van Sandradewi et al. (2008) anderzijds.

### **Bepalen aandeel houtverbranding in PM**

De totale hoeveelheid koolstofhoudend aerosol ( $CM_{\text{totaal}}$ ) is de som van koolstofhoudend materiaal afkomstig van houtverbranding ( $CM_{\text{FF}}$ ), fossiele brandstoffen ( $CM_{\text{WB}}$ ) en organisch materiaal afkomstig van niet-verbrandingsoorsprong (de zogenaamde restfractie,  $OM_{\text{residual}}$ ):

$$CM_{\text{totaal}} = CM_{\text{FF}} + CM_{\text{WB}} + OM_{\text{residual}} \quad (\text{a})$$

De totale hoeveelheid koolstofhoudend aerosol ( $CM_{\text{totaal}}$ ) kan bepaald worden op basis van gemeten EC en OC, waarbij OC dan omgezet wordt naar organische massa (OM) via factor  $f_{\text{OC-OM}}$ .

Dit kan via volgende vergelijking weergegeven worden:

$$CM_{\text{totaal}} = EC + OM = EC + f_{\text{OC-OM}} \times OC \quad (\text{b})$$

Zowel PM-uitstoot van fossiele verbrandingsprocessen als van houtverbranding bevatten elementair koolstof en organisch materiaal. In sommige studies wordt BC gebruikt om de EC-concentratie in te schatten.

Wanneer via de Aethalometermethode de absorptiecoëfficiënt voor hout en verkeer ( $b_{\text{abs},950,\text{FF}}$ ,  $b_{\text{abs},4750,\text{WB}}$ ) bepaald zijn en  $CM_{\text{totaal}}$  bepaald is uit de metingen van OC/EC via (b), kan de hoeveelheid aerosol afkomstig van houtverbranding ( $CM_{\text{WB}}$ ) bepaald worden via onderstaande regressie waarbij  $C_1 - C_3$  afgeleid worden:

$$CM_{\text{totaal}} = C_1 \times b_{\text{abs},950,\text{FF}} + C_2 \times b_{\text{abs},470,\text{WB}} + C_3$$

#### **Opmerking:**

In sommige studies wordt de  $C_1$  vast gehouden en  $C_2$  afgeleid. Sommige studies stellen  $C_3 = 0$ .

Tabel 4: Literatuurwaarden voor  $C_1$ ,  $C_2$  en  $C_3$ 

| Referentie                | C ( $\mu\text{g}/\text{m}^2$ )   | opmerkingen  |
|---------------------------|--|--|
| Favez et al. (2009, 2010) | $C_1$ : 264895<br>$C_2$ : 724256<br>$C_3 = 0$                            | $\alpha_{\text{FF}} = 1,1$<br>$\alpha_{\text{WB}} = 2$   |
| Sandradewi et al. (2008)  | $C_1$ : 258831<br>$C_2$ : 700411<br>$C_3 = 0$                            | $\alpha_{\text{FF}} = 1,1$ ; $\sigma^* = 16,6 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ (880 nm)<br>$\alpha_{\text{WB}} = 2$<br>(variatie $\alpha_{\text{WB}} = 1,6 - 2,1$ resulteert in $C_2$ :<br>486861 – 745054 $\mu\text{g}/\text{m}^2$ ) |
| Sciare et al. (2011)      | $C_1$ : 261600<br>$C_2$ : 54100<br>$C_3$ : 53600                         | $\alpha_{\text{FF}} = 1,1$<br>$\alpha_{\text{WB}} = 2,0$   |
| Harrison et al. (2012)    | $C_1 = 260000$<br>$C_2 : 632420$<br>$C_3 : 1,331 \mu\text{g}/\text{m}^3$ | $\alpha_{\text{FF}} = 1,05$ ( $\alpha_{\text{FF}} = 1,0$ gaf geen goede resultaten)<br>$\alpha_{\text{WB}} = 2,0$<br>met variabele $C_1$ werden vergelijkbare resultaten bekomen   |
| Fuller et al. (2014)      | gebruikte waarde ( $C_2$ )<br>675000 $\mu\text{g m}^{-2}$                | $\alpha_{\text{FF}} = 1,0$<br>$\alpha_{\text{WB}} = 2,0$<br>sensitiviteitsanalyses   |

\*  $\sigma = \text{MAC} \times \text{multiple scattering factor (C)}$

**Sciare et al. (2011)** bepaalden eerst de MAC bij 950 nm op basis van de correlatie tussen de  $\text{BC}_{950}$ -waarde van de Aethalometer en de EC-concentratie gemeten met de OCEC field analyser (met NIOSH protocol) op basis van uurgemiddelde waarden. Dit resulteerde in een gemiddelde MAC van  $7,3 \pm 0,1 \text{ m}^2/\text{g}$ . Ze stelden een temporele variatie vast van de MAC ( $4 - 10 \text{ m}^2/\text{g}$ ) maar vonden geen duidelijk verband tussen MAC en relatieve bijdrage van houtverbranding (hier voorgesteld als alpha) waarbij ze besluiten dat de variatie niet te wijten is aan verschil in bijdrage van verbrandingsbronnen maar veroorzaakt wordt door veroudering van aerosol waarbij roetdeeltjes omhuld worden met organische en anorganische componenten. Bijgevolg wordt dezelfde MAC gebruikt voor BC van beide bronnen bij 950 nm ( $\text{BC}_{950,\text{FF}}$  en  $\text{BC}_{4750,\text{WB}}$ ). De factor  $C_1$  wordt als volgt afgeleid:

$$\text{CM}_{\text{FF}} = \text{EC}_{\text{FF}} + \text{OM}_{\text{FF}}$$

$$= \text{EC}_{\text{FF}} + (f_{\text{OC-OM}} \times (\text{OC}/\text{EC})_{\text{FF}}) \times \text{EC}_{\text{FF}}$$

$$= (1 + f_{\text{OC-OM}} \times (\text{OC}/\text{EC})_{\text{FF}}) \times \text{EC}_{\text{FF}} = (1 + f_{\text{OC-OM}} \times (\text{OC}/\text{EC})_{\text{FF}}) / \text{MAC}_{950} \times b_{\text{abs},950,\text{FF}} = C_1 \times b_{\text{abs},950,\text{FF}}$$

$$\text{Zodat } C_1 = (1 + f_{\text{OC-OM}} \times (\text{OC}/\text{EC})_{\text{FF}}) / \text{MAC}_{950}$$

Waarbij volgende aannames worden gedaan:  $(\text{OC}/\text{EC})_{\text{FF}} = 0,70$  (op basis van metingen in de zomer) en  $f_{\text{OC-OM}} (= \text{OM}/\text{OC}) = 1,3$



Op basis van deze assumpties werd door Sciare et al. (2011) een  $C_1$  – waarde van  $261600 \mu\text{g}/\text{m}^3$  afgeleid.

**Sandradewi et al. (2008)** bepaalden de hoeveelheid  $CM_{\text{totaal}}$  als som van OM (op basis van metingen met AMS) en EC (op basis van BC metingen en veronderstelde  $\sigma$  van  $16,6 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$  (bij 880 nm)). Via een alternatieve methode bepaalden Sandradewi et al. (2008) ook  $CM_{\text{totaal}}$  (in  $PM_{10}$ ) door ervan uit te gaan dat  $PM_{10}$  enkel bestaat uit OM en anorganische componenten (ammoniumnitraat en ammoniumsulfaat). Ze vonden een goede overeenkomst voor beide methoden. Ze stelden  $C_3 = 0$  en deze assumptie werd later bevestigd door de goede overeenkomst tussen de tijdseries van  $PM_{\text{FF}}+PM_{\text{WB}}$  en  $OM+BC$ . Ze hebben zich gebaseerd op de  $PM_{10}$  fractie. Voor de berekening van OM gebruikten ze  $f_{\text{OC-OM}}$  factor van 2,25 voor WB en 1,4 voor FF. Ze gebruiken ook een factor EM/EC van 1,1 (bij Sciare was deze 1).

**Harrison et al. (2012)** gebruikten ook drie termen voor de regressie-analyse. Ze voerden eerst een analyse uit met  $\alpha_{\text{FF}} = 1,0$  en  $\alpha_{\text{WB}} = 2,0$  en een vaste waarde voor  $C_1 = 260000$ . Omdat de waarden niet realistisch waren deden ze een herberekening met  $\alpha_{\text{FF}} = 1,05$  en  $\alpha_{\text{WB}} = 2,0$  en een vaste waarde voor  $C_1 = 260000$ . Dit resulteerde in  $C_2 : 632420$  en  $C_3 = 1,331 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Met variabele  $C_1$  werden vergelijkbare resultaten bekomen. Wanneer ze winter- en zomerdata apart behandelden vonden ze eenzelfde waarde voor  $C_2$  maar verschillende waarden voor  $C_3$ , respectievelijk 0,619 in de winter en 2,74 in de zomer. Uiteindelijk lagen de ingeschatte PM van WB nog veel hoger dan via de tracermethode maar de profielen waren wel logisch. Ze geven echter geen absolute waarden van de vergelijking van beide methoden maar stellen dat de Aethalometermethode mogelijk een overschatting geeft, veroorzaakt door andere dan houtverbrandingsgerelateerde UV-absorberende componenten. In een recentere publicatie (Harrison et al. 2013) voeren ze een sensitiviteitsanalyse uit voor  $\alpha_{\text{FF}}$  (0,9 – 1,1) en  $\alpha_{\text{WB}}$  (1,8 – 2,2), wat resulteerde in een bijdrage van houtverbranding aan PM op een landelijke locatie van  $1,50 - 3,37 \mu\text{g m}^{-3}$ , waarbij beide parameters een invloed hadden op het bekomen resultaat. Harrison gebruikte voor de berekeningen een  $f_{\text{OC-OM}}$  factor van 1,8 als een gemiddelde van verschillende literatuurwaarden.

**Favez et al. (2009)** veronderstelden een conversiefactor  $f_{\text{OC-OM}}$  van respectievelijk 1,4 voor wateronoplosbaar OC en 2,1 voor wateroplosbaar OC. Ze vonden een WSOC/OC-ratio van 0,35. Ze bepaalden de bijdrage van PM aan houtverbranding ook op basis van regressie met twee termen. Ze vonden een gemiddelde  $\alpha = 1,25 \pm 0,11$  in de winter en  $1,07 \pm 0,04$  in de zomer. Ze vonden ook een goede correlatie tussen  $\alpha_{370-950}$  en OC/EC. Op basis van bovenstaande stellen we vast dat er een aantal assumpties gemaakt moeten worden voor de bepaling van de factor  $C_2$  om  $PM_{10, \text{WB}}$  af te leiden. Deze assumpties leiden ook bij deze aanpak tot een relatief grote onzekerheid op de uiteindelijke inschatting.

#### → Bepaling bijdrage houtverbranding in deze studie op basis van regressie met koolstofhoudend aerosol

In deze studie kunnen we de MAC bepalen op basis van correlatie tussen EC en  $b_{\text{abs},950}$ . De correlatie tussen EC en BC(950) (zie verder) is echter niet zo goed en enkel gebaseerd op een 'beperkt' aantal punten per locatie (met name 15). Daarom gaan we hier in eerste instantie uit van een toestelwaarde  $7,19 \text{ m}^2/\text{g}$ , welke goed overeen komt met de waarde bepaald door Sciare et al. (2011). Sandradewi et al. (2008) gebruiken BC-waarden met  $\sigma = 16,6 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$  (880 nm).

De totale hoeveelheid koolstofhoudend aerosol kan berekend worden als:

$$CM_{\text{totaal}} = EC + OM = EC + 1,4 \times OC$$

Hierbij passen we een factor  $f_{\text{OC-OM}}$  van 1,4 toe die ook in de Chemkar-studies worden gebruikt. Mogelijk is deze factor aan de lage kant. De berekening werd ook uitgevoerd met een hogere factor

$f_{OC-OM} = 1,8$ . Ook in de literatuur worden eerder hogere factoren gebruikt (vb. Sandradewi et al. (2008), Harrison et al. (2013)).

Wanneer we veronderstellen dat  $(OC/EC)_{FF} = 0,70$  en  $f_{OC-OM} = 1,3$  (aannames van Sciare et al, 2011) en de MAC uit de toestelinstellingen gebruiken, komen we uit op  $C_1 = 266000 \mu\text{g m}^{-2}$ .

Močnik et al. (2011) stellen een vaste  $C_1$ -waarde voor van  $290000 \mu\text{g m}^{-2}$ . Ze gebruiken  $(OC/EC)_{FF} = 1$  en  $f_{OC-OM} = 1,8$ , wat bijgevolg een vergelijkbare waarde oplevert voor  $C_1$  als de hier gebruikte vaste waarde van Sciare et al. (2011).

### 3.7.3. VOORAFGAANDE VERGELIJKING AE33

De AE33 werd vooraf vergeleken in het labo en na de meetcampagne, ingebouwd in een behuizing. Uit de vergelijking vooraf bleek dat een van de Aethalometers (AE169) een lichte afwijking had. Omdat de behuizingen niet identiek zijn en om eventuele verschillen te wijten aan de samplingleidingen in rekening te brengen, werden de toestellen na het beëindigen van de meetcampagne vergeleken op het VITO-domein (locatie E). Deze vergelijking werd gebruikt om een correctiefactor te bepalen voor het afwijkende toestel. De vergelijkende metingen werden uitgevoerd met de AE33\_81 als referentie en de resultaten zijn weergegeven in Tabel 5. In de tabel zijn de helling weergegeven voor een regressie met intercept (I) = 0.

Figuur 7 toont de opstelling tijdens het vergelijken van de meettoestellen. De vergelijking werd uitgevoerd gedurende meer dan twee weken van 1/2/2016 14:30h tot 18/02/2016 11:00h ter hoogte van locatie E.



Figuur 7: Opstelling tijdens de vergelijkende metingen op locatie E na de meetcampagne

Voor en na de meetcampagne werd een van de toestellen (AE33\_81) gecontroleerd met neutral density filters om de reproduceerbaarheid van de fotodetector na te gaan. De ND (Neutral Density) kit (Figuur 8) bestaat uit een set van 4 metalen houders die elk twee elementen absorberend glas

bevatten in verschillende donkerheden. De absorptie van de glas-elementen is terug te brengen tot primaire fotometrische standaarden.

Hier worden ze gebruikt om na te gaan of de respons van het optisch gedeelte onveranderd is tussen begin en einde. De software berekent de verhouding van de regressielijn van huidige ten opzichte van vorige meting. Deze moet dicht bij 1 liggen. De testresultaten gaven een verhouding tussen 0,998 – 1,005. Dit betekent dat het lichtsignaal gemeten door de detector in het slechtste geval 0,5% afwijkt ten opzichte van bij de start van de metingen.



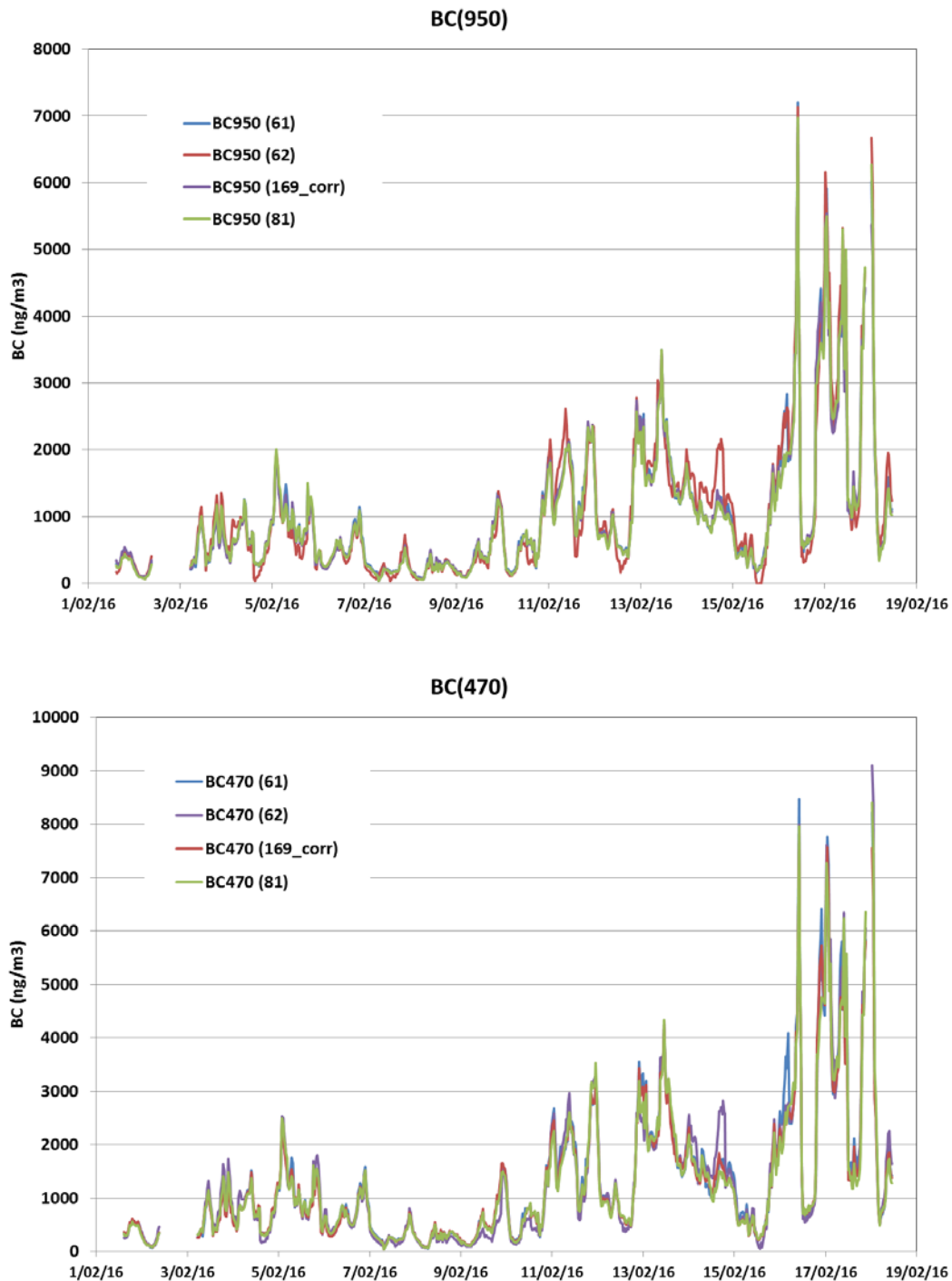
*Figuur 8: Neutral density kit gebruikt bij de verificatie van de detector (van AE33\_81) voor en na de meetcampagne.*

*Tabel 5: Regressieresultaten vergelijkende metingen ten opzichte van AE33\_81*

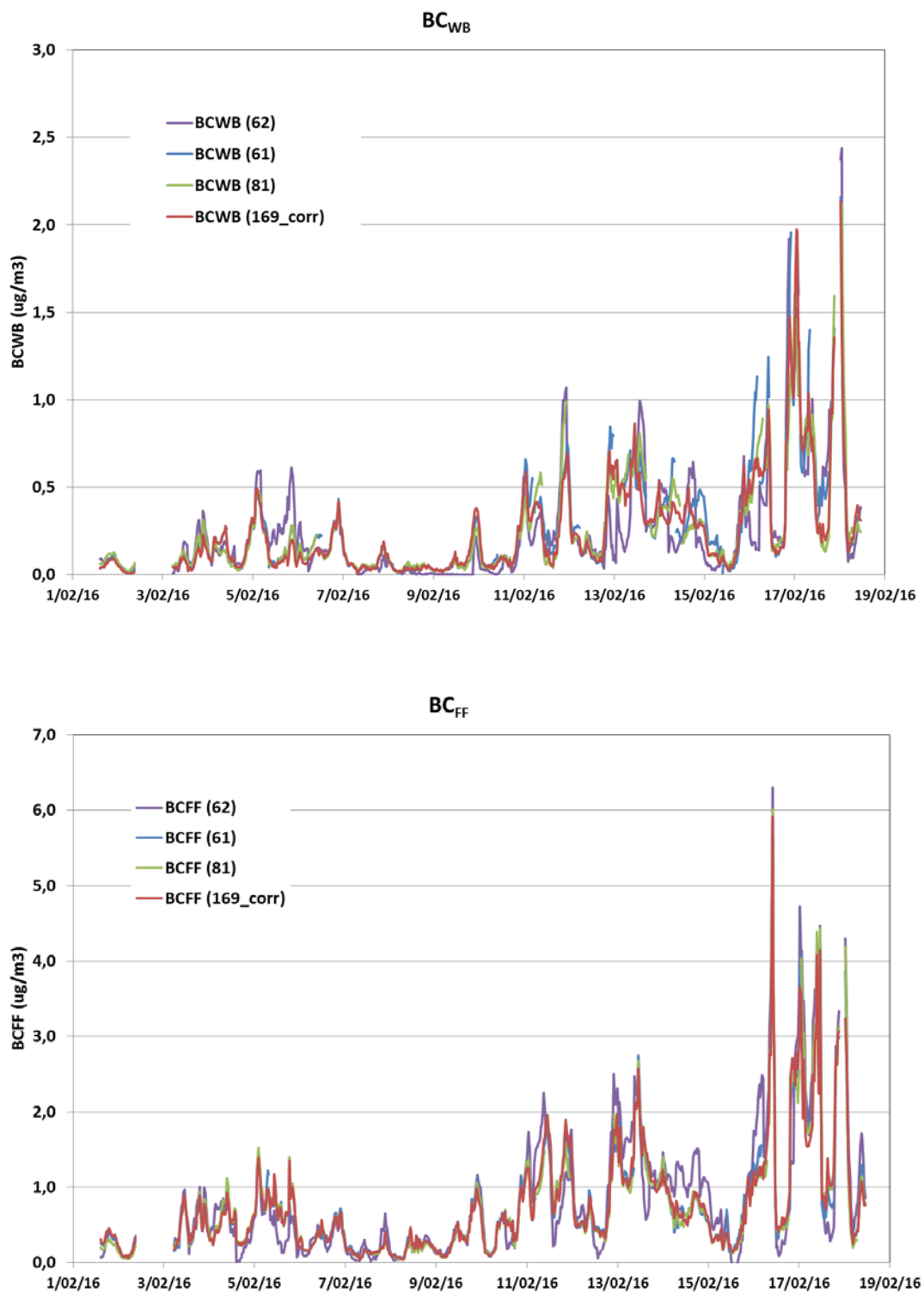
|         | <b>AE33_61<br/>helling (I=0)</b> | <b>AE33_62<br/>helling (I=0)</b> | <b>AE33_169<br/>helling (I=0)</b> |
|---------|----------------------------------|----------------------------------|-----------------------------------|
| BC(370) | 1,009                            | 1,007                            | 0,816                             |
| BC(470) | 1,039                            | 1,035                            | 0,823                             |
| BC(520) | 1,041                            | 1,054                            | 0,821                             |
| BC(570) | 1,028                            | 1,055                            | 0,819                             |
| BC(660) | 1,032                            | 1,056                            | 0,828                             |
| BC(880) | 1,011                            | 1,042                            | 0,827                             |
| BC(950) | 1,028                            | 1,059                            | 0,826                             |

Op basis van de vergelijkende metingen (met toestel AE33\_81 als referentie) werd een correctiefactor toegepast van 0,82 voor AE33\_169. De gecorrigeerde waarden gedurende de simultane metingen zijn weergegeven in Figuur 9 voor BC(470) (of BC<sub>470</sub>) en BC(950) (of BC<sub>950</sub>) en in Figuur 10 voor BC<sub>WB</sub> en BC<sub>FF</sub>. De profielen komen over het algemeen goed overeen en we zien geen systematische afwijking (na correctie voor toestel 169). Toch is op bepaalde momenten voor BC<sub>WB</sub> en BC<sub>FF</sub> het verschil vrij groot als we de data op 30-minuutwaarden evalueren. De gemiddelde

waarde is weergegeven in Tabel 6. Hierop zien we dat de inschatting van  $BC_{FF}$  over de ganse periode vrij goed overeenkomt tussen de toestellen. De afwijking ten opzichte van de gemiddelde waarde bedraagt maximaal 6% voor  $BC_{WB}$  en 7% voor  $BC_{FF}$ .



Figuur 9: Tijdstrends voor gecorrigeerde BC metingen tijdens de vergelijking voor BC(950) (boven) en BC(470) (onder)



Figuur 10: Tijdstrends voor gecorrigeerde metingen tijdens de vergelijking voor  $BC_{WB}$  (boven) en  $BC_{FF}$  (onder)

Tabel 6: Gemiddelde waarden voor  $BC_{FF}$  en  $BC_{WB}$  gedurende de vergelijkende metingen (1/2/16 – 19/2/16) uitgevoerd na afloop van de meetcampagne

|  | 61<br>(locatie A) | 62<br>(locatie C) | 81<br>(locatie E) | 169_corr<br>(locatie B) |
|--|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------------|
| $BC_{WB}$ ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) | 0,263             | 0,240             | 0,247             | 0,245                   |
| $BC_{FF}$ ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) | 0,725             | 0,799             | 0,719             | 0,737                   |

### 3.8. BEPALING VAN ALDEHYDEN

Aldehyden worden geassocieerd met hinder, deze gassen zorgen voor irritatie van ogen, neus en keel. Metingen van aldehyden gebeurden in deze studie aan de hand van passieve sampling (weekgemiddelde) en on-line metingen (tijdstrends).

#### 3.8.1. BEPALING VAN ALDEHYDEN MET PASSIEVE SAMPLERS

Passieve sampling van aldehyden gebeurde op elk van de locaties (4) aan de hand van passieve samplers (UMEx1000, SKC) met een bemonsteringsduur van 1 week. Deze werden gedurende de ganse meetperiode uitgevoerd waarvan vier weken werden geselecteerd voor analyse. Deze sampler is ook gebruikt in andere VITO-studies zoals Clean Air low Energy, Stranger et al. (2012). Daarom werd beslist om UMEx-samplers te gebruiken in plaats van Radiello.

De werking van deze sampler is gebaseerd op chemisorptie, waarbij aldehyden met dinitrofenylhydrazine (DNPH) reageren. Na de bemonstering worden de aldehyden met acetonitrile geëxtraheerd en met LC-UV op VITO geanalyseerd.

In het kader van SINPHONIE (Schools Indoor Pollution and Health) werd een vergelijking gemaakt van de hier gebruikte UMEx sampler en de Radiello (centraal labo). Het verschil met het centraal labo bedroeg  $1,46 \mu\text{g}/\text{m}^3$  en voldeed ruimschoots aan de aanvaardbaarheids grenzen van de inter-labo vergelijking (afwijking  $< 2 \times \sqrt{2}$  STDEV). (SINPHONIE, 2009)

#### 3.8.2. BEPALING VAN ALDEHYDEN MET SIFT-MS

Tijdens de eerste vier weken werd ook een SIFT-MS (Selected Ion Flow Tube-Mass Spectrometry) gebruikt op een van de locaties om na te gaan wat het patroon is van aldehyden in functie van de tijd (SYFT Technologies, type Voice 200, Prince et al. (2010), Smith and Spanel (2005)).

SIFT-MS is een kwantitatieve massaspectrometrische techniek voor gas-analyse, gebaseerd op chemische ionisatie van vluchtige componenten via geselecteerde positieve precursorionen gedurende een welbepaalde tijdsperiode in een flow-tube.

Absolute concentraties in de lucht kunnen berekend worden uit de ratio van de precursoren en signaalverhoudingen van verschillende productionen. Het toestel werd na afloop van de meetcampagne gekalibreerd voor de geselecteerde componenten. Op basis hiervan werd het terugvindingspercentage berekend. Toch is het mogelijk dat we interferentie hebben van andere componenten die aanleiding geven tot dezelfde fragmenten. De kalibratie gebeurde met zuiver gasvormige componenten en houdt hiermee geen rekening. Tijdens de meetcampagne werd op regelmatige basis een controle uitgevoerd waarbij de MS getuned werd en de respons werd bijgesteld op basis van een kalibratiemengsel. Het gasmengsel dat hiervoor gebruikt werd bevat ethylbenzeen, hexafluorobenzeen, ethyleen, octafluorotolueen, benzeen en isobutaan. Controles met het kalibratiemengsel werden uitgevoerd bij de opstart op 3/12/15 en op 8/12/15, 15/12/15

en 23/12/15. Omdat het de bedoeling was om enkel gedurende 4 weken te meten werden daarna geen kalibraties meer uitgevoerd. Het toestel heeft nog wel verder gemeten tot het einde van de meetcampagne. Na het beëindigen van de meetcampagne werden kalibraties uitgevoerd met acroleïne en formaldehyde. De respectievelijke terugvindingspercentages bedroegen 59,7% voor acroleïne en 36,4% voor formaldehyde. Dit is vrij laag en bovendien lijkt het erop dat de gevoeligheid op het einde van de campagne is afgenomen (zie resultaten). De data moeten daarom ook eerder als kwalitatief beschouwd worden om tijdstrends te bekijken. Voor toluëen en benzeen (die op hetzelfde ogenblik werden gekalibreerd) lagen de terugvindingspercentages wel hoger, met name 96,1% en 84,7%.

### 3.9. METING VAN LEVOGLUCOSAN EN BEPALING AANDEEL HOUTVERBRANDING MET DE TRACERMETHODE

#### 3.9.1. LEVOGLUCOSAN EN ANDERE TRACERS

Een manier om het aandeel houtverbranding te bepalen is op basis van de gemeten concentratie levoglucosan. Levoglucosan is een pyrolyseproduct van cellulose dat gevormd wordt bij verbranding en is een van de meest gebruikte merkers voor houtverbranding. Ook binnen Chemkar III en Chemkar IV werd levoglucosan gebruikt als tracer voor houtverbranding. (VMM, 2011 en VMM,2013)

Naast levoglucosan werden ook de isomeren mannosan en galactosan gebruikt als tracers van houtverbranding. De verhouding levoglucosan/mannosan (L/M) geeft een indicatie van het gebruikte hout.

#### 3.9.2. ANALYSEMETHODE VOOR LEVOGLUCOSAN EN ISOMEREN

In deze studie was de analyse van 15 filters voorzien op elk van de 4 locaties, met een totaal van 60 filters. De filterselectie is beschreven in 5.2.2. De analyses werden uitgevoerd door de Universiteit van Leicester.

De gebruikte analysemethode is extractie met methanol (1,5 mL), derivatisatie door trimethylsilylatie en analyse met GC-MS (Cordell et al., 2014). Als interne standaard werd methyl  $\beta$  D xylopyranoside gebruikt.

In Cordell et al. (2014) wordt de validatie van de gebruikte methode beschreven. De recovery was 90% voor levoglucosan en 70% voor de isomeren galactosan en mannosan. Er werd gebruik gemaakt van een extractie met methanol, terwijl andere labo's vaak extractie doen met dichloormethaan/methanol (80:20) (o. a. Kos and Weijers, 2009; Pashynska et al., 2002). In hun vergelijkende studie gaf de extractiemethode met methanol hogere recoveries voor levoglucosan en vergelijkbare voor mannosan en iets lagere voor galactosan. De LLOQ (lower limit of quantification: 5 keer respons van blanco) was respectievelijk 0,21 en 1,05 ng/m<sup>3</sup> voor levoglucosan en galactosan/mannosan. De limit of detection (LOD) was 0,105 ng/m<sup>3</sup>. De methode werd vervolgens getest op omgevingsamples waarbij een punch van 1 cm<sup>2</sup> genomen werd van een 47 mm Quartzvezel filter (Pall Tissuquartz™, 2500 QAT-UP) welke bemonsterd werd met een low-volume sampler SEQ47/50-CD (Leckel) met een sampledebiet van 2,3 m<sup>3</sup>/h. De filter en sampler zijn dezelfde als gebruikt in deze studie. In een recente publicatie van Caumo et al. (2016) wordt ook extractie van methanol gebruikt (3 keer met 10 mL).

In het kader van ACTRIS werd een inter-laboratoriumvergelijking uitgevoerd voor de analyse van

levoglucosan en zijn isomeren waarbij een 1,0 cm<sup>2</sup> punch werd geanalyseerd. (Verlhac et al., 2013) Hieraan namen 13 laboratoria deel. Hieruit bleek dat labo's die GC-MS als detectietechniek gebruiken over het algemeen een lagere LOQ (Limit of quantification) hebben. In deze inter-laboratoriumvergelijking werd een betere overeenkomst gevonden tussen verschillende technieken voor levoglucosan en mannosan in vergelijking met galactosan. Het rapport geeft geen details over de gebruikte extractiemethode.

In een latere publicatie van Yttri et al. (2015) worden LODs voor GC-MS gerapporteerd tussen 0,02 – 0,05 ng/m<sup>3</sup>. De LOD werd berekend voor een bemonsterd volume van 55,2 m<sup>3</sup> en een filteroppervlak van 12 cm<sup>2</sup>.

Ook andere scheidings- en detectiemethoden worden gebruikt. Caseiro et al. (2007, 2009) gebruikten HPAEC-PAD (high-performance anion-exchange chromatography – pulsed amperometric detection). De extractie gebeurt met ultra puur water. In de inter-laboratoriumvergelijking heeft deze techniek over het algemeen een iets hogere LOQ.

### 3.9.3. BEPALING AANDEEL HOUTVERBRANDING VIA DE TRACERMETHODE (LEVOGLUCOSAN)

Voor de bepaling van het aandeel houtverbranding in PM<sub>10</sub> en OC (organic carbon) werd gebruik gemaakt van literatuurwaarden. Het is gekend dat de verhouding levoglucosan (L) in PM afhangt van het soort hout. Zo vonden Bari et al. (2009) een factor van 10,7 mg L/g PM voor zacht hout en 22,87 mg L/g PM voor hard hout.

In deze studie maken we gebruik van de factoren 5,59 en 10,7 voor respectievelijk OC en PM, die ook eerder door Maenhaut et al. (2012) gebruikt werden en gebaseerd zijn op een studie van Schmidl et al. (2008). Het aandeel hout kan bepaald worden als volgt:

**OC (hout) = 5,59 x levoglucosan**  
**PM (hout) = 10,7 x levoglucosan**

Deze waarden zijn gebaseerd op een Oostenrijkse studie. (Schmidl et al., 2008; Caseiro et al., 2009) Op basis van dezelfde gegevens wordt voor OC een conversiefactor van 6,1 voorgesteld (Caseiro et al. 2009). Deze ligt iets hoger dan de waarde van **5,59** gebruikt door Maenhaut et al. (2012).

We zijn ons bewust van de onzekerheid van deze factor maar om een vergelijking met de Chemkar-studies mogelijk te maken houden we dezelfde methodologie aan als door VMM eerder gebruikt in de Chemkar-studies.

Het nadeel van deze methode is dat ze gebaseerd is op een gemiddelde factor terwijl de emissiefactoren afhangen van type hout, gebruikte houtverbrandingsinstallatie en verbrandingscondities (Piazzalunga et al., 2011). Ook in deze studie werd een grote variatie van deze factor vastgesteld tijdens de uitgevoerde emissiemetingen (zie HOOFDSTUK 6). Een accuratere bepaling van de bijdrage houtverbranding kan daarom bekomen worden door kennis van type hout en verbrandingsinstallaties dat effectief gebruikt worden in de regio. (Caseiro et al, 2008; Piazzalunga et al., 2011)

Een ander probleem is dat de verhouding tussen PM en levoglucosan bij de emissies niet noodzakelijk representatief zijn voor de situatie in omgevingslucht waar het aerosol veroudert en aanleiding geeft tot bijkomende secundaire aerosolvorming. Secundaire aerosolen ontstaan in de atmosfeer uit gasvormige precursoren die in omgevingslucht verder reageren en/of condenseren en zo nieuwe deeltjes vormen of zich aan bestaande deeltjes hechten. Hierdoor verwachten we in omgevingslucht een hogere verhouding PM<sub>WB</sub>/L.



Door Bari et al. (2010) werd een andere methode toegepast. Ze bepaalden de gemiddelde massafractie van levoglucosan in  $PM_{10}$  op basis van lineaire regressie van gemeten levoglucosanconcentraties en  $PM_{10}$  in omgevingslucht. De aldus bepaalde massafractie was 3,7%. Dit vertaalt zich in een factor van 27,0 voor de berekening van  $PM_{10}$  afkomstig van houtverbranding op basis van levoglucosan (in vergelijking met de hier gebruikte factor 10,7). Met deze factor werd door Bari et al. (2010) de relatieve bijdrage van houtverbranding aan  $PM_{10}$  pollutie in de winter ingeschat op  $59 \pm 41\%$ .

In een recente publicatie van Maenhaut et al. (2016) werd ook ingeschat dat de huidige factor voor Vlaanderen te laag is en werd een nieuwe factor van 22,56 bepaald op basis van PMF. De aldus bepaalde factor is mogelijk aan de hoge kant omwille van secundaire aerosolvorming en eventuele afbraak van levoglucosan wanneer de bron verderaf gelegen is. Volgens Zang et al. (2010) zijn vooral hydroxylradicalen verantwoordelijk voor de afbraak van levoglucosan maar is dit proces niet belangrijk in wintermaanden wanneer fotochemie beperkt is.

Ook op basis van hier uitgevoerde emissiemetingen werd aangetoond dat de factor van 10,7 aan de lage kant is. Er is echter een verschil met immissiemetingen omdat in het geval van emissiemetingen de bijdrage van secundaire aerosolvorming beperkt is en daarnaast ook de afbraak van levoglucosan beperkt is.

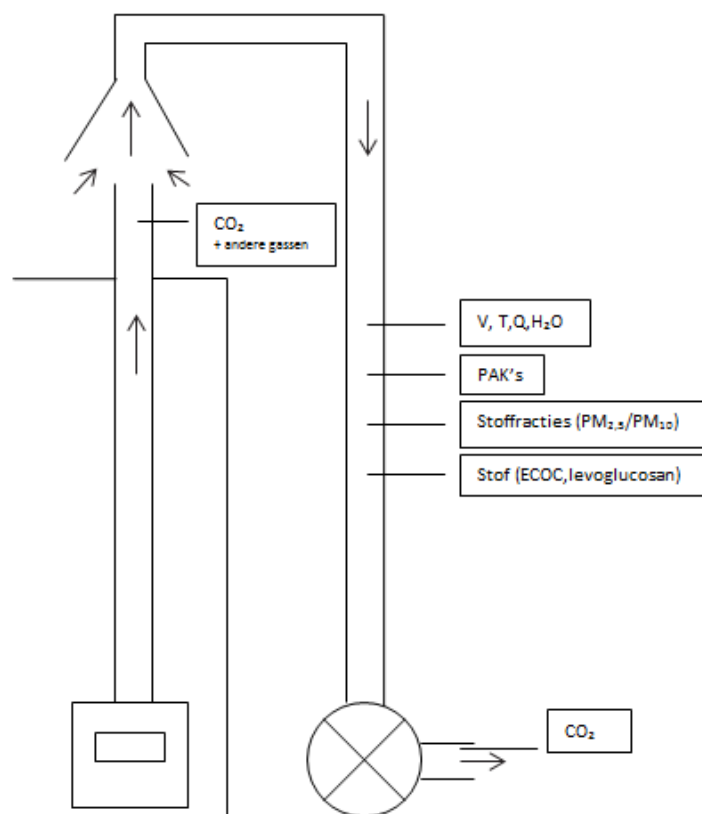
Als conclusie kunnen we dus stellen dat het gebruik van levoglucosan met een omrekeningsfactor PM/L van 10,7 waarschijnlijk leidt tot een schatting van de ondergrens van de bijdrage van houtverbranding aan  $PM_{10}$ .

## HOOFDSTUK 4. MEETOPZET EMISSIEMETINGEN

### 4.1. MEETOPSTELLING

De emissiemetingen werden uitgevoerd met behulp van een tijdelijke opstelling die door VITO is gemaakt (zie Figuur 11). De bemonsteringseenheid bestaat uit een trechter die boven de schouw van de woning wordt geplaatst en gekoppeld is aan kachelbuizen met een ventilator op het einde. De gasstroom werd via deze bemonsteringseenheid naar de begane grond geleid waar de metingen kunnen plaatsvinden. Op deze manier werd de volledige uitlaat van de schouw bemonsterd. Er werd ook omgevingslucht aangezogen. Om de verdunningsfactor te bepalen werd CO<sub>2</sub> gemeten in de schouw (onverdund) en in de verdunde uitlaat (in de bemonsteringseenheid voor de ventilator).

In de schouw werden volgende anorganische gassen bepaald : O<sub>2</sub> - CO<sub>2</sub> – SO<sub>2</sub> – NO – NO<sub>2</sub> en CO om de verbranding tijdens de meting op te volgen. Na de schouw werden volgende parameters bepaald: stoffractie (PM<sub>10</sub>-PM<sub>2,5</sub>) – totaal stofgehalte – PAK – CO<sub>2</sub> (verdund) – gassnelheid en temperatuur – watergehalte.



Figuur 11: Schematische voorstelling van de meetopstelling

### 4.2. MEETTECHNIEKEN

#### 4.2.1. DEBIET, TEMPERATUUR EN WATERGEHALTE

De bepaling van het afgasdebiet gebeurde conform de compendiumprocedure LUC/0/005 – LUC/0/004 – LUC/0/002 en volgens VITO-procedure MIM-LU-001: “Bepaling van het volumedebiet van een gas in een leiding met behulp van een pitotbuis”. Het afgasdebiet werd berekend door de gemiddelde snelheid te vermenigvuldigen met de oppervlakte van de doorsnede van het meetkanaal.

De differentieeldruk doorheen het meetkanaal werd gemeten met een geijkte Pitotbuis van het S-type, verbonden met een elektronische manometer. De bepaling van het aantal en de positie van de meetpunten in het meetkanaal is conform de norm NBN T95-001. Voor deze opstelling was 1 meetpunt voldoende.

De lokale afgassnelheid werd berekend volgens de formule  $v = \alpha \sqrt{\frac{2\Delta p}{\rho}}$

Waarbij  $v$  = gassnelheid in m/s

$\alpha$  = ijkfactor Pitotbuis

$\Delta p$  = drukverschil over de Pitotbuis in Pa

$\rho$  = volumemassa van het gas in kg/m<sup>3</sup> (berekend o.b.v. gehalte H<sub>2</sub>O, CO<sub>2</sub>, O<sub>2</sub> en T)

De temperatuurmeting gebeurde simultaan met de debietmeting en werd uitgevoerd met een thermokoppel (NiCr-Ni type K) dat op de Pitotbuis gemonteerd is.

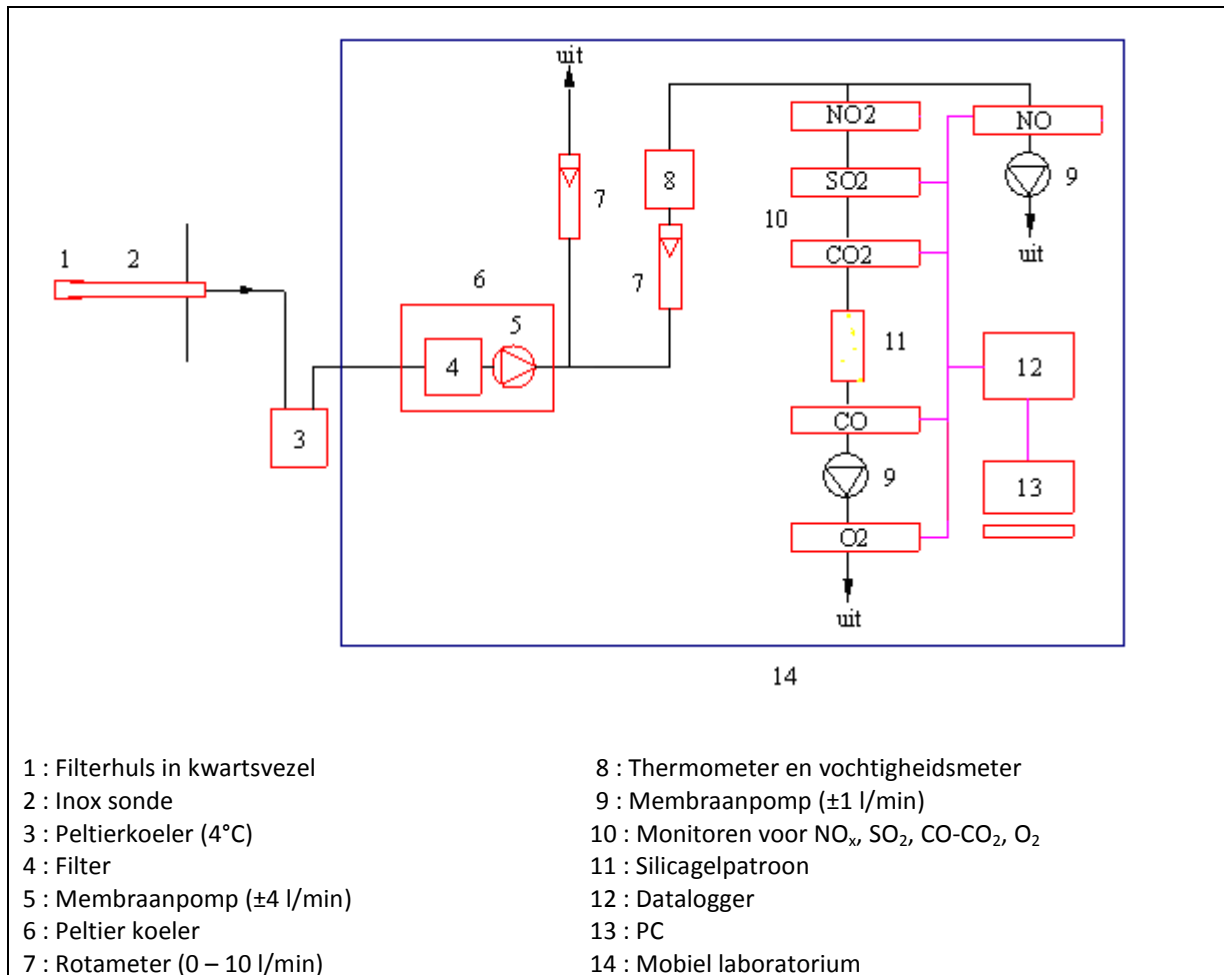
De bepaling van het watergehalte gebeurde conform de compendiumprocedure LUC/0/003 – LUC/0/005. Om het watergehalte te bepalen werd gedurende een half uur een hoeveelheid afgas met een debiet van 4 L/min aangezogen doorheen een voorgewogen lege wasfles en vervolgens doorheen een voorgewogen wasfles gevuld met silicagel (VITO-procedure MIM-LU-013: “Bemonstering van water in een gaskanaal” van het kwaliteitssysteem van de unit Milieurisico en gezondheid). De gewichtstoename van aanzuigsonde en beide wasflessen is een maat voor de waterinhoud van het gas.

#### 4.2.2. BEPALING VAN HET ZUURSTOFGEHALTE

De continue zuurstofmonitoring gebeurde conform de compendiumprocedure LUC/0/005 – LUC/II/001 en volgens VITO-procedure MIM-LU-008: “Bemonstering bij de continue bepaling van O<sub>2</sub>, CO, CO<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub> en NO<sub>x</sub> in een gaskanaal” en MIM-LU-003: “Continue bepaling van het zuurstofgehalte in een gaskanaal”. Deze procedure behoort tot het kwaliteitssysteem van de unit Milieurisico en Gezondheid.

Voor de zuurstofmeting werd het afgas aangezogen doorheen een inoxsonde en gedroogd door een Peltierkoeler die de temperatuur verlaagt tot ±4°C. Vervolgens werd het afgas via een teflonleiding naar de meetwagen geleid, gefilterd en volledig gedroogd door middel van een silicagelpatroon (Figuur 12). De gebruikte zuurstofmonitor is een paramagnetische monitor (M&C, type PMA 30), met een meetbereik van 0 tot 30%. De ijkingen van deze monitor gebeurden ter plaatse met stikstof en droge omgevingslucht.

De kalibratie en lineariteit van de monitor werden gecontroleerd met een onafhankelijk controlegas met concentratie ± 5,0 % O<sub>2</sub> in stikstof.



Figuur 12: Schema van de opstelling voor de bepaling van anorganische afgasen

#### 4.2.3. BEPALING VAN CO EN CO<sub>2</sub>

De continue bepaling van CO en CO<sub>2</sub> gebeurde conform de compendiumprocedure LUC/0/005 – LUC/II/001 en volgens VITO-procedure MIM-LU-008: “Bemonstering bij de continue bepaling van O<sub>2</sub>, CO, CO<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub> en NO<sub>x</sub> in een gaskanaal” en MIM-LU-004: “Continue bepaling van koolstofmonoxide en koolstofdioxide in een gaskanaal”. Deze procedure behoort tot het kwaliteitssysteem van de unit Milieurisico en Gezondheid. De gebruikte monitor (Siemens Ultramat 6 E) heeft een meetbereik voor CO van 0 tot 1500 ppm en voor CO<sub>2</sub> van 0 tot 30%. Het te analyseren afgas werd simultaan en via dezelfde inoxsonde en teflonleiding aangezogen als voor de zuurstofbepaling (figuur 12).

De ijking gebeurde ter plaatse met een gemengd ijkgas met een concentratie van ± 1000 ppm CO en ±8,0% CO<sub>2</sub> in stikstof. De nulregeling gebeurde met stikstof.

De kalibratie en lineariteit van de monitor werden gecontroleerd bij een tussenliggende concentratie met een onafhankelijk controlegas (±300 ppm CO en ±5,0% CO<sub>2</sub> in stikstof).

De CO<sub>2</sub> –meting na de schouw is uitgevoerd met een Sick-Maihak monitor (0-1%). De ijking gebeurde ter plaatse met een ijkgas met een concentratie van ±0,997% CO<sub>2</sub> in stikstof. De nulregeling gebeurde met stikstof.

### 4.2.4. BEPALING VAN STIKSTOFOXIDES

De concentraties van NO en NO<sub>2</sub> werden respectievelijk continu gemeten met een Envitec monitor, type Model 200AH en met een NGA 2000 monitor van Rosemount. De Envitec monitor registreert NO via chemiluminiscentie; de Rosemount monitor meet NO<sub>2</sub> in het zichtbaar gebied. De NO-monitor heeft een meetbereik van 0 tot 600 ppm; de NO<sub>2</sub>-monitor van 0 tot 100 ppm. De gastoevoer gebeurde op dezelfde wijze als voor CO, CO<sub>2</sub> en O<sub>2</sub>. De metingen zijn uitgevoerd conform de compendiumprocedure LUC/0/005 – LUC/II/001 en volgens VITO-procedures MIM-LU-008: “Bemonstering bij de continue bepaling van O<sub>2</sub>, CO, CO<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub> en NO<sub>x</sub> in een gaskanaal” en MIM-LU-006: “Continue bepaling van stikstofmonoxide en stikstofdioxide in een gaskanaal” die behoren tot het kwaliteitssysteem van de unit Milieurisico en Gezondheid.

De ijkings gebeurden ter plaatse met een ijkgascylinder die ± 500 ppm NO in stikstof bevat en met ± 50 ppm NO<sub>2</sub> in lucht bevat. De nulregeling gebeurde met stikstof.

De kalibratie en lineariteit van de monitoren werden gecontroleerd bij een tussenliggende concentratie met een onafhankelijk controlegas (± 100 ppm NO in stikstof en ± 30 ppm NO<sub>2</sub> in lucht).

### 4.2.5. BEPALING VAN ZWAVELDIOXIDES

De zwaveldioxideconcentratie werd continu gemeten met een NGA 2000 monitor van Rosemount die werkt volgens het NDUV-principe (Niet Dispersief Ultra Violet) conform de compendiumprocedure LUC/0/005 – LUC/II/001 en volgens procedures MIM-LU-008: “Bemonstering bij de continue bepaling van O<sub>2</sub>, CO, CO<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub> en NO<sub>x</sub> in een gaskanaal” en MIM-LU-005: “Continue bepaling van het zwaveldioxidegehalte in een gaskanaal”. Deze procedure behoort tot het kwaliteitssysteem van de unit Milieurisico en gezondheid.

Dit toestel heeft een meetbereik van 0 tot 1000 ppm en werd ter plaatse geijkt met een ijkgas dat ± 200 ppm SO<sub>2</sub> in stikstof bevat. De nulregeling gebeurde ter plaatse met stikstof.

De kalibratie en lineariteit van de monitor werden gecontroleerd bij een tussenliggende concentratie met een onafhankelijk controlegas (± 45 ppm SO<sub>2</sub> in stikstof).

### 4.2.6. BEPALING VAN POLYCYCLISCHE AROMATISCHE KOOLWATERSTOFFEN IN HET AFGAS

Voor de bemonstering van de PAK in totaal stof in het rookgas werd gebruik gemaakt van de opstelling die schematisch wordt voorgesteld in Figuur 14. Een foto van de opstelling (op locatie 3) is getoond in Figuur 13.

Het rookgas werd via een glazen verwarmd filterhuis en een teflonleiding isokinetisch aangezogen doorheen ijsgekoelde wasfles(sen) en een tenaxpatroon. Bij deze metingen is slechts één wasfles gebruikt omdat er weinig condensaat was wegens de relatief lage temperatuur op het meetpunt. Het filterhuis werd verwarmd om condensatie tegen te gaan. Hierbij werd het filterhuis opgewarmd bij niet te hoge temperaturen (± 30°C) om verliezen te vermijden. In deze studie is een vlakfilter gebruikt (Munktell MK360 (50 mm), 12h uitgestookt op 450°C voor bemonstering) voor de bepaling van PAK in de deeltjesfase. Na bemonstering werd de filter niet meer verwarmd, in tegenstelling tot de gangbare procedure bij emissiemetingen voor stof.

Na de bemonstering werd de pomp afgezet en werden de gastellerstand, de temperatuur en de druk van de gasteller alsook het tijdstip genoteerd. Met deze gegevens werd het aangezogen volume, uitgedrukt in Nm<sup>3</sup>dr (normaal kubieke meter in droge omstandigheden), berekend. Vervolgens werd de trein ontkoppeld en werden de filter, wasflessen en tenax patroon geanalyseerd volgens VITO procedure MIM-OR-001 (2014) (conform ISO 11338-1 (2003)). Vermits

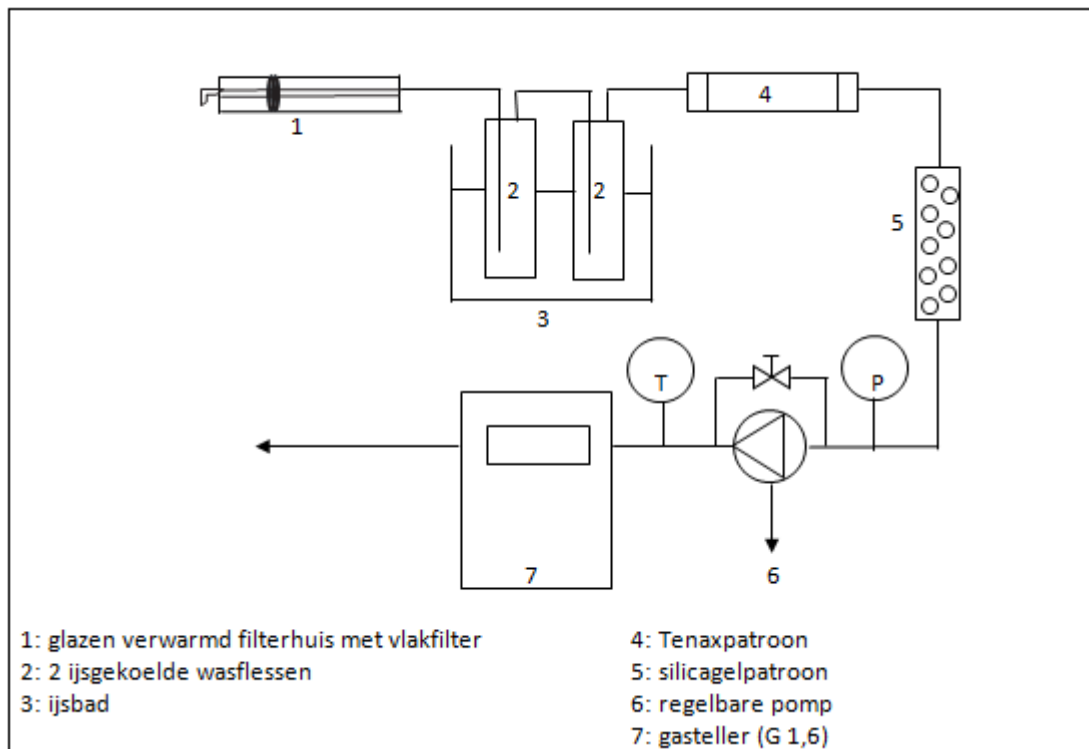
er geen condensaat was in de wasfles is deze in dit geval niet meegenomen voor analyse. Het tenaxpatroon werd afgesloten met de daartoe bestemde glazen stoppen met slijpstuk en beschermd tegen licht met aluminiumfolie.

De stalen werden gedurende 16 uur geëxtraheerd met een Soxhlet-extractie. Bij de tenax patronen gebeurde dit met hexaan. De filters werden geëxtraheerd met een mengsel aceton/hexaan (50/50).

Als zuiveringsstap werd adsorptiechromatografie over een gecombineerde kolom met silica en alumina toegepast om mogelijke interferenties te elimineren. Vervolgens werd het staal ingedampt en opgelost in toluen. De eigenlijke meting vindt plaats m.b.v. een gaschromatograaf uitgerust met een massaspectrometrische detector (GC-MS).



*Figuur 13: Opstelling bemonsteringstrein voor PAK (links) en filter voor stofmassa, levoglucosan en OC/EC (rechts)*



Figuur 14: Schematische voorstelling van de bemonsteringstrein voor PAK

#### 4.2.7. BEPALING VAN DE MASSACONCENTRATIES $PM_{10}$ EN $PM_{2,5}$ IN EEN GELEIDE GASSTROOM MET BEHULP VAN EEN TWEETRAPSIMPACTOR (JONAS IMPACTOR)

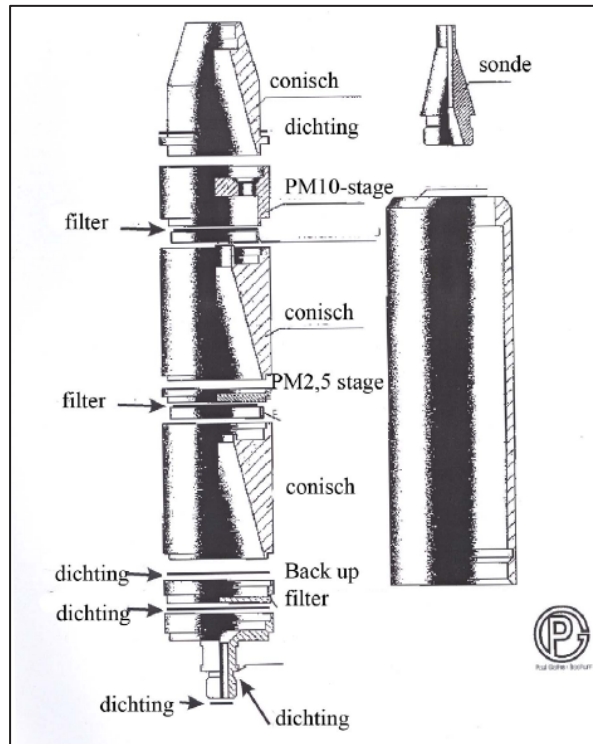
De compendiummethode LUC/I/003 beschrijft de bepaling van de massaconcentraties van de  $PM_{10}$  en  $PM_{2,5}$  fracties met behulp van een tweetrapsimpactor bestaande uit een inlaatnozzle, de twee nozzleplaten, de twee impactor-/collectorplaten en de back-up filter. In Figuur 15 wordt ter illustratie een schematische voorstelling gegeven van dit type tweetrapsimpactor. Figuur 16 toont de schematische voorstelling van de volledige bemonsteringstrein.

Het scheidingsrendement van de impactortrappen voor de respectievelijke diameters  $10\ \mu\text{m}$  en  $2,5\ \mu\text{m}$  bedraagt 50%.

Bij de bemonstering werden de stofdeeltjes gescheiden in drie verschillende fracties:

- Deeltjes met een aerodynamische diameter groter dan  $10\ \mu\text{m}$  die gecollecteerd werden op de filter van de eerste impactorplaat (impactortrap met  $d_{50} = 10\ \mu\text{m}$ )
- Deeltjes met een aerodynamische diameter tussen  $10\ \mu\text{m}$  en  $2,5\ \mu\text{m}$  die gecollecteerd werden op de filter van de tweede impactorplaat (impactortrap met  $d_{50} = 2,5\ \mu\text{m}$ )
- Deeltjes met een aerodynamische diameter kleiner dan  $2,5\ \mu\text{m}$  die gecollecteerd werden op de back-up filter.

De  $PM_{10}$ -fractie is de fractie die de impactorplaat met cut-off diameter  $d_{50} = 10\ \mu\text{m}$  passeert en is de som van de fracties gecollecteerd op de tweede impactorplaat en de back-up filter. De  $PM_{2,5}$ -fractie is de fractie die de impactorplaat met cut-off diameter  $d_{50} = 2,5\ \mu\text{m}$  passeert en die gecollecteerd wordt op de back-up filter.

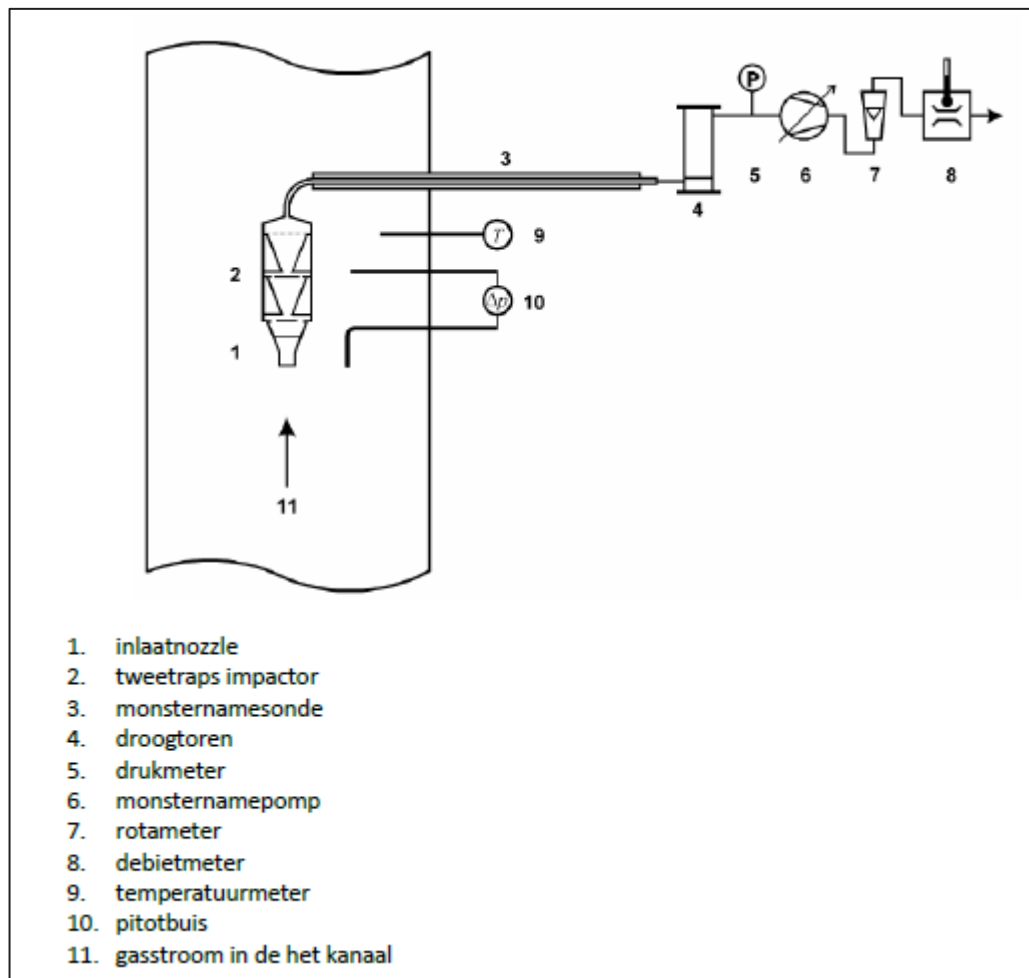


Figuur 15: Schematische voorstelling van een tweetraps impactor, met PM<sub>10</sub> en PM<sub>2,5</sub> impactortrappen en de back-up filter

De staalname dient isokinetisch uitgevoerd te worden. Het aan te zuigen volumedebiet doorheen de tweetraps impactor wordt bepaald door de geometrie en de afsnijkaracteristieken van de impactor en ligt dus vast.

De inlaatnozzle van de monsternamesonde werd daarom gekozen in functie van het vaste volumedebiet en van de snelheid van het rookgas ter hoogte van het meetpunt in de schouw. Tijdens de meting werd de impactor verwarmd tot ongeveer 30°C.





Figuur 16: Schematische voorstelling van een bemonsteringstrein voor bepaling van stoffracties

#### 4.2.8. BEPALING OC/EC EN LEVOGLUCOSAN

De bemonstering van levoglucosan en OC/EC gebeurde op één filter. Hiervoor werd eenzelfde filter gebruikt als voor PAK-analysen die op dezelfde manier werd voor- en nabehandeld. Uit de bemonsterde filters werden twee punches genomen van 1 cm<sup>2</sup> (voor levoglucosan en OC/EC). Voor de analyse werd de filter gewogen (zie 4.2.9). De stofbemonstering (voor latere analyse van OC/EC en levoglucosan) gebeurde grotendeels volgens LUC/I/001 conform ISO 11338-1 maar met het oog op verdere analyses werd onder andere de temperatuur bij bemonstering aangepast.

Het rookgas werd via een glazen verwarmd filterhuis en een teflonleiding isokinetisch aangezogen doorheen de kwartsvezel vlakfilter. Het filterhuis werd verwarmd om condensatie tegen te gaan, bij niet te hoge temperaturen ( $\pm 30^{\circ}\text{C}$ ) (zie 4.2.6). Na de bemonstering werd de pomp afgezet en werden de gastellerstand, de temperatuur en de druk van de gasteller alsook het tijdstip genoteerd. Met deze gegevens werd het aangezogen volume, uitgedrukt in Nm<sup>3</sup>dr, berekend.

De analyse van levoglucosan gebeurde op dezelfde manier als bij de omgevingsmetingen.

Voor OC/EC-analyse werd een kleinere punch genomen in vergelijking met de omgevingsmetingen omdat de belading hier veel hoger is. Voor de emissiefilters gebeurde de OC/EC analyse volgens een aangepast protocol. OC/EC analyse gebeurde volgens het IMPROVE A protocol. In vergelijking met het NIOSH870 (of NIOSH2) heeft dit een lagere temperatuur in de He-fase waar OC gemeten

wordt, waardoor pyrolyse van organisch materiaal vermeden wordt.<sup>3</sup> Bovendien is de tijdsduur in de verschillende stappen variabel gekozen (tussen 150 s en 580 s) in functie van de belading. Dit om er zeker van te zijn dat bij de hoge concentraties alles in de juiste fase gemeten wordt. De temperatuurstappen van het IMPROVE A protocol zijn weergegeven in Bijlage C.

#### **4.2.9. BEPALING STOFMASSA**

Zowel de filters van de Jonasimpactor als de filters waarop later analyses gebeurden (OC/EC en levoglucosan of PAK) werden voor en na bemonstering gewogen.

Voor en na bemonstering werd de filter geconditioneerd gedurende minstens 48h en vervolgens 2 maal gewogen in een geconditioneerde weegkamer (T: 20°C ± 1 en RV: 50 ± 5%) volgens EN 12341 (1999). Na weging werden de filters bewaard in de koelkast (4°C). Dit is voornamelijk nodig om geen verliezen te hebben van OC in afwachting van analyse.

In deze studie werd ervoor gekozen om de weegprocedure op een analoge manier als voor de omgevingsmetingen te laten verlopen in plaats van onder droge omstandigheden (0% RV). Bovendien werd de filter na bemonstering niet meer verwarmd – zoals gebruikelijk is bij emissiemetingen – om verliezen (o.a. van PAK, OC) tegen te gaan. Met het vrij hoge vochtgehalte bij emissiemetingen betekent dit dat mogelijk langere conditionering nodig is. We stelden inderdaad vast dat soms meerdere wegingen nodig waren om tot een stabiele massa te komen.

---

<sup>3</sup> Persoonlijke communicatie met Pavlos Panteliadis (GGD Amsterdam), zie ook 3.6.1

### 4.3. MEETOMSTANDIGHEDEN

#### 4.3.1. GEMETEN HOUTVERBRANDINGSINSTALLATIES

Emissiemetingen werden uitgevoerd bij 3 verschillende huizen. Bij één woning werd een herhaalde meting uitgevoerd met een andere mix van hout. Voor de emissiemeting werden een cassette (2) en kachel (1) geselecteerd omdat dit de meest gebruikte types houtverwarmingsinstallaties zijn. In Figuur 17 is een afbeelding van elk van de gemeten installaties weergegeven.

*Tabel 7: Samenvatting karakteristieken gemeten houtverbrandingsinstallaties*

| Locatie | Merk en type                 | leeftijd  | vermogen     | soort    |
|---------|------------------------------|-----------|--------------|----------|
| 1       | Bodart and Gonay<br>Optifire | 15 jaar   | 10 – 13,5 kW | cassette |
| 2       | Dovre                        | ± 15 jaar | niet gekend  | kachel   |
| 3       | Flam (MT68/75)               | 8 jaar    | 11 kW        | cassette |



*Figuur 17: Houtverwarmingsinstallaties op locatie 1 (boven), 2 (midden) en 3 (onder)*

### 4.3.2. GEBRUIKT HOUT

Tabel 8 geeft een overzicht van het type hout dat werd gebruikt tijdens de emissiemetingen. Er werd altijd met relatief droog hout gestookt (volgens het normale stookgedrag van de bewoner). Het hier gemeten vochtgehalte komt overeen met het vochtgehalte dat aangenomen werd voor de emissie-inventaris nl. 15% (Renders et al., 2011)

*Tabel 8: Type hout gebruikt bij emissiemetingen voor locaties 1 – 3.*

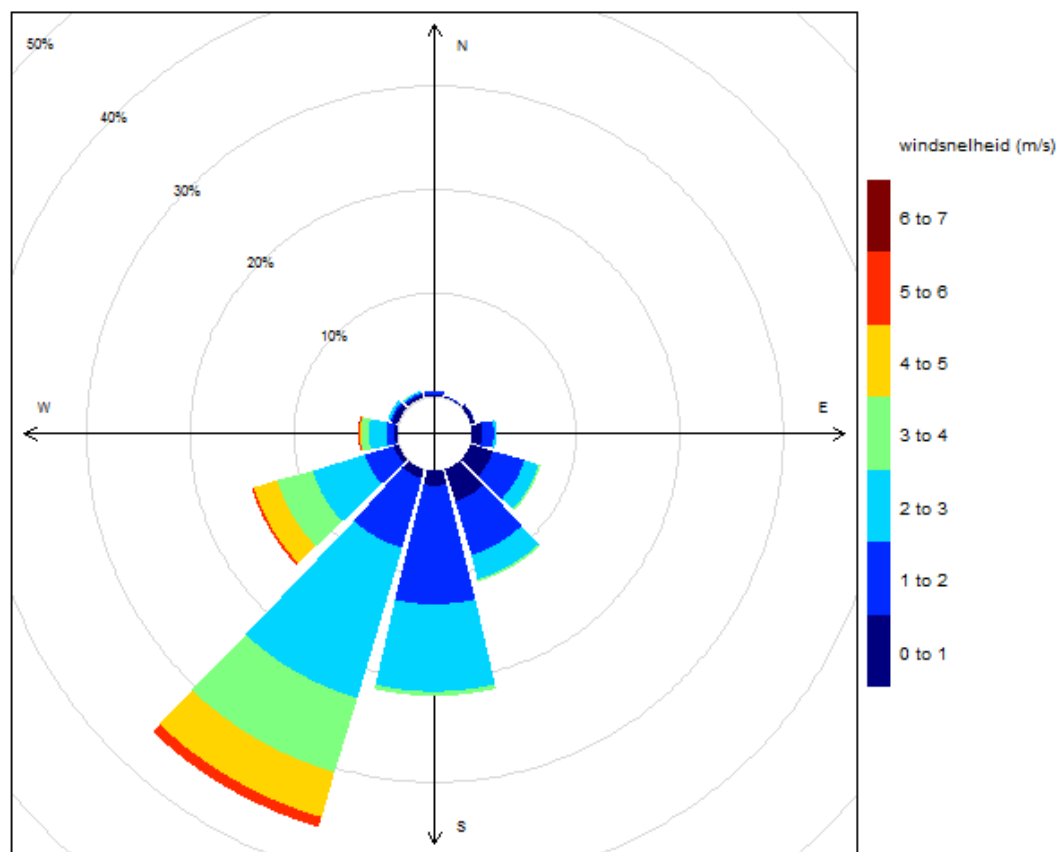
| Locatie | type hout   | blokken  | vochtgehalte (%) |
|---------|-------------|----------|------------------|
| 1       | den         | 10*40 cm | ± 16             |
| 1_b     | den en beuk | 10*40 cm | geen gegevens    |
| 2       | eik         | 10*40 cm | 14 – 16          |
| 3       | den         | 20*30 cm | 14,5 – 16,5      |

## HOOFDSTUK 5. RESULTATEN OMGEVINGSMETINGEN

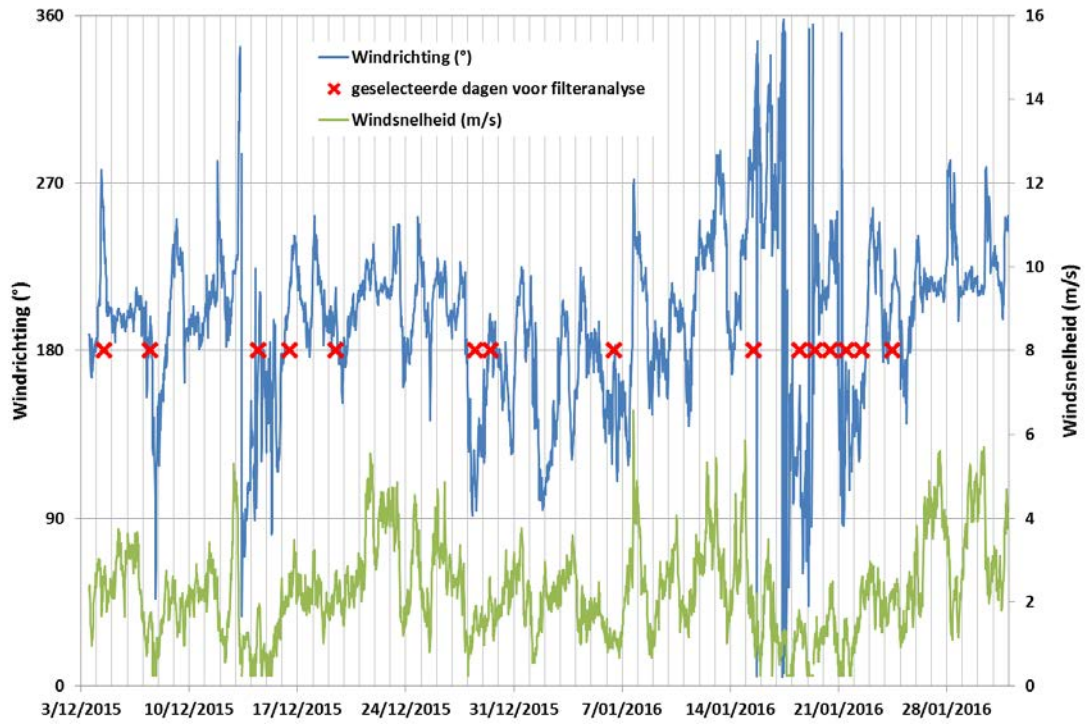
### 5.1. METEOCONDITIES TIJDENS DE MEETCAMPAGNE

#### 5.1.1. WINDRICHTING

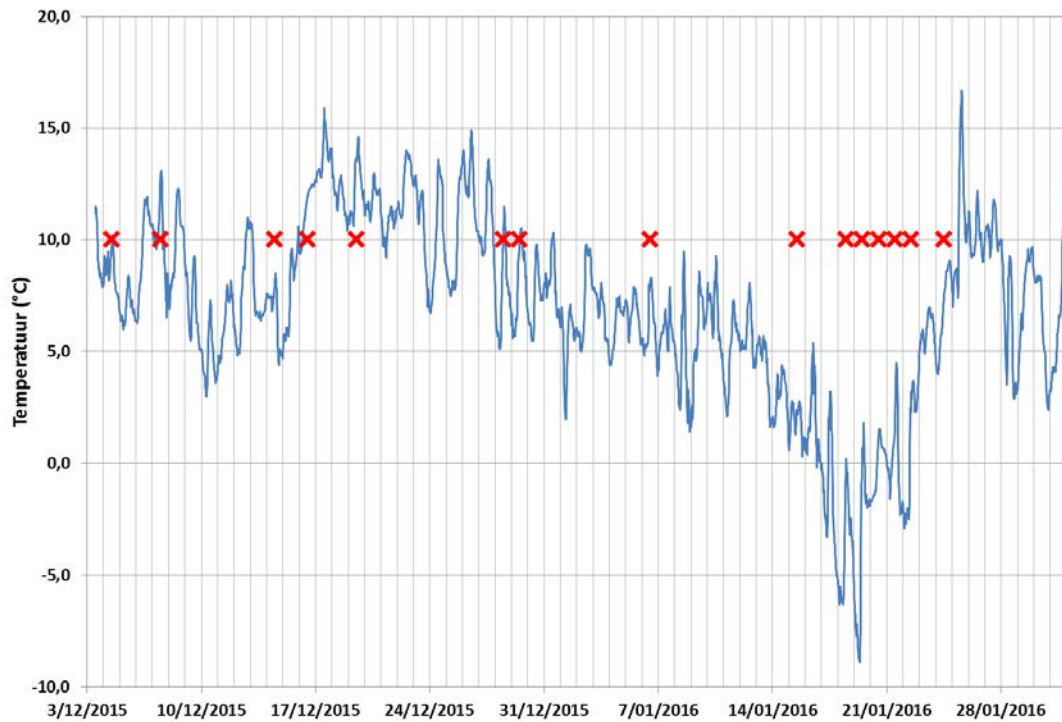
Tijdens de meetcampagne kwam de wind hoofdzakelijk uit ZW richting en deels ZO. Er waren bijna geen momenten waarbij de wind uit de sector WNW tot ONO richting kwam (zie Figuur 18).



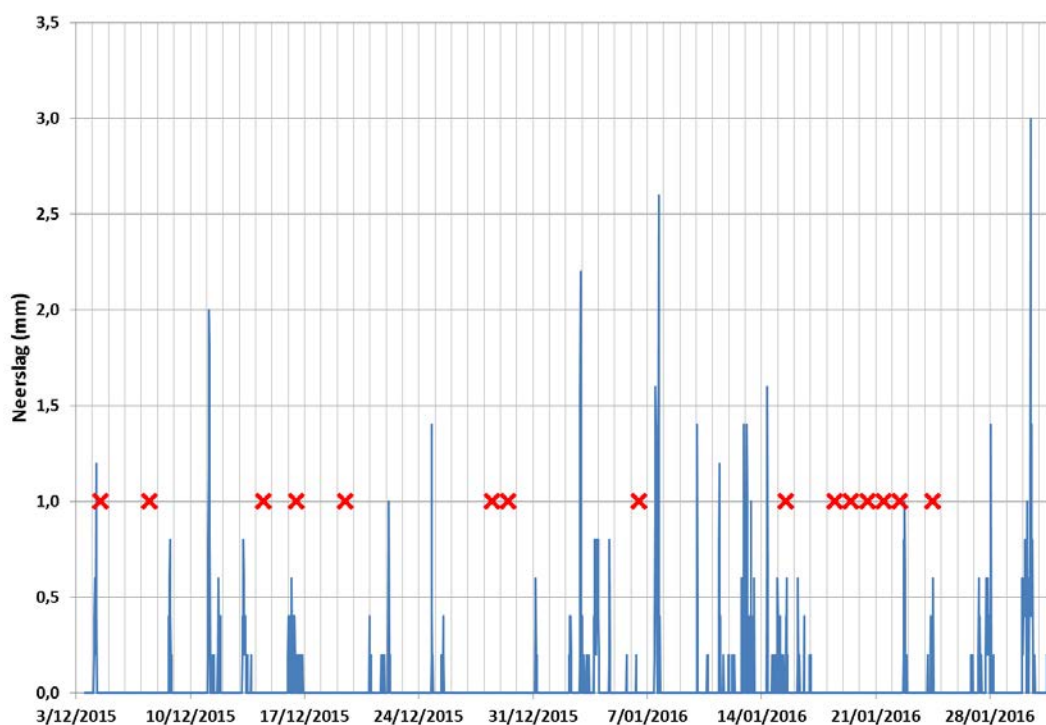
Figuur 18: Percentielplots in functie van de windrichting voor de meetperiode 4/12/15 – 31/1/16



Figuur 19: Windrichting (°) en windsnelheid (m/s) tijdens de meetperiode en dagen waarop filters geselecteerd zijn voor analyse (rode kruisjes)



Figuur 20: Temperatuur (°C) tijdens de meetperiode en dagen waarop filters geselecteerd zijn voor analyse (rode kruisjes)



Figuur 21: Neerslag (mm) tijdens de meetperiode en dagen waarop filters geselecteerd zijn voor analyse (rode kruisjes)

## 5.2. RESULTATEN STOFFILTERS

### 5.2.1. STOFMASSA

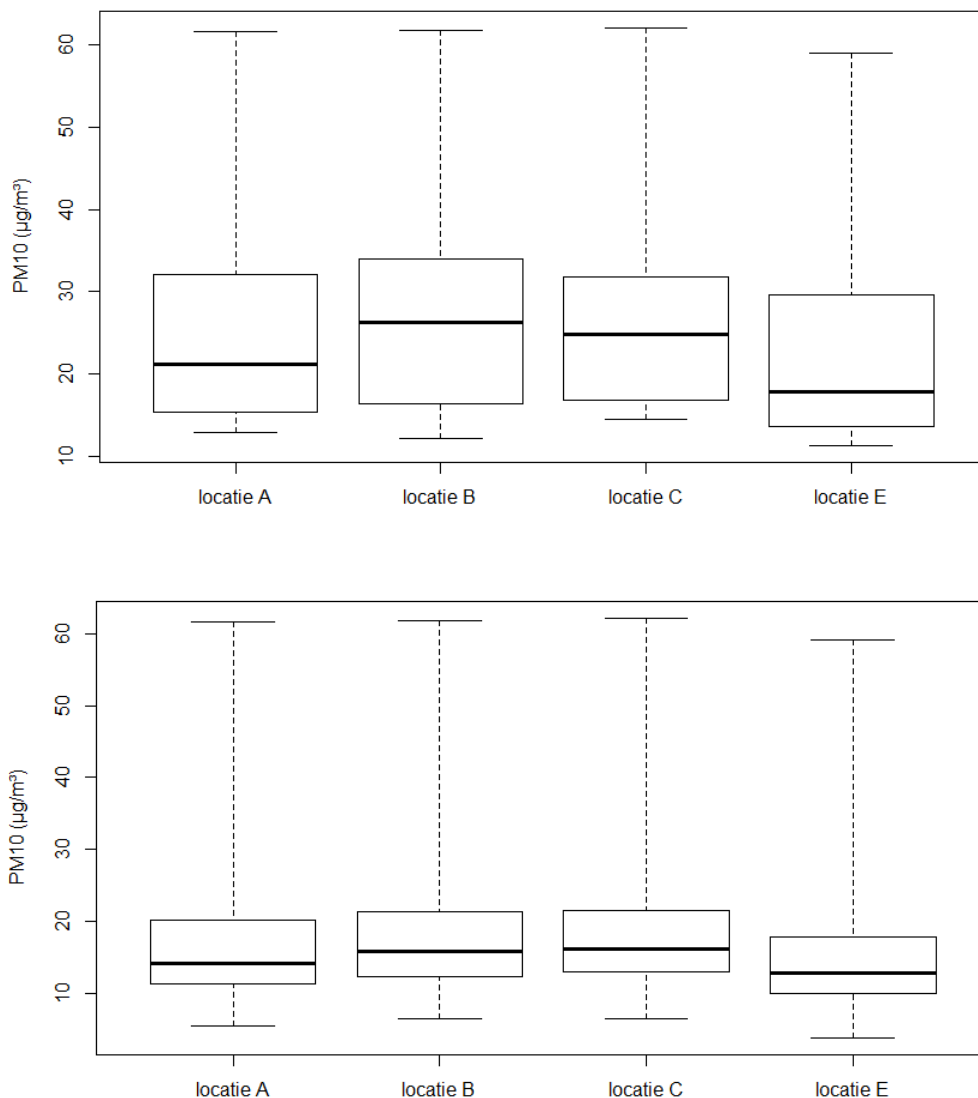
Tabel 9 geeft een overzicht van de stofconcentraties (gemiddelde, minimum, maximum, mediaan, 25 percentiel (P25) en 75 percentiel (P75)); zowel voor de ganse meetperiode van 4/12/15 tot en met 31/1/16 ('alle filters') als voor de geselecteerde filters. De hoogste gemiddelde stofmassa werd gemeten op locaties B en C, de laagste op achtergrondlocatie E. Gemiddeld over de ganse periode is op locatie A, B en C respectievelijk 11%, 18% en 19% meer gemeten in vergelijking met locatie E. Voor de geselecteerde filters is het relatieve verschil vergelijkbaar nl. 12%, 17% en 16% voor respectievelijk A, B en C ten opzichte van E. Figuur 22 toont de boxplot met mediaan, 25-75% (box) en min-max (whiskers). Omdat de dataset van geselecteerde filters maar 15 punten bevat voor elke locatie is er hier voor gekozen om min en max weer te geven als whiskers in plaats van de gebruikelijke 1,5 x IR (Interkwartielrange).

De concentraties tijdens de ganse periode lagen vrij laag. Ter vergelijking: in de Chemkar III-studie (Maenhaut et al., 2012) bedroeg de mediaan over het ganse jaar tussen 18  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  (in Retie en Houtem) en 28  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  (in Gent). In de winter lagen de waarden hoger: met uitzondering van Houtem lag de gemiddelde waarde op alle locaties boven 30  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . Tabel 10 geeft de gemiddelde  $\text{PM}_{10}$ -concentratie over alle Vlaamse meetstations voor de periode 2011 – 2015. De gemiddelde  $\text{PM}_{10}$ -concentratie over alle wintermaanden (2011 – 2015) bedroeg 28,2  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . De hoge waarde voor maart heeft waarschijnlijk ook al te maken met de 'lentesmog', maar als we enkel november - februari beschouwen ligt het gemiddelde nog op 26  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . We kunnen dus stellen dat de geselecteerde filters gemiddeld goed overeenkomen met de gemiddelde winterconcentraties in Vlaanderen van de afgelopen 5 jaar.



Tabel 9: Overzicht gemiddelde, minimum, maximum, mediaan en interkwartielrange (P25 – P75) voor PM<sub>10</sub> concentratie (µg/m<sup>3</sup>) voor de ganse meetperiode en voor de geselecteerde filters

|                                       | Locatie A                                | Locatie B                                 | Locatie C                                | Locatie E                                |
|---------------------------------------|--|---|--|--|
|                                       | gem (min – max)<br>mediaan (P25 – P75)   | gem (min – max)<br>mediaan (P25 – P75)    | gem (min – max)<br>mediaan (P25 – P75)   | gem (min – max)<br>mediaan (P25 – P75)   |
| PM <sub>10</sub><br>alle filters      | 17,5 (5,5 – 61,7)<br>14,2 (11,4 – 20,2)  | 18,6 (6,5 – 61,8)<br>15,8 (12,3 – 21,3)   | 18,7 (6,5 – 62,1)<br>16,2 (13,1 – 21,5)  | 15,7 (3,9 – 59,1)<br>12,9 (10,0 – 17,9)  |
| PM <sub>10</sub><br>geselect. filters | 26,7 (12,9 – 61,7)<br>21,1 (15,4 – 32,1) | 27,9 (12,2 – 61,8)<br>26,3 ( 16,3 – 34,0) | 27,6 (14,5 – 62,1)<br>24,9 (16,9 – 31,8) | 23,8 (11,3 – 59,1)<br>17,9 (13,5 – 29,7) |



Figuur 22: Boxplots PM<sub>10</sub> concentraties voor geselecteerde dagen voor filter-analyse (boven) en voor de ganse meetperiode (onder)

Tabel 10: Overzicht van de gemiddelde  $PM_{10}$ -concentraties ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) voor de wintermaanden over alle Vlaamse meetstations voor de periode 2011 – 2015.

| oktober | november | december | januari | februari | maart | gemiddelde wintermaanden |
|---------|----------|----------|---------|----------|-------|--------------------------|
| 24,0    | 25,8     | 20,8     | 27,0    | 31,4     | 40,2  | 28,2                     |

### 5.2.2. SELECTIE FILTERS VOOR ANALYSE

Op elke locatie werden 59 filters bemonsterd (4/12/15 – 31/1/16) waarvan 15 filters geselecteerd werden voor EC/OC, levoglucosan en PAK-analyse.

Factoren waar rekening mee werd gehouden zijn windrichting (WR) en windsnelheid (WS), minimale belading van filters ( $PM_{10}$ -massa),  $\alpha$ -waarde, minimale waarde voor BC(950), minimale waarde voor bijdrage houtverbranding aan BC(950) = BC(950)\_WB en dagen dat PAK bemonsterd werden (om de drie dagen door VMM in het Vlaamse meetnet)<sup>4</sup>. Omdat de concentraties over het algemeen vrij laag waren, werd bij de selectie ook voorkeur gegeven aan de enkele dagen met hogere concentraties tijdens de meetperiode.

De geselecteerde filters moeten het mogelijk maken om:

- Inschatting te doen van lokale PAK-concentraties en EC/OC concentraties
- Vergelijking te maken van aandeel houtverbranding berekend via levoglucosan en de Aethalometermethode

Omdat de voorkeur uitgaat naar dagen waarop PAK bemonsterd worden in het Vlaamse meetnet, gebeurde de selectie in 2 stappen.

Eerst werden 4 selectiecriteria toegepast voor PAK dagen (windrichting en windsnelheid, voldoende hoge concentratie aan  $PM_{10}$ , BC(950) en BC(950)\_WB), vervolgens werd de selectie verder verfijnd voor de niet-PAK-dagen. Bijkomende selectiecriteria werden toegepast op dagen dat er door VMM geen PAK bemonsterd zijn. De details over de selectie zijn te vinden in Bijlage B.

De geselecteerde dagen zijn:

4/12, 7/12, 14/12, 16/12, 19/12, 28/12, 29/12, 6/1, 15/1, 18/1, 19/1, 20/1, 21/1, 22/1, 24/1.

### 5.3. EC/OC

Filterpunches ( $1,5 \text{ cm}^2$ ) voor de bepaling van EC/OC/TC werden geanalyseerd door GGD Amsterdam. De gemiddelde waarden per locatie zijn weergegeven in Tabel 11, samen met de resultaten voor de houtverbrandingstracers. De resultaten van de houtverbrandingstracers worden verder besproken in 5.4. De resultaten zijn ook weergegeven in boxplots (Figuur 23). Op de achtergrondlocatie E werden de laagste gemiddelde concentraties voor EC en OC gemeten, namelijk  $0,72 \mu\text{g}/\text{m}^3$  EC en  $4,98 \mu\text{g}/\text{m}^3$  OC. De hoogste gemiddelde waarden voor OC zijn gemeten op locatie B en C, respectievelijk  $6,28 \mu\text{g}/\text{m}^3$  en  $6,13 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Voor EC werd de hoogste waarde ( $1,43$

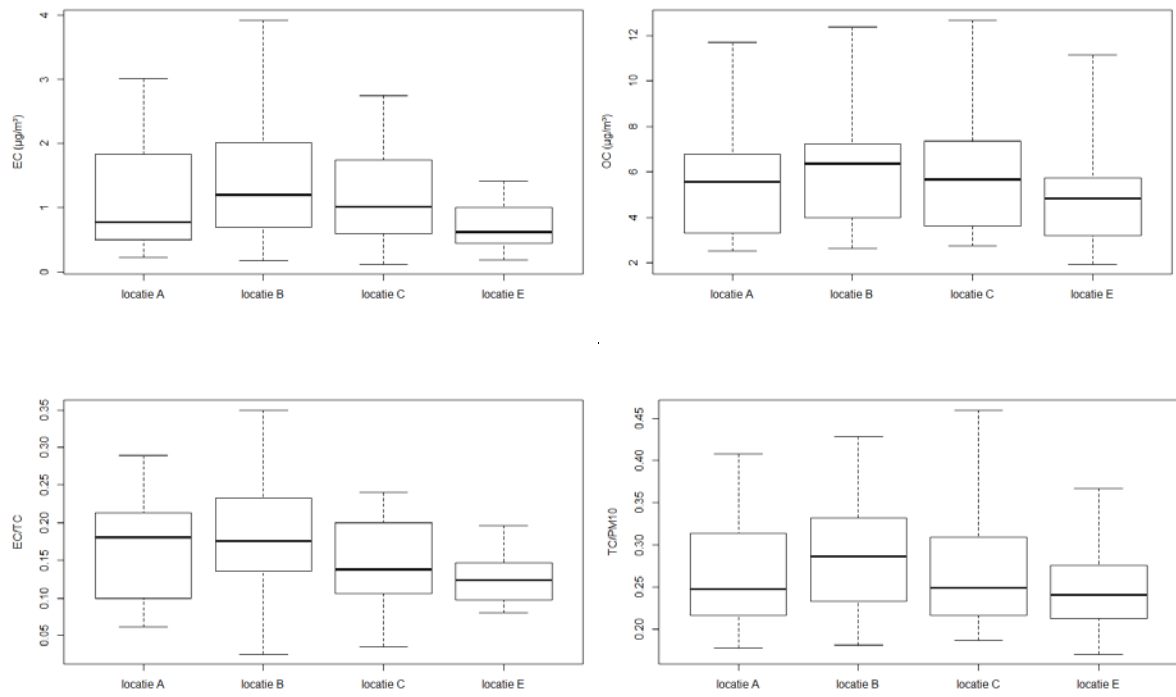
<sup>4</sup> Het was de bedoeling om de gemeten PAK concentraties te vergelijken met de metingen van het vaste PAK meetnet van VMM, maar op het moment van schrijven waren deze laatste nog niet beschikbaar

$\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) gemeten op locatie B (het dichtst bij de omleidingsweg met veel verkeer gelegen). Op deze locatie was de EC-concentratie ongeveer het dubbele van de achtergrondlocatie terwijl deze voor OC 26% hoger lag. De lokale bijdrage voor EC en OC bedroegen respectievelijk  $0,46 - 0,72 \mu\text{g}/\text{m}^3$  en  $0,68 - 1,29 \mu\text{g}/\text{m}^3$ .

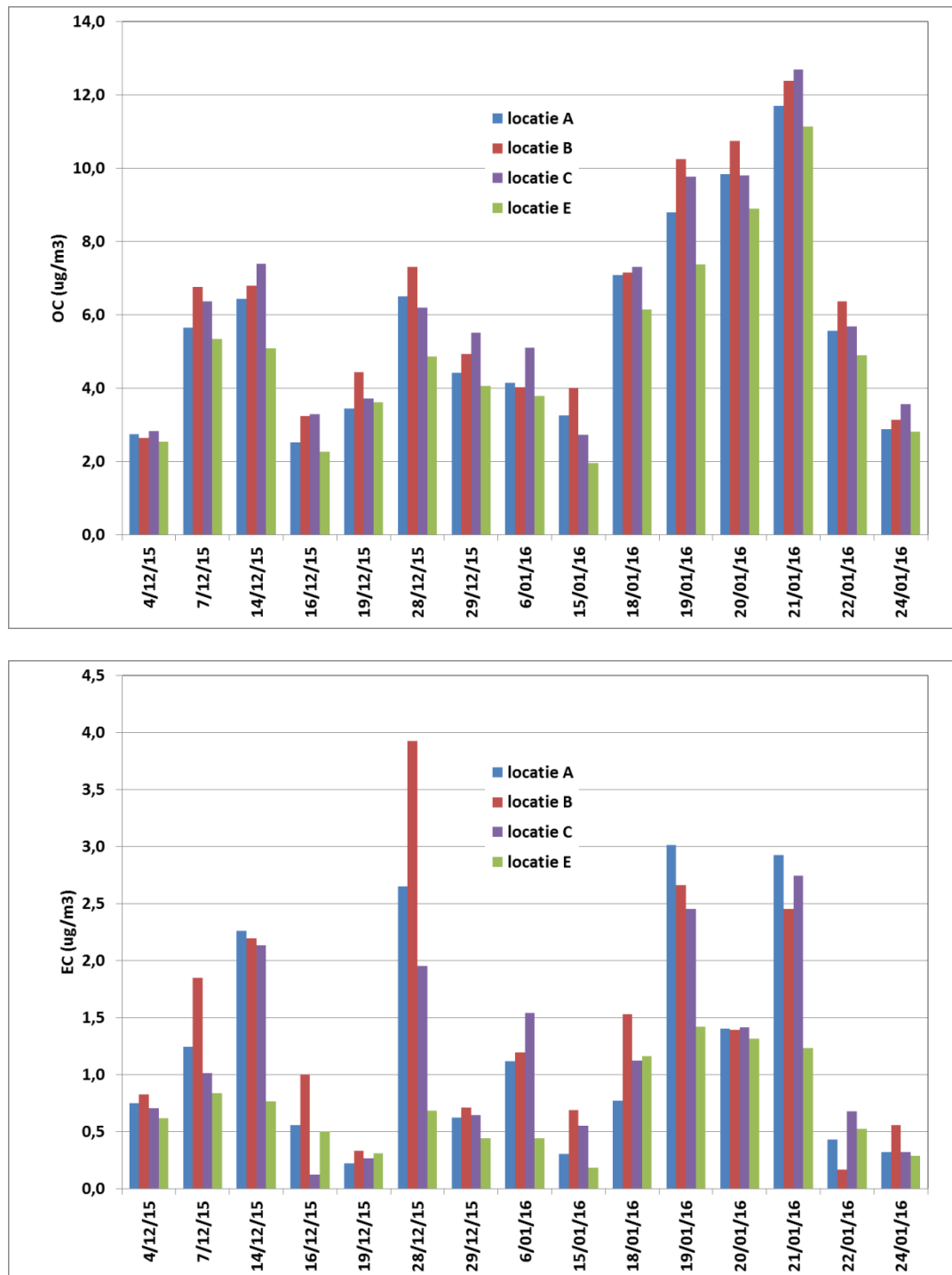
Figuur 24 toont de dagwaarden van OC en EC. De verschillen zijn groter voor EC dan voor OC en EC en OC volgen niet altijd dezelfde trend. In Figuur 25 wordt de verhouding van EC/TC weergegeven. De verhouding was meestal het hoogst op locatie B. Op bepaalde dagen was op locatie A de verhouding EC/TC hoger dan of vergelijkbaar met de waarde op locatie B (vb. 14/12, 19, 20, 21/1). Gemiddeld bedraagt de lokale bijdrage voor de EC/TC-verhouding  $0,29 \pm 0,38$ ,  $0,32 \pm 0,27$  en  $0,12 \pm 0,37$  op locaties A, B en C respectievelijk. De hoogste EC/TC-verhouding op locatie B komt overeen met het feit dat daar de impact van verkeer daar het grootst is.

Tabel 11: Overzicht gemiddelde, minimum, maximum, mediaan en interkwartielrange (P25 – P75) voor EC/OC/TC ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) en levoglucosan/mannosan en galactosan ( $\text{ng}/\text{m}^3$ )

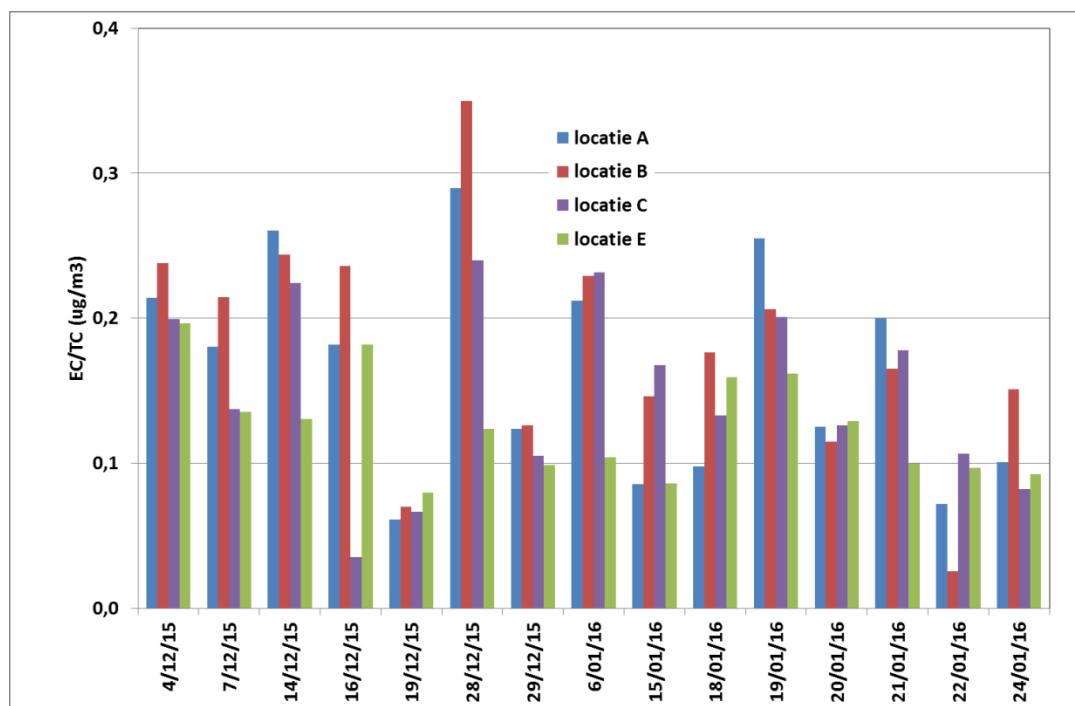
|  | Locatie A<br>gem (min – max)<br>mediaan (P25 – P75) | Locatie B<br>gem (min – max)<br>mediaan (P25 – P75) | Locatie C<br>gem (min – max)<br>mediaan (P25 – P75) | Locatie E<br>gem (min – max)<br>mediaan (P25 – P75) |
|--|---|---|---|---|
| OC<br>( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )         | 5,66 (2,52 – 11,70)<br>5,56 (3,35 – 6,79)           | 6,28 (2,64 – 12,38)<br>6,36 (4,02 – 7,23)           | 6,13 (2,73 – 12,68)<br>5,68 (3,64 – 7,35)           | 4,98 (1,96 – 11,13)<br>4,85 (3,21 – 5,74)           |
| EC<br>( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )         | 1,24 (0,22 – 3,01)<br>0,77 (0,50 – 1,83)            | 1,43 (0,17 – 3,92)<br>1,20 (0,70 – 2,02)            | 1,18 (0,12 – 2,74)<br>1,01 (0,60 – 1,74)            | 0,72 (0,18 – 1,42)<br>0,62 (0,44 – 1,00)            |
| TC<br>( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )         | 6,90 (3,08 – 14,62)<br>6,00 (3,61 – 8,92)           | 7,71 (3,47 – 14,83)<br>6,53 (4,73 – 10,11)          | 7,31 (3,28 – 14,42)<br>6,64 (3,94 – 8,98)           | 5,70 (2,14 – 12,37)<br>5,42 (3,54 – 6,75)           |
| EC/TC                                      | 0,16 (0,06 – 0,29)<br>0,18 (0,10 – 0,21)            | 0,18 (0,03 – 0,35)<br>0,18 (0,14 – 0,23)            | 0,15 (0,04 – 0,24)<br>0,14 (0,11 – 0,20)            | 0,13 (0,08 – 0,30)<br>0,12 (0,10 – 0,15)            |
| TC/PM <sub>10</sub>                        | 0,27 (0,18 – 0,41)<br>0,25 (0,22 – 0,31)            | 0,29 (0,18 – 0,43)<br>0,29 (0,23 – 0,33)            | 0,27 (0,19 – 0,46)<br>0,25 (0,22 – 0,31)            | 0,25 (0,17 – 0,37)<br>0,24 (0,21 – 0,28)            |
| Levoglucosan<br>( $\text{ng}/\text{m}^3$ ) | 403 (143 – 850)<br>344 (211 – 565)                  | 432 (184 – 808)<br>353 (253 – 587)                  | 435 (189 – 804)<br>418 (238 – 585)                  | 360 (70 – 897)<br>327 (159 – 459)                   |
| Mannosan<br>( $\text{ng}/\text{m}^3$ )     | 79 (24 – 156)<br>61 (38 – 119)                      | 90 (29 – 207)<br>73 (57 – 125)                      | 90 (29 – 203)<br>74 (49 – 126)                      | 71 (17 – 189)<br>59 (26 – 93)                       |
| Galactosan<br>( $\text{ng}/\text{m}^3$ )   | 27 (8 – 58)<br>20 (14 – 40)                         | 30 (10 – 62)<br>23 (19 – 42)                        | 30 (10 – 65)<br>25 (15 – 41)                        | 25 (5 – 71)<br>20 (9 – 30)                          |
| L/M  | 5,4 (3,9 – 6,5)<br>5,5 (4,8 – 6,0)                  | 5,0 (3,1 – 6,6)<br>4,9 (4,5 – 5,7)                  | 5,0 (3,7 – 6,4)<br>4,9 (4,6 – 5,7)                  | 5,4 (4,1 – 6,3)<br>5,7 (4,7 – 6,0)                  |
| L/OC                                       | 0,07 (0,04 – 0,09)<br>0,07 (0,06 – 0,08)            | 0,07 (0,05 – 0,10)<br>0,07 (0,06 – 0,08)            | 0,07 (0,05 – 0,09)<br>0,07 (0,07 – 0,08)            | 0,07 (0,04 – 0,09)<br>0,07 (0,05 – 0,08)            |



Figuur 23: Boxplots voor EC, OC, EC/TC en TC/PM<sub>10</sub>



Figuur 24: Daggemiddelde concentraties EC (onder) en OC(boven) op de 4 locaties



Figuur 25: Verhouding EC/TC op de vier locaties

#### 5.4. LEVOGLUCOSAN, MANNOSAN EN GALACTOSAN

##### 5.4.1. CONCENTRATIES HOUTVERBRANDINGSTRACERS

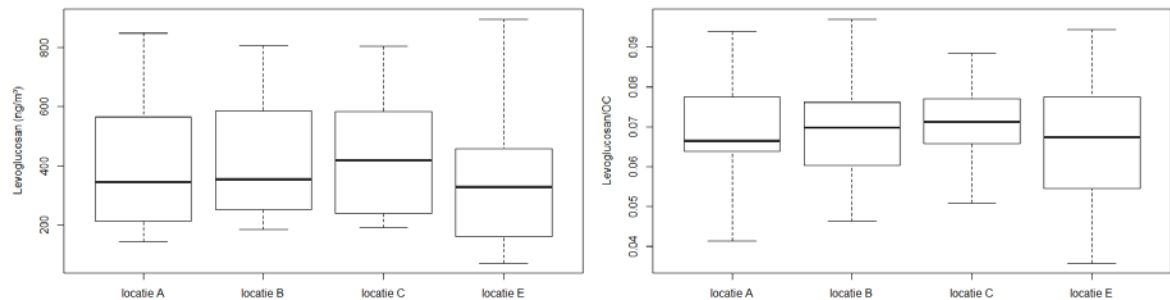
Filterpunches (1 cm<sup>2</sup>) voor de bepaling van levoglucosan, mannosan en galactosan werden geanalyseerd door de Universiteit van Leicester. De gemiddelde, minimum, maximum, mediaan, P25 en P75-waarden per locatie zijn weergegeven in Tabel 11. De laagste gemiddelde concentratie (360 ng/m<sup>3</sup>) voor levoglucosan werd gemeten op de achtergrondlocatie (E), de hoogste gemiddelde waarden zijn gemeten op locaties B (432 ng/m<sup>3</sup>) en C (435 ng/m<sup>3</sup>). Hoewel de gemiddelde waarden op locatie B en C vergelijkbaar zijn, ligt de mediaan hoger op locatie C (418 ng/m<sup>3</sup>) ten opzichte van locatie B (353 ng/m<sup>3</sup>). Het gemiddeld verschil ten opzichte van de achtergrondlocatie was vergelijkbaar, nl. 73 ng/m<sup>3</sup> op locatie B en 76 ng/m<sup>3</sup> op locatie C (mediaan respectievelijk 59 en 75 ng/m<sup>3</sup>). De levoglucosan-concentratie op de achtergrondlocatie was vrij hoog wat wijst op een belangrijk regionaal aandeel van houtverbranding of toch een lokale (ongekende) bron in de buurt van de achtergrondlocatie.

De concentraties van de andere isomeren waren veel lager maar volgen dezelfde trend. De gemeten concentraties van de houtverbrandingstracers volgen grotendeels dezelfde trend als OC. De gemiddelde verhouding levoglucosan/OC ligt tussen 0,0689 en 0,0722 en is het laagst op locatie B en het hoogst op locatie E.

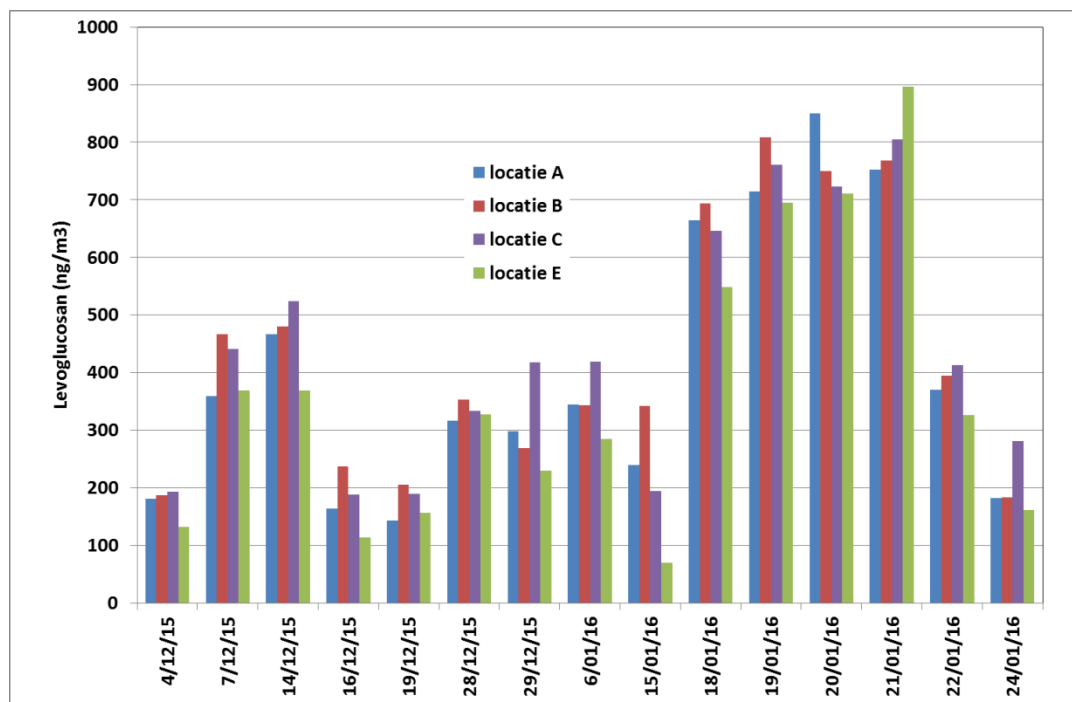
Figuur 27 toont de dagwaarden voor levoglucosan; hierop is te zien dat er aanzienlijke dag-tot-dag verschillen zijn. De hoogste concentratie wordt meestal gemeten op locatie B of locatie C. Op 1 dag is uitzonderlijk de concentratie het hoogst op de achtergrondlocatie. Op die dag kwam de wind hoofdzakelijk uit ZO richting en was de windsnelheid vrij laag (<1,6 m/s).

Figuur 35 toont de correlatie van levoglucosan op de locaties A, B en C ten opzichte van locatie E. De correlaties zijn vrij goed. Dit heeft vooral te maken met vergelijkbare meteorologische

omstandigheden en eventueel impact van regionale bijdrage en long-range transport. Toch zijn er duidelijk verschillen in daggemiddelde levoglucosanconcentraties binnen het studiegebied tot meer dan  $100 \text{ ng/m}^3$ .



Figuur 26: Boxplots voor levoglucosan ( $\text{ng/m}^3$ ) en levoglucosan/OC



Figuur 27: Daggemiddelde concentraties voor Levoglucosan gemeten op de 4 locaties

**5.4.2. VERHOUDING LEVOGLUCOSAN/MANNOSAN**

De verhouding levoglucosan/mannosan (L/M) is een maat voor de verhouding zacht/hard hout. Naargelang meer zacht hout gebruikt wordt ligt deze waarde lager.

De gemiddelde waarde van L/M bedraagt 5,0 op locaties B en C en 5,4 op locaties A en E. De L/M-verhouding ligt steeds tussen 3,1 en 6,6. Bij de emissiemetingen ligt de L/M-verhouding tussen 1,95 (wanneer met den gestookt is) en 17,5 (wanneer met eik gestookt is).

De gemiddelde verhouding L/(M+G) bedraagt respectievelijk 4,0; 3,7; 3,8; 4,0 op locaties A, B, C en E.

Op basis van stookexperimenten (Schmidl et al. (2008)) werd een vergelijking opgesteld om het aandeel dennenhout dat verbrand is te bepalen op basis van de gemeten L/M-verhouding in omgevingslucht:

$$\%dennenhout = (14,8 - L/M) / 0,112$$

Als we deze vergelijking toepassen op de individuele metingen op elke locatie vinden we een gemiddelde bijdrage van dennenhout in houtverbranding van respectievelijk  $84 \pm 7\%$ ,  $88 \pm 9\%$ ,  $87 \pm 7\%$  en  $84 \pm 7\%$ . Deze waarde ligt hoger dan de metingen in de vier steden in Vlaanderen (Maenhaut et al., 2016), waar de gemiddelde waarden tussen 44 en 52% lagen. De hier gemeten waarden zijn nog iets hoger maar al meer vergelijkbaar met een eerdere studie in Vlaanderen (Maenhaut et al., 2012) op 7 locaties waar een bijdrage dennenhout werd bepaald van  $71 \pm 14\%$  (jaargemiddelde over alle locaties; met beperkte verschillen tussen de locaties met name 68 – 77%)

Uit de enquête die werd uitgevoerd in het studiegebied bleek dat zowel hard als zacht hout gebruikt wordt en de meeste mensen gebruiken zelfs een combinatie van beide. Het is niet duidelijk waarom de waarden hier zo hoog liggen. In de enquête werd enkel kwalitatief gevraagd naar gebruik van soorten hout en niet naar absolute hoeveelheden. Vele respondenten antwoordden dat ze verschillende soorten hout gebruiken. Het is dus best mogelijk dat mensen zowel hard als zacht hout vermelden maar meestal zacht hout gebruiken. Daarom is het beter om bij een nieuwe enquête te vragen naar absolute hoeveelheden.

Een andere verklaring waarom % dennenhout dat berekend werd zo hoog zou kunnen zijn is dat L/M door veroudering lager wordt door eventueel snellere afbraak van L maar hiervoor zijn geen wetenschappelijke aanwijzingen. Een laatste verklaring ligt in de onzekerheid van de bepaling. Volgens Yttri et al. (2015) is de onzekerheid op het % dennenhout 8% wanneer de L/M-verhouding dicht bij 14,8 ligt en wordt deze kleiner wanneer de L/M-verhouding kleiner is. We moeten opmerken dat bij de emissiemetingen in deze studie (zie HOOFDSTUK 6) enerzijds hogere L/M-waarden werden gemeten voor eik (17,5) en anderzijds lage waarden voor zuivere den (2). Wanneer we de waarde voor den invullen in bovenstaande vergelijking vinden we een %dennenhout van  $>100\%$ .

### 5.5. VERGELIJKING MET ANDERE STUDIES (ECOC EN HOUTRACERS)

Wanneer we de gemeten waarden vergelijken met eerdere studies in en rond Vlaanderen zien we dat de gemeten **concentraties levoglucosan** over het algemeen iets hoger liggen.

Een eerdere studie in Vlaanderen op 7 locaties (Chemkar III, **Maenhaut et al., 2012**) gaf mediaanwaarden voor de winter tussen 138 – 640 ng/m<sup>3</sup> op de verschillende locaties en respectievelijk 300 en 330 ng/m<sup>3</sup> op de stedelijke achtergrondlocaties Antwerpen en Gent. De in deze studie gemeten mediaanwaarden tussen 327 en 418 ng/m<sup>3</sup> liggen dus in dezelfde range.

Metingen in 2011 – 2012 op stedelijke achtergrond in Antwerpen, Gent, Brugge, Oostende (Chemkar IV, **Maenhaut et al., 2016**) resulteerden in lagere mediaanwaarden voor levoglucosan op de verschillende locaties, nl. tussen 122 – 191 ng/m<sup>3</sup> in de winter.

De waarden bepaald tijdens de meetcampagne in 2013 – 2014 van het JOAQUIN-project (**Cordell et al., 2016**) in een aantal Europese steden liggen lager. Maandgemiddelde waarden voor de wintermaanden december en januari liggen rond 200 – 300 ng/m<sup>3</sup> in Lille en 100 – 200 ng/m<sup>3</sup> in Antwerpen; in de steden Leicester (UK), Wijk aan Zee en Amsterdam (Nederland) liggen maandgemiddelde waarden in de winter rond 100 ng/m<sup>3</sup> of lager.

In de studie van **Fuller et al. (2014)** werd levoglucosan gemeten gedurende zes weken in de winter



op enkele locaties in Londen. De levoglucosan-concentraties bedroegen gemiddeld  $160 \pm 17 \text{ ng/m}^3$  in centraal Londen en  $190 \pm 20 \text{ ng/m}^3$  in de buitenwijken. Deze waarden liggen ook lager dan gemeten in deze studie.

De levoglucosanconcentraties bepaald in vier Europese regio's tijdens een korte meetcampagne in het kader van het ESCAPE-project lagen ook lager met maximale waarden van  $263 \text{ ng/m}^3$  (Jedynska et al., 2015).

Resultaten van de PAK-studie (Koppen et al., 2016) in opdracht van LNE in Menen en Genk, waarvan de wintercampagne deels gelijk liep met de huidige campagne, zijn weergegeven in Tabel 12. Op 19/1 en 21/1 werd in beide studies PM bemonsterd en geanalyseerd voor levoglucosan. In de LNE studie wordt echter  $\text{PM}_{2,5}$  bemonsterd en in de huidige studie  $\text{PM}_{10}$ . De  $\text{PM}_{10}$ -concentraties die voor de LNE studie gegeven zijn, zijn deze van VMM-stations. Voor levoglucosan is voor elk studiegebied van de LNE-studie de hoogste en laagste waarde weergegeven in de tabel. We zien dat de concentraties op deze twee dagen van dezelfde grootteorde zijn als deze in Dessel. Enkel in Genk werden er op 21/1 lagere waarden gemeten, het is echter niet duidelijk waarom, mogelijk heeft het te maken met het feit dat er in Genk 48u bemonsterd werd.

Tabel 12: Resultaten meetcampagne PAK studie in vergelijking met de huidige studie

|        | 19/1/2016                                   |                                      | 21/1/2016                                   |                                      |
|--------|---|--------------------------------------|---|--------------------------------------|
|        | $\text{PM}_{10}$<br>( $\mu\text{g/m}^3$ )** | levoglucosan<br>( $\text{ng/m}^3$ )* | $\text{PM}_{10}$<br>( $\mu\text{g/m}^3$ )** | levoglucosan<br>( $\text{ng/m}^3$ )* |
| A      | 43  | 715                                  | 62  | 752                                  |
| B      | 44  | 808                                  | 62  | 769                                  |
| C      | 42  | 761                                  | 62  | 804                                  |
| E      | 35  | 695                                  | 59  | 897                                  |
| Genk   | 46  | 620 - 938                            | 45  | 285 - 444                            |
| Menen  | 58  | -                                    | 41  | 500 - 746                            |
| Houtem | 37  | -                                    | 37  | 783                                  |

\* Levoglucosan is geanalyseerd in  $\text{PM}_{10}$ -fractie (24h) in Dessel, in  $\text{PM}_{2,5}$ -fractie (48 h) in Menen en Genk en in  $\text{PM}_{2,5}$ -fractie (24 h) in Houtem

\*\*  $\text{PM}_{10}$ -concentraties van VMM-stations in Hasselt (als proxy voor Genk) en Menen en Houtem

De gemiddelde **L/M-ratio** bepaald op vier stedelijke achtergrondlocaties in Vlaanderen (Maenhaut et al., 2016) ligt tussen 9 en 10. In de eerdere studie in Vlaanderen (Maenhaut et al., 2012) op zeven locaties werd de jaargemiddelde L/M-ratio bepaald op 6,2 – 7,1 en L/M+G op 4,5 – 4,9 met weinig variatie tussen de seizoenen. Deze waarden liggen hoger dan de hier bepaalde waarden (gemiddelde L/M : 5,0 en 5,4).

In de JOAQUIN-studie (Cordell et al., 2016) lag voor de verschillende sites de maandgemiddelde verhouding voor L/M tussen 2,1 – 6,7 en voor L/M+G tussen 1,8 – 4,3 wat beide wijst op een groot aandeel zacht hout. In de wintermaanden liggen de verhoudingen hoger met typische waarden voor L/M in december en januari tussen 3,7 – 6,1 waarbij de hoogste waarden werden gemeten in Antwerpen.

In Londen werd een gemiddelde L/M-verhouding gemeten van 7,1 – 7,8 voor de verschillende sites wat wijst op een mengsel van hard en zacht hout bij houtverbranding. In een Tsjechische studie (Krümal et al., 2010) werd in de winter een gemiddelde van 5,0 gemeten. In een studie in Noord-

Italië (**Pietrogrande et al., 2015**) bedroeg de gemiddelde waarde 6,6 welke overeenkomt met deze uit de publicatie van Maenhaut et al. (2012).

De mediaanwaarden voor **OC** in de winter op de vier stedelijke achtergrondlocaties in Vlaanderen lag tussen 1,9 – 3,1. In deze studie ligt de mediaan op de verschillende locaties tussen 4,9 – 6,4  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ .

De mediaan voor  $\text{PM}_{10}$  in de winterperiode was 24 of 25  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  in elk van de vier steden. Deze waarde is vergelijkbaar met de mediane  $\text{PM}_{10}$ -concentratie voor de geselecteerde filters in deze studie, met name 26,7; 27,9; 27,6; 23,8  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  op locaties A, B, C en E.

De **bijdrage houtverbranding aan  $\text{PM}_{10}$**  voor wintermaanden bepaald in de JOAQUIN-studie (Cordell et al., 2016) lag tussen  $2,7 \pm 1,4\%$  (Wijk aan Zee) en  $11,6 \pm 3,8\%$  (Lille).

De inschatting van houtverbranding op basis van levoglucosan door Fuller et al. (2014) in Londen bedroeg 1,8  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  of 8% van  $\text{PM}_{10}$  massa.

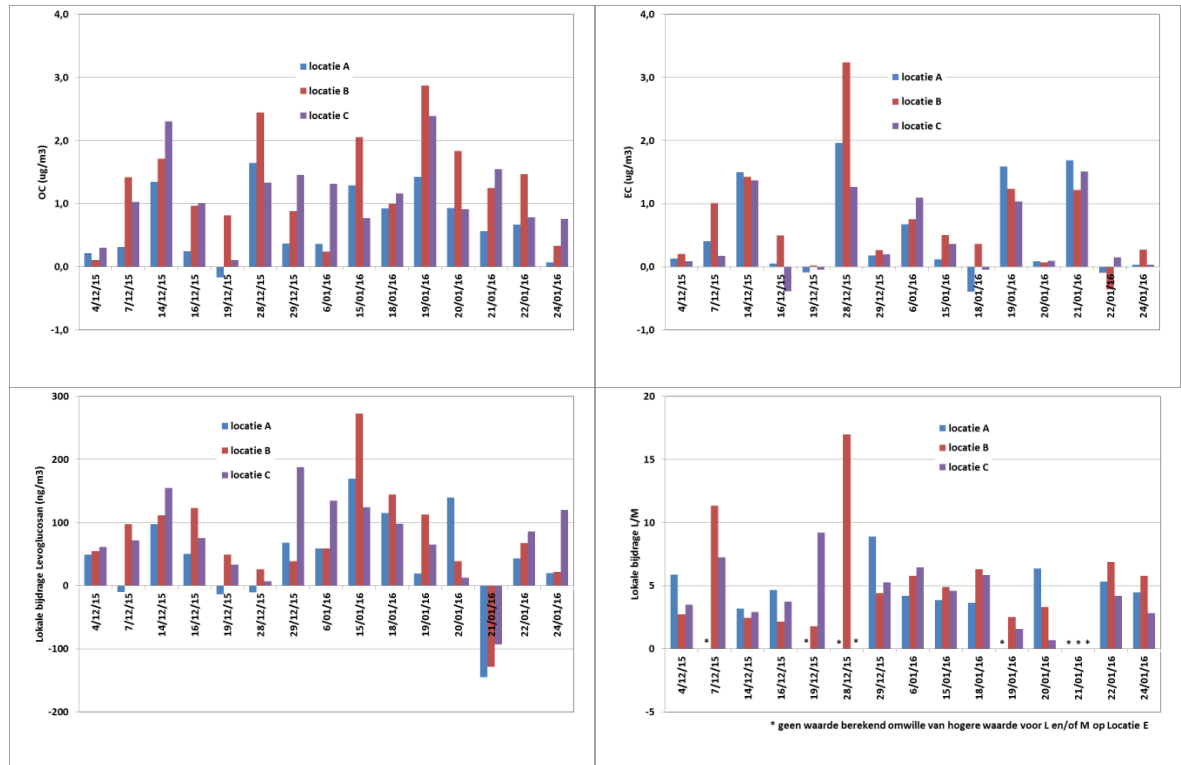
In Vlaanderen werd de bijdrage van houtverbranding in de winter bepaald op 8,6 – 11,3% voor 6 van de 7 locaties en 22% voor de locatie Hamme (gelegen in een wijk met houtverbranding).

## 5.6. LOKALE BIJDRAGE

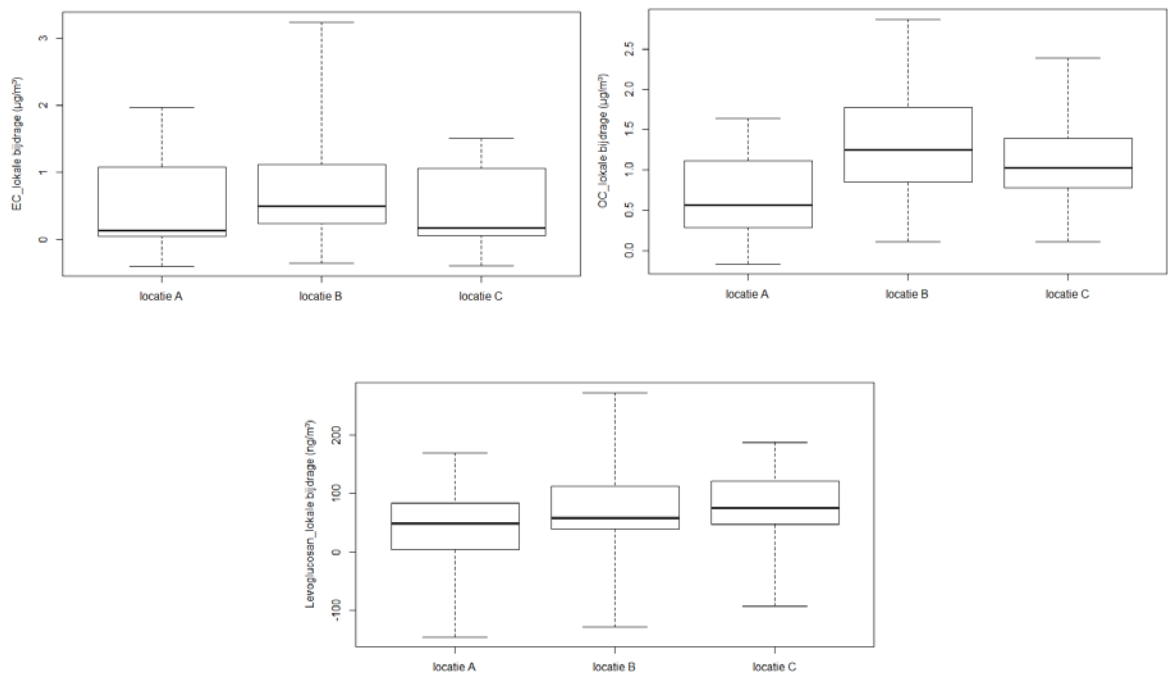
De lokale bijdrage van verschillende parameters is weergegeven in Figuur 28. Deze werd berekend door het verschil te maken van de concentratie op een locatie in het studiegebied (A,B en C) en de concentratie op de achtergrondlocatie E.

Het is duidelijk dat EC en OC een andere trend vertonen.

Gemiddeld bedraagt het verschil voor locaties A, B en C ten opzichte van E respectievelijk voor OC :  $0,68 \pm 0,55$  ;  $1,29 \pm 0,80$  ;  $1,15 \pm 0,63$   $\mu\text{g}/\text{m}^3$  en voor EC :  $0,52 \pm 0,77$  ;  $0,72 \pm 0,86$  ;  $0,46 \pm 0,61$   $\mu\text{g}/\text{m}^3$



Figuur 28: Lokale bijdrage voor OC, EC levoglucosan en L/M



Figuur 29: Boxplots voor lokale bijdrage van OC, EC en levoglucosan

## 5.7. RESULTATEN PAK

### 5.7.1. SOM PAK EN B(A)PYREEN

In Tabel 13 zijn de gemiddelde, minimum, maximum en mediaan, P25 en P75 weergegeven voor B(a)P en de som van de PAK. Van de 15 filters op alle locaties kon 1 filter van locatie A (20/1/16) niet goed geanalyseerd worden. Daarom wordt deze dag ook op de andere locaties niet meegenomen in de berekening van het gemiddelde, minimum, maximum, mediaan, P25 en P75. Op deze dag lagen de PAK-concentraties op de andere locaties vrij hoog tussen 13,23 – 16,96 ng/m<sup>3</sup> waardoor de aldus berekende gemiddelde waarde lager ligt.

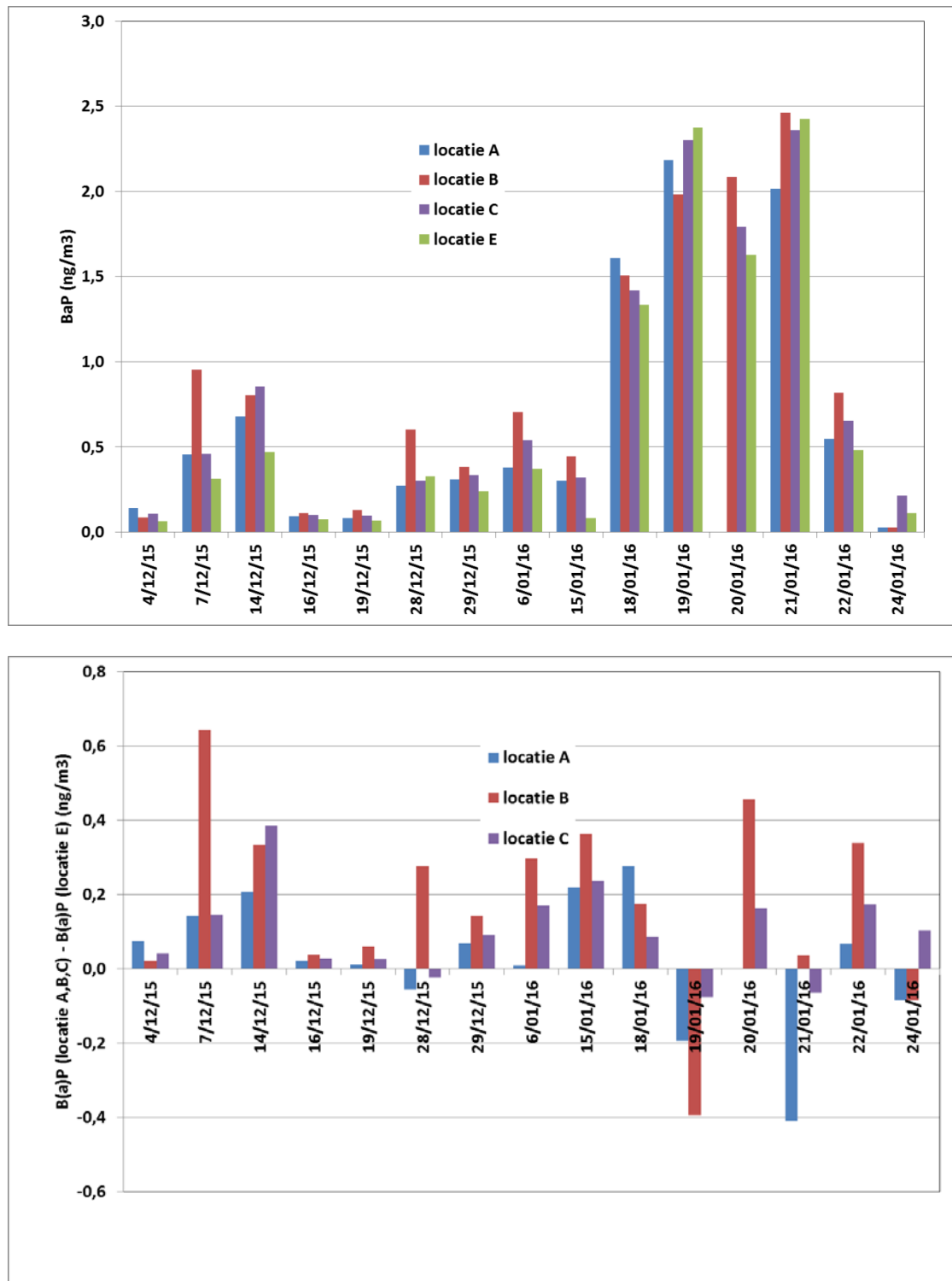
De hoogste gemiddelde B(a)P- concentratie wordt gemeten op locatie B (0,79 ng/m<sup>3</sup>), gevolgd door locatie C (0,72 ng/m<sup>3</sup>). Op locatie A liggen de concentraties iets lager (0,65 ng/m<sup>3</sup>) en de laagste gemiddelde concentratie wordt gemeten op de achtergrondlocatie (0,62 ng/m<sup>3</sup>).

De som van de PAK volgt dezelfde trend als B(a)P. De dagwaarden voor alle locaties zijn weergegeven in Figuur 30 voor B(a)P en in Figuur 31 voor de som van de PAK.

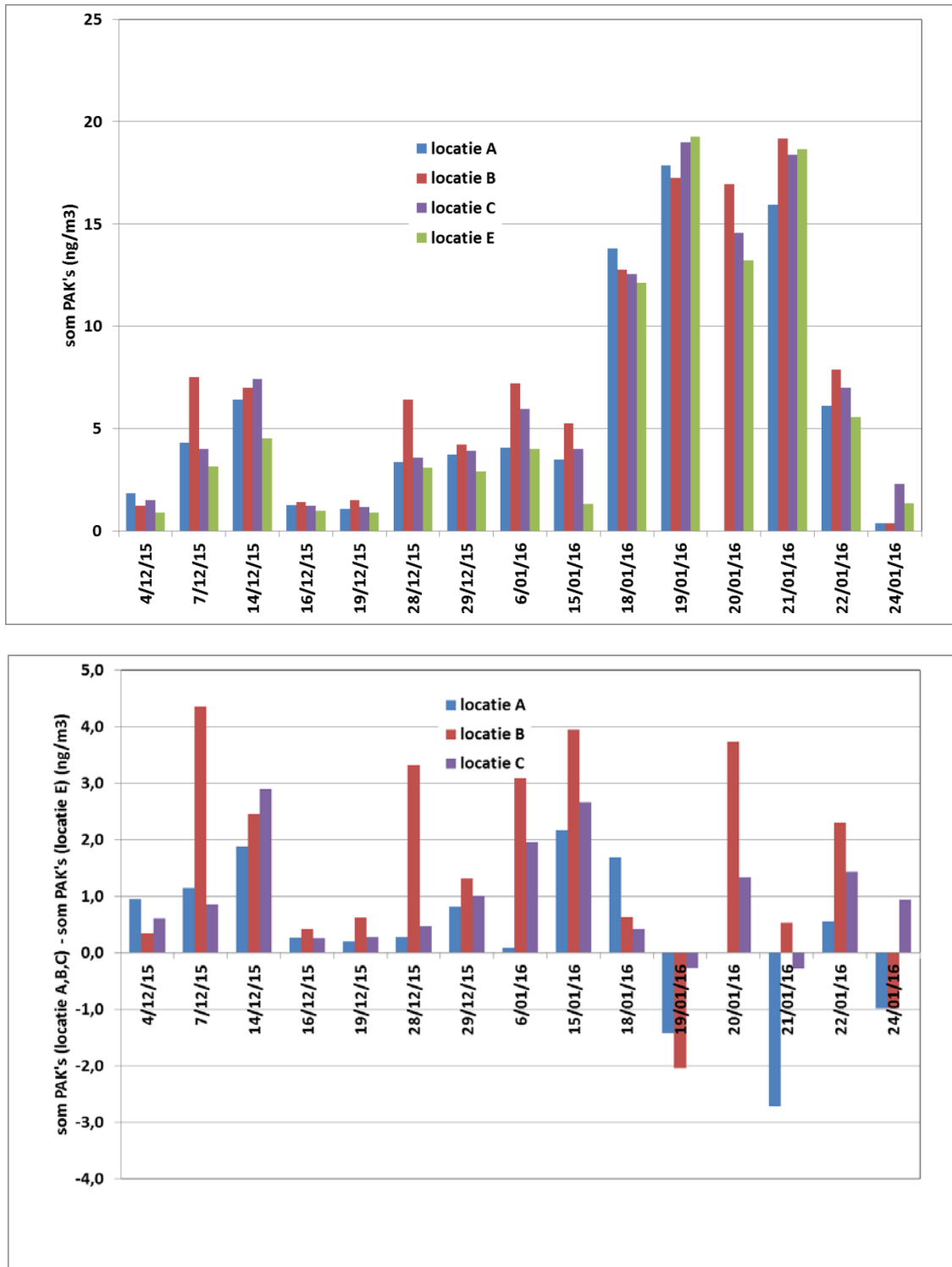
De B(a)P-concentraties in het studiegebied liggen gemiddeld respectievelijk  $0,03 \pm 0,18$  ;  $0,16 \pm 0,25$ ;  $0,09 \pm 0,12$  ng/ m<sup>3</sup> hoger op locaties A, B en C in vergelijking met de achtergrondlocatie. Voor de som van de PAK is dit respectievelijk  $0,35 \pm 1,34$  ;  $1,61 \pm 1,90$ ;  $0,97 \pm 0,95$  ng/m<sup>3</sup> hoger op locaties A, B en C in vergelijking met de achtergrondlocatie. Dit betekent een relatieve toename ten opzichte van de achtergrond van 4 – 26% voor B(a)P en 6 – 26% voor PAK.

Tabel 13: Overzicht gemiddelde, minimum, maximum, mediaan en interkwartielrange (P25 – P75) voor de som van de PAK en B(a)P

|                                 | Locatie A<br>gem (min – max)<br>mediaan (P25 – P75) | Locatie B<br>gem (min – max)<br>mediaan (P25 – P75) | Locatie C<br>gem (min – max)<br>mediaan (P25 – P75) | Locatie E<br>gem (min – max)<br>mediaan (P25 – P75) |
|---------------------------------|---|---|---|---|
| som PAK<br>(ng/m <sup>3</sup> ) | 5,98 (0,38 – 17,86)<br>3,91 (2,23 – 6,35)           | 7,09 (0,38 – 19,19)<br>6,71 (2,19 – 7,78)           | 6,58 (1,17 – 19,01)<br>4,01 (2,62 – 7,33)           | 5,63 (0,89 – 19,28)<br>3,13 (1,34 – 5,32)           |
| B(a)P<br>(ng/m <sup>3</sup> )   | 0,65 (0,03 – 2,18)<br>0,35 (0,18 – 0,53)            | 0,79 (0,03 – 2,46)<br>0,66 ( 0,19 – 0,67)           | 0,72 (0,10 – 2,36)<br>0,40 (0,24 – 0,61)            | 0,62 (0,07 – 2,42)<br>0,32 (0,12 – 0,46)            |



Figuur 30: Daggemiddelde concentraties voor B(a)P gemeten op de 4 locaties(boven) en lokale bijdrage in het studiegebied (onder)

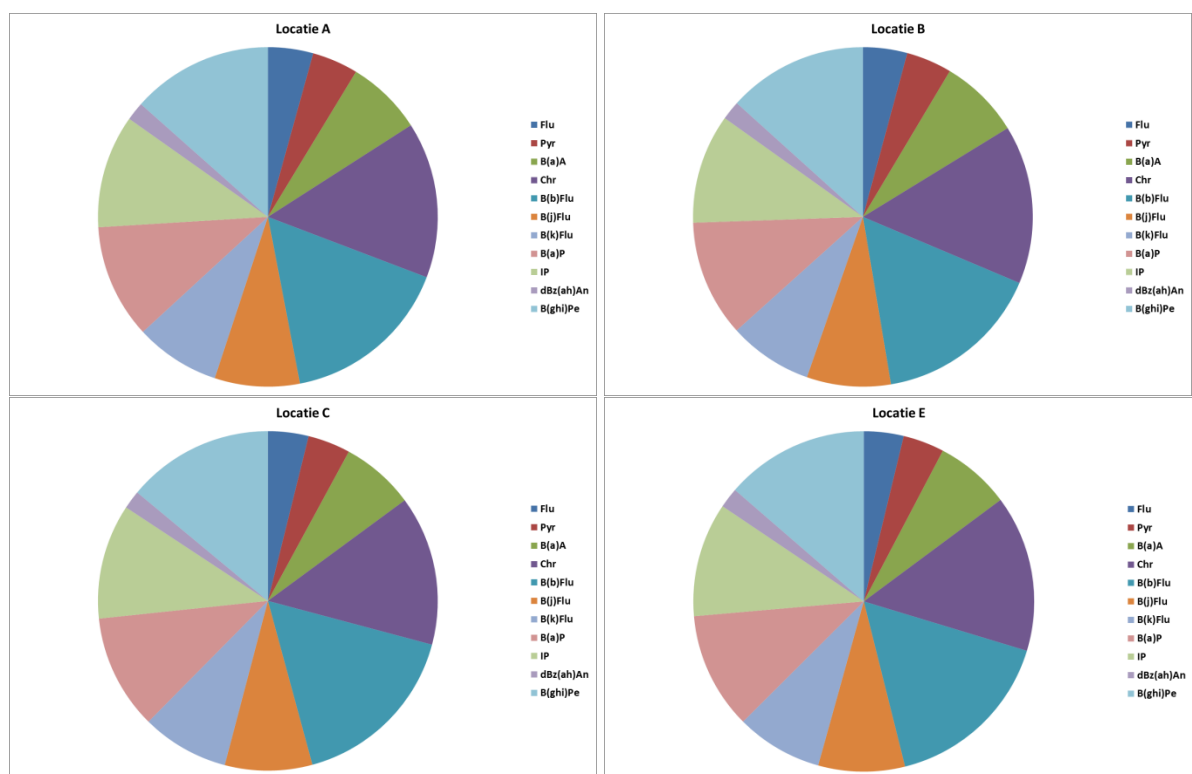


Figuur 31: Daggemiddelde concentraties voor de som van de PAK gemeten op de 4 locaties(boven) en lokale bijdrage in het studiegebied (onder)

5.7.2. SOORTEN PAK

Figuur 32 toont de relatieve bijdragen van de verschillende PAK op de vier locaties. De meest voorkomende PAK op alle locaties zijn chryseen, benzo(b)fluorantheen, benzo(ghi)peryleen en vervolgens ook benzo(a)pyreen en indeno(1,2,3-cd)pyreen. Lagere concentraties worden gemeten voor fluorantheen en pyreen. Dit in tegenstelling tot de jaargemiddelde concentraties in Vlaanderen waar fluorantheen en pyreen de belangrijkste componenten zijn op alle locaties en gemiddeld bij 40% uit maken van PAK. De bijdrage van benzo(a)pyreen bedraagt tussen 7% en 10% op de verschillende locaties in 2013. (VMM, 2014). In 2015 lag het aandeel B(a)P in PAK tussen 7% en 9% op jaarbasis. (VMM, 2016). In deze studie bedraagt het aandeel B(a)P in PAK 11% op alle locaties. De PAK-concentraties in Vlaanderen liggen hoger in de winter dan in de zomer met een winter/zomer-ratio van 6,2 voor B(a)P in 2013.

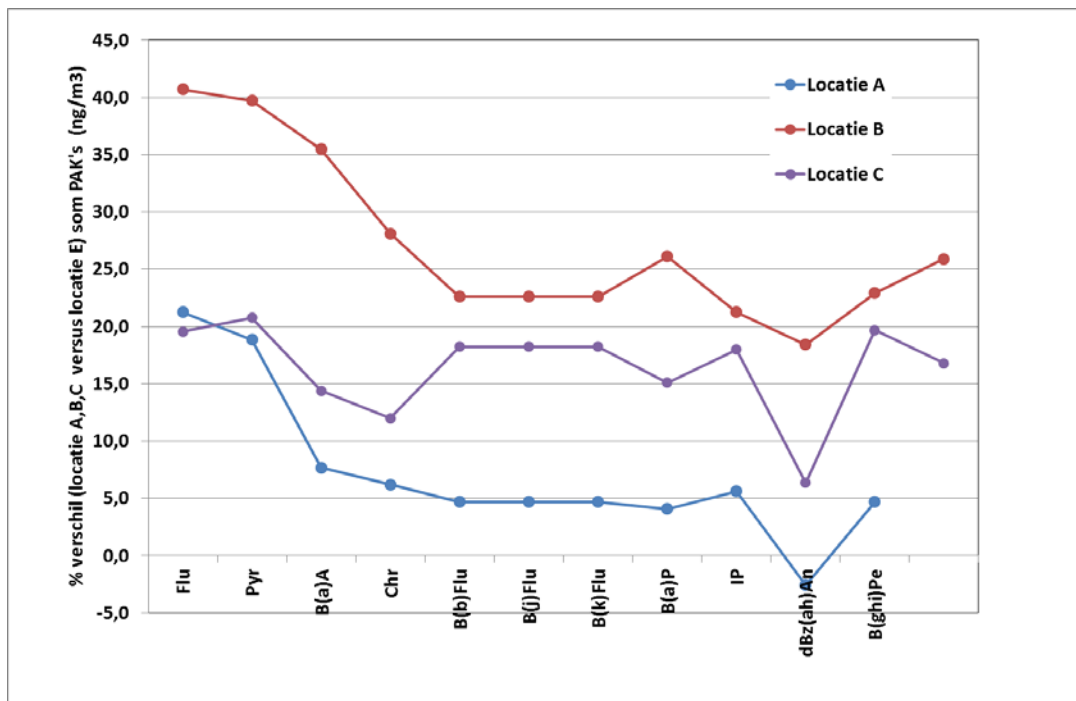
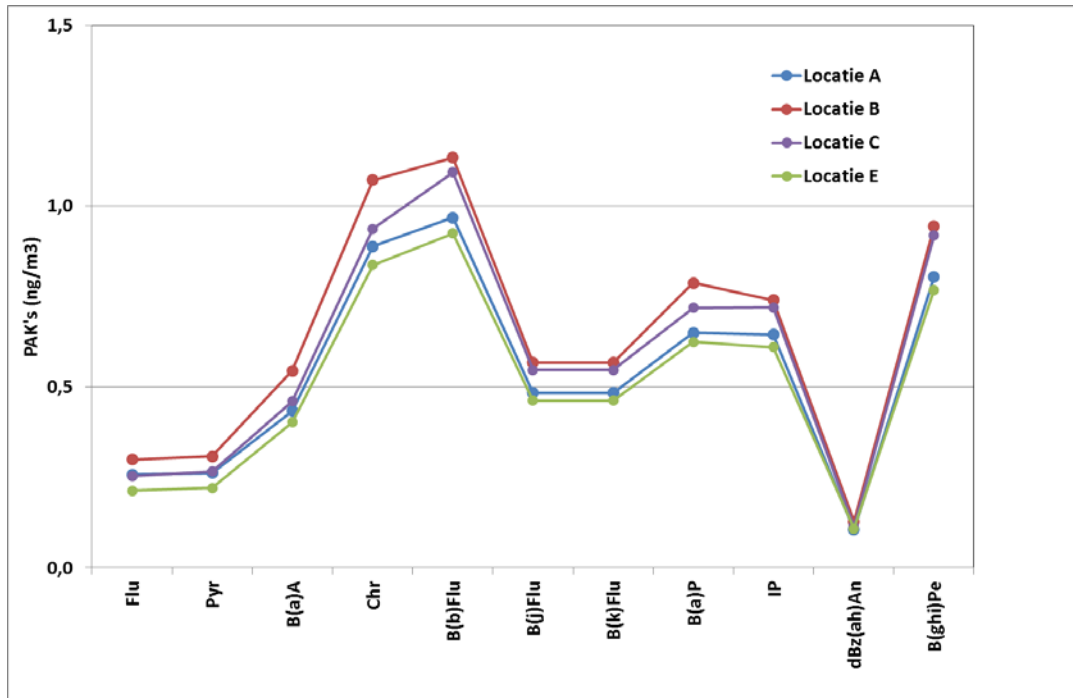
Fluorantheen, pyreen, benzo(a)anhraceen en chryseen zijn de PAK-componenten die het meest voorkomen in de deeltjesfase bij de emissiemetingen van kachels (zie verder).



Figuur 32: Samenstelling PAK op de vier locaties

Figuur 33 geeft de gemiddelde concentratie van de verschillende PAK op de 4 locaties. Hierop is ook te zien dat chryseen, benzo(b)fluorantheen en benzo(ghi)peryleen de belangrijkste componenten zijn en vervolgens ook benzo(a)pyreen en indeno(1,2,3-cd)pyreen. Het tweede deel van de figuur toont dat de verhoging ten opzichte van de achtergrond voor de meeste PAK het grootst is op locatie B, gevolgd door C en dan A.

Correlaties van de individuele PAK met houtverbrandingstracers worden verder besproken (zie 5.14.4).



Figuur 33: Gemiddelde concentraties voor verschillende PAK gemeten op de 4 locaties (boven) en % verschil ten opzichte van achtergrondlocatie (onder)

5.8. RESULTATEN AE33: BC-CONCENTRATIES EN AANDEEL HOUTVERBRANDING IN BC



Tabel 14 toont de belangrijkste resultaten van de AE33. Hierin zijn 4 van de 7 kanalen van 'BC' gegeven met name de twee UV (bij 370 en bij 470 nm) en de twee IR-kanalen (bij 880 en 950 nm). Op basis van het verschil in absorptie bij UV en IR wordt de bijdrage houtverbranding berekend. De AE33 gebruikt voor de automatische berekening (%BB) de kanalen bij 470 en 950 nm. In de literatuur worden soms ook de kanalen 370 nm en 880 nm gebruikt omdat deze beschikbaar zijn bij een dual-wavelength versie van het toestel.

*Voor BC wordt meestal het kanaal bij 880 nm gebruikt (o.a. ook bij kleinere toestellen zoals de AE51) maar zoals te zien is in*

Tabel 14 en Tabel 15 is er weinig verschil tussen deze golflengten. Voor de UV-golflengten is het verschil iets groter.

De resulterende hoeveelheid BC afkomstig van WB ( $BC_{WB}$ ) is het hoogst op locatie B (en C, ligt iets lager) en het laagst op locatie E. Locatie A ligt tussenin. De gemeten BC concentratie is (voor alle golflengten) het grootst op locatie B. Toch is het aandeel houtverbranding in BC (%BB) daar het laagst. Dit komt vermoedelijk omdat er vlak naast locatie B een drukke omleidingsweg was ten tijde van de metingen waardoor er ook een belangrijke bijdrage was van wegverkeer. Hierdoor daalt de 'relatieve' bijdrage van houtverbranding. Op de achtergrondlocatie is de concentratie aan BC het laagst, maar het aandeel houtverbranding (%BB) is er niet kleiner dan op de andere locaties. Dit geeft aan dat enkel de parameter %BB onvoldoende informatie geeft over de bijdrage van houtverbranding omdat dit ook afhangt van de hoeveelheid BC afkomstig van verkeer (of andere fossiele brandstoffen).

De gemiddelde concentraties en waarden over de dagen waarop filters werden geselecteerd voor analyse zijn samengevat in Tabel 15. In deze periode liggen de waarden hoger maar de onderlinge verhoudingen tussen de locaties zijn vergelijkbaar. De relatieve bijdrage  $BC_{WB}$  tot  $PM_{10}$  bedraagt voor de ganse periode en 5-6% en voor de periode dat filters geselecteerd zijn ongeveer 3%. Dit betekent dat de inschatting van het aandeel houtverbranding (in %) op basis van de selectie zeker geen overschatting is ondanks het feit dat de concentraties voor de geselecteerde filters hoger lagen.

De opvolging van het aandeel houtverbranding in BC in functie van de tijd worden besproken in 5.12 .

Tabel 14: Overzicht van de gemiddelde (en standaarddeviatie) resultaten van de AE33 over de ganse meetcampagne op basis van 24h-gemiddelden

|   | Locatie A<br>gem ( $\pm$ stdev) | Locatie B<br>gem ( $\pm$ stdev) | Locatie C<br>gem ( $\pm$ stdev) | Locatie E<br>gem ( $\pm$ stdev) |
|---|---------------------------------|---------------------------------|---------------------------------|---------------------------------|
| BC(370 nm)<br>( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )      | 2,27 $\pm$ 1,79                 | 3,03 $\pm$ 1,86                 | 2,56 $\pm$ 1,90                 | 1,91 $\pm$ 1,69                 |
| BC(470 nm)<br>( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )      | 1,93 $\pm$ 1,48                 | 2,59 $\pm$ 1,56                 | 2,13 $\pm$ 1,54                 | 1,56 $\pm$ 1,35                 |
| BC(880 nm)<br>( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )      | 1,49 $\pm$ 1,14                 | 2,13 $\pm$ 1,54                 | 1,62 $\pm$ 1,17                 | 1,19 $\pm$ 0,98                 |
| BC(950 nm)<br>( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )      | 1,52 $\pm$ 1,16                 | 2,14 $\pm$ 1,28                 | 1,65 $\pm$ 1,19                 | 1,19 $\pm$ ,097                 |
| BB(%) **  | 27,2 $\pm$ 5,9                  | 24,6 $\pm$ 4,4                  | 28,0 $\pm$ 9,1                  | 28,5 $\pm$ 6,0                  |
| alpha   | 1,34 $\pm$ 0,07                 | 1,31 $\pm$ 0,05                 | 1,36 $\pm$ 0,13                 | 1,35 $\pm$ 0,07                 |
| PM <sub>WB</sub> ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) * | 7,8 $\pm$ 6,5                   | 8,9 $\pm$ 6,1                   | 9,3 $\pm$ 7,6                   | 7,2 $\pm$ 7,3                   |
| PM <sub>WB</sub> /PM <sub>10</sub> (%)          | 44,1 $\pm$ 16,2                 | 47,7 $\pm$ 14,4                 | 47,8 $\pm$ 28,2                 | 42,2 $\pm$ 17,4                 |
| BC <sub>WB</sub> ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )   | 0,41 $\pm$ 0,07                 | 0,53 $\pm$ 0,06                 | 0,46 $\pm$ 0,11                 | 0,34 $\pm$ 0,06                 |
| BC <sub>WB</sub> /PM <sub>10</sub> (%)          | 2,3 $\pm$ 0,9                   | 2,8 $\pm$ 0,9                   | 2,4 $\pm$ 1,0                   | 2,1 $\pm$ 0,9                   |
| BC <sub>WB</sub> /PM <sub>WB</sub> (%)          | 5,3 $\pm$ 0,4                   | 6,0 $\pm$ 1,0                   | 5,3 $\pm$ 0,9                   | 5,1 $\pm$ 0,3                   |

\* PM<sub>WB</sub> berekend op basis van literatuurwaarde voor C<sub>2</sub> = 675000  $\mu\text{g m}^{-2}$

\*\* BB(%) = BC<sub>WB,950</sub>/BC<sub>950</sub> berekend via de Aethalometersoftware

Tabel 15: Overzicht van de gemiddelde, minimum, maximum, mediaan en interkwartielrange (P25 – P75) voor resultaten van de AE33 en aandeel houtverbranding voor de dagen waarop filters geselecteerd zijn.

|  | Locatie A<br>gem (min – max)<br>mediaan (P25 – P75) | Locatie B<br>gem (min – max)<br>mediaan (P25 – P75) | Locatie C<br>gem (min – max)<br>mediaan (P25 – P75) | Locatie E<br>gem (min – max)<br>mediaan (P25 – P75) |
|--|---|---|---|---|
| BC(880 nm)<br>( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )       | 2,70 (1,02 – 6,27)<br>2,43 (1,33 – 3,38)            | 3,48 (1,40 – 6,85)<br>3,47 (2,26 – 4,58)            | 2,81 (1,11 – 6,66)<br>2,31 (1,57 – 3,29)            | 2,21 (0,81 – 5,47)<br>1,91 (1,12 – 2,66)            |
| BC(950 nm)<br>( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )       | 2,75 (1,04 – 6,40)<br>2,47 (1,36 – 3,46)            | 3,49 (1,41 – 6,89)<br>3,51 (2,27 – 4,62)            | 2,86 (1,13 – 6,79)<br>2,36 (1,60 – 3,35)            | 2,21 (0,81 – 5,45)<br>1,92 (1,10 – 2,66)            |
| %BB **   | 27,2 (20,1 – 36,8)<br>26,7 (23,9 – 30,1)            | 24,5 (16,9 – 35,8)<br>24,2 (20,2 – 28,0)            | 29,3 (18,3 – 40,6)<br>29,6 (24,2 – 34,0)            | 29,1 (15,2 – 37,5)<br>28,0 (26,3 – 34,3)            |
| alpha  | 1,34 (1,26 – 1,45)<br>1,34 (1,30 – 1,38)            | 1,31 (1,22 – 1,44)<br>1,31 (1,26 – 1,35)            | 1,36 (1,23 – 1,47)<br>1,37 (1,31 – 1,42)            | 1,36 (1,18 – 1,46)<br>1,35 (1,33 – 1,42)            |
| BC <sub>WB</sub><br>( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) | 0,76 (0,29 – 1,77)<br>0,60 (0,34 – 0,92)            | 0,86 (0,28 – 1,77)<br>0,74 (0,53 – 1,00)            | 0,86 (0,27 – 1,85)<br>0,77 (0,41 – 1,09)            | 0,70 (0,12 – 2,04)<br>0,56 (0,30 – 0,83)            |
| BC <sub>FF</sub><br>( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) | 1,99 (0,74 – 4,63)<br>1,90 (1,01 – 2,71)            | 2,63 (1,12 – 5,22)<br>2,82 (1,77 – 3,42)            | 2,00 (0,79 – 4,94)<br>1,83 (1,06 – 2,40)            | 1,51 (0,65 – 3,41)<br>1,42 (0,81 – 1,83)            |
| PM <sub>WB</sub><br>( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) | 14,4 (5,6 – 33,4)<br>11,4 (7,5 – 18,2)              | 15,0 (5,2 – 34,1)<br>13,5 (9,6 – 17,9)              | 15,7 (5,4 – 35,9)<br>13,5 (8,3 – 21,1)              | 14,0 (2,5 – 41,5)<br>11,2 (6,4 – 16,6)              |
| PM <sub>10</sub><br>( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) | 26,7 (12,9 – 61,7)<br>21,1 (15,4 – 32,1)            | 27,9 (12,2 – 61,8)<br>26,3 (16,3 – 34,0)            | 27,6 (14,5 – 62,1)<br>24,9 (16,9 – 31,8)            | 23,8 (11,3 – 59,1)<br>17,9 (13,5 – 29,7)            |
| BC <sub>WB</sub> /PM <sub>10</sub>               | 2,8 $\pm$ 0,7                                       | 3,2 $\pm$ 0,8                                       | 3,0 $\pm$ 0,9                                       | 2,8 $\pm$ 1,0                                       |
| PM <sub>WB</sub> /PM <sub>10</sub>               | 53,2 $\pm$ 13,7                                     | 54,6 $\pm$ 14,9                                     | 55,3 $\pm$ 15,5                                     | 54,6 $\pm$ 19,1                                     |

\* PM<sub>WB</sub> berekend op basis van literatuurwaarde voor C<sub>2</sub> = 675000  $\mu\text{g m}^{-2}$

\*\* BB(%) = BC<sub>WB,950</sub>/BC<sub>950</sub> berekend via de Aethalometersoftware

### 5.9. AANDEEL HOUTVERBRANDING IN PM OP BASIS VAN DE AE33

Zoals eerder gezegd is houtverbranding vooral verantwoordelijk voor zogenaamd ‘brown carbon’, wat een grotere bijdrage heeft in PM dan  $BC_{WB}$ . De gemeten  $b_{abs,470,WB}$  kan gebruikt worden als tracer voor de totale PM van houtverbranding.

De massa PM afkomstig van houtverbranding kan berekend worden door  $b_{abs,4750,WB}$  te vermenigvuldigen met een specifieke factor die de absorptiesterkte per massa houtverbrandingspolluent (zogenaamde brown carbon) bij deze golflengte weergeeft. Dit kan gebeuren door:

- Gebruik van literatuurwaarden voor deze factor
- Deze factor af te leiden op basis van simultane metingen van koolstofhoudend aerosol en regressie-analyse

Meer uitleg over de methode is weergegeven in 3.7.2.

#### 5.9.1. GEBRUIK VAN LITERATUURWAARDEN

Voor een eerste inschatting van  $PM_{WB}$  op basis van de Aethalometermethode werden literatuurwaarden gebruikt.

Fuller et al. (2014) gebruikten een factor  $675000 \mu\text{g m}^{-2}$ , gebaseerd op een aantal studies. Deze factor werd ook in deze studie toegepast. De gemiddelde waarden zijn weergegeven in Tabel 15 hierboven. Gemiddeld over de ganse meetperiode bedraagt de bijdrage BC afkomstig van houtverbranding (%BB) tussen 24,6 en 28,5%; voor de periode waarvoor filters geselecteerd zijn bedraagt 24,5 en 29,3%.

De resulterende bijdrage aan BC ligt tussen 0,41 en 0,53  $\mu\text{g/m}^3$  in het studiegebied in vergelijking met 0,34 op de achtergrondlocatie. Voor de dagen waarop filters geselecteerd zijn liggen alle waarden hoger met name 0,70  $\mu\text{g/m}^3$  op de achtergrondlocatie en tussen 0,76 en 0,86  $\mu\text{g/m}^3$  in het studiegebied. Ook de berekende bijdrage aan  $PM_{10}$  ligt hoger in het studiegebied in vergelijking met de achtergrondlocatie.

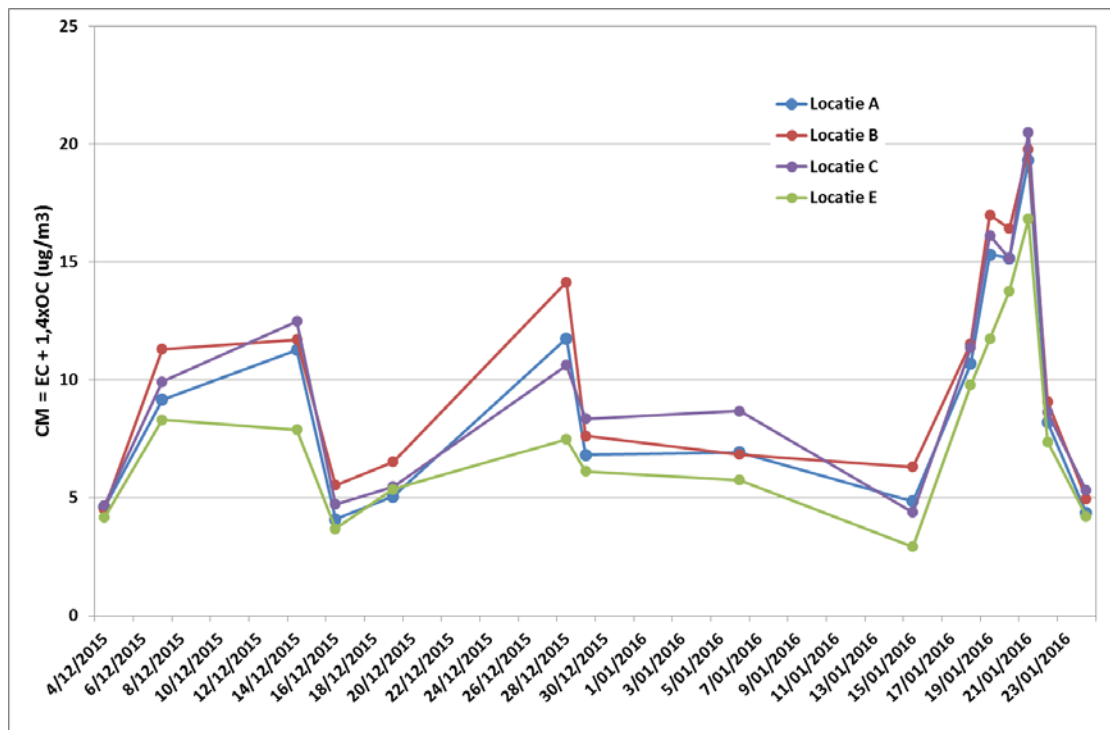
Het % houtverbranding in  $PM_{10}$  berekend met de Aethalometermethode bedraagt tussen 42,2 – 47,8 % voor de ganse periode in vergelijking met 53,2 – 55,3 % voor de periode waarop ook levoglucosan bepaald is. Mogelijk heeft het aandeel houtverbranding dus een grotere impact op dagen waarop de concentraties al hoog zijn.

#### 5.9.2. AAN DE HAND VAN REGRESSIE MET RESULTATEN VAN EC/OC-METINGEN

In een tweede stap werd de factor om het aandeel houtverbranding op  $PM_{10}$  te berekenen op basis van eigen metingen afgeleid. Wanneer via de Aethalometermethode de absorptiecoëfficiënt voor hout en verkeer ( $b_{abs,950,FF}$   $b_{abs,4750,WB}$ ) bepaald zijn en  $CM_{totaal}$  bepaald is uit de metingen van OC/EC (Figuur 34) kan de hoeveelheid aerosol afkomstig van houtverbranding ( $CM_{WB}$ ) berekend worden via onderstaande regressie waarbij  $C_1$  -  $C_3$  afgeleid worden:

$$CM_{totaal} = C_1 \times b_{abs,950,FF} + C_2 \times b_{abs,4750,WB} + C_3$$

Het intercept  $C_3$  is een maat voor de hoeveelheid organisch aerosol dat niet verbrandingsgerelateerd is. Ook filterblanco's maken deel uit van het intercept wanneer deze niet zijn afgetrokken. De berekening wordt uitgevoerd met intercept en zonder intercept ( $C_3 = 0$ ). De verwachting is dat de hoeveelheid organisch aerosol dat niet verbrandingsgerelateerd is te verwaarlozen is in de winter. De coëfficiënt  $C_1$  wordt zowel in de regressie bepaald en vast gehouden (=266000, berekening zie 3.7.2).



Figuur 34: Hoeveelheid  $CM_{\text{totaal}}$  bepaald uit EC en OC

Tabel 16 geeft de resultaten van de regressie-analyse. Hieruit blijkt dat de waarde voor  $C_2$  veel lager ligt dan de literatuurwaarden. De beste  $R^2$  wordt bekomen wanneer  $C_3 = 0$  en  $C_1$  variabel is. De resulterende coëfficiënten ( $C_1 - C_3$ ) worden bepaald door de aannames voor de berekening van  $CM_{\text{totaal}}$  en het al dan niet corrigeren voor OC blancowaarden. De resultaten voor verschillende aannames zijn weergegeven in de tabel en worden hieronder besproken.

Wanneer we gebruik maken van een waarde 1,4 voor de factor ( $f_{\text{OC-OM}}$ ) voor de omzetting van OC naar OM en geen correctie doen voor OC-blanco bedraagt  $C_2 = 152980 \mu\text{g}/\text{m}^2$  voor intercept = 0. Wanneer we voor  $C_1$  een vaste waarde (266000) invullen op basis van berekening ligt de  $C_2$ -waarde iets hoger (217143). Als we het intercept niet gelijk stellen aan 0 resulteert dit in een iets lagere gefitte waarde voor  $C_1$  en  $C_2$ .

De gebruikte **factor voor de berekening van OM uit OC ( $f_{\text{OC-OM}}$ )** is belangrijk bij de berekening van  $CM_{\text{totaal}}$ . Anderzijds zijn vb. ook het gebruikte protocol voor EC/OC van belang en het eventueel gelijkstellen van EC aan BC. Omdat de hoeveelheid OC veel groter is dan EC (EC/TC gemiddeld tussen 0,13 – 0,18) zal vooral de gebruikte  $f_{\text{OC-OM}}$  1,4 – welke voor de winter waarschijnlijk een onderschatting is – een belangrijke impact hebben.

Wanneer we een waarde van 1,8 gebruiken in plaats van 1,4 resulteert dit in een  $C_2 = 201280$ . Verhogen van deze factor leidt ertoe dat de factor  $C_2$  ongeveer in dezelfde mate verhoogd wordt

als de resulterende  $CM_{\text{totaal}}$  en resulteert ook in een verhoging van het intercept met dezelfde factor. Wanneer door 0 gefit wordt is het verschil voor  $C_2$  groter.

In deze studie werden de gemeten OC-concentraties niet gecorrigeerd voor veldblanco's (zie 3.6.1). Systematische **veldblanco voor OC** vertaalt zich in een hoger intercept. Wanneer we een correctie doen voor blanco en gebruik maken van een veldblanco-waarde van  $0,8 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (op basis van uitgebreide blanco-validatie van VMM) stellen we het volgende vast:

- $C_1$  en  $C_2$ -waarden veranderen niet wanneer ook  $C_3$  variabel gehouden wordt,  $C_3$  vermindert met  $0,8 \mu\text{g}/\text{m}^3$
- $C_2$  stijgt en  $C_1$  daalt bij intercept = 0
- $C_2$  daalt bij vaste  $C_1$  en intercept = 0

De resulterende  $PM_{\text{WB}}$ -waarden voor de verschillende locaties op basis van regressies met  $C_1$  en  $C_2$  gefit en  $C_3 = 0$  zijn samengevat in

Tabel 17.  $PM_{WB}$  werd berekend voor verschillende aannames:

- $C_2 = 152980$  ( $f_{OC-OM} = 1,4$ )
- $C_2 = 201280$  ( $f_{OC-OM} = 1,8$ )
- $C_2 = 388220$  ( $f_{OC-OM} = 1,8$  met aftrek van OC blanco =  $0,8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ )

De berekende waarden zijn veel lager dan deze bepaald op basis van de literatuurwaarde  $675000 \mu\text{g}/\text{m}^2$  (Fuller et al., 2014).

Tabel 16: Resultaten regressie  $CM_{\text{totaal}}$  versus  $b_{\text{abs},950,FF}$  en  $b_{\text{abs},4750,WB}$

$CM_{\text{totaal}}$ .berekend met  $f_{OC-OM} = 1,4$

|                              | $R^2$ | $C_1$              | $C_2$              | $C_3$           |
|------------------------------|-------|--------------------|--------------------|-----------------|
| met intercept                | 0,93  | $314120 \pm 29280$ | $143120 \pm 17360$ | $1,37 \pm 0,32$ |
| zonder intercept             | 0,98  | $369990 \pm 29670$ | $152980 \pm 19540$ | = 0             |
| vaste $C_1$ met intercept    | 0,72  | = 266000           | $165020 \pm 11290$ | $1,61 \pm 0,28$ |
| vaste $C_1$ zonder intercept | 0,93  | = 266000           | $217143 \pm 7452$  | = 0             |

$CM_{\text{totaal}}$ .berekend met  $f_{OC-OM} = 1,8$

|                              | $R^2$ | $C_1$              | $C_2$              | $C_3$           |
|------------------------------|-------|--------------------|--------------------|-----------------|
| met intercept                | 0,93  | $374330 \pm 35130$ | $188470 \pm 20830$ | $1,78 \pm 0,39$ |
| zonder intercept             | 0,98  | $446910 \pm 36320$ | $201280 \pm 23920$ | = 0             |
| vaste $C_1$ met intercept    | 0,82  | = 266000           | $237800 \pm 14300$ | $2,32 \pm 0,37$ |
| vaste $C_1$ zonder intercept | 0,94  | = 266000           | $312907 \pm 9903$  | = 0             |

$CM_{\text{totaal}}$ .berekend met  $f_{OC-OM} = 1,8$  en correctie voor veldblanco OC ( $0,8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ )

|                              | $R^2$ | $C_1$              | $C_2$               | $C_3$           |
|------------------------------|-------|--------------------|---------------------|-----------------|
| met intercept                | 0,93  | $374330 \pm 35130$ | $188470 \pm 20830$  | $0,34 \pm 0,39$ |
| zonder intercept             | 0,98  | $190930 \pm 20600$ | $388220 \pm 31280$  | = 0             |
| vaste $C_1$ met intercept    | 0,82  | = 266000           | $237800 \pm 14300$  | $0,88 \pm 0,37$ |
| vaste $C_1$ zonder intercept | 0,94  | = 266000           | $2663360 \pm 80210$ | = 0             |

Tabel 17: Resultaten  $PM_{WB}$  aan de hand van  $C_2 = 152980, 201280$  en  $388220$ 

|  | Locatie A<br>gem (min – max) | Locatie B<br>gem (min – max) | Locatie C<br>gem (min – max) | Locatie E<br>gem (min – max) |
|--|------------------------------|------------------------------|------------------------------|------------------------------|
| $PM_{WB}$ ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )<br>$C_2 = 152980$ | 3,27 (1,27 – 7,57)           | 3,40 (1,19 – 7,72)           | 3,56 (1,22 – 8,14)           | 3,17 (0,57 – 9,41)           |
| $PM_{WB}$ ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )<br>$C_2 = 201280$ | 4,30 (1,67 – 9,96)           | 4,47 (1,56 – 10,16)          | 4,69 (1,61 – 10,71)          | 4,17 (0,74 – 12,38)          |
| $PM_{WB}$ ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )<br>$C_2 = 388220$ | 8,30 (3,22 – 19,22)          | 8,63 (3,01 – 19,59)          | 9,04 (3,10 – 20,66)          | 8,04 (1,44 – 23,87)          |

### 5.10. AANDEEL HOUTVERBRANDING IN $PM_{10}$ OP BASIS VAN DE TRACERMETHODE MET LEVOGLUCOSAN

De resultaten voor het aandeel houtverbranding in OC en  $PM_{10}$  berekend met de tracer methode en de omrekeningsfactor 10,7 zijn weergegeven in Tabel 18. Het gemiddeld aandeel houtverbranding in  $PM_{10}$  bedraagt  $3,85 \mu\text{g}/\text{m}^3$  op de achtergrondlocatie en ligt tussen 4,31 en  $4,66 \mu\text{g}/\text{m}^3$  in het studiegebied wat overeenkomt met een toename tot  $0,81 \mu\text{g}/\text{m}^3$  in het studiegebied.

Deze waarden zijn van dezelfde grootteorde als deze van eerdere Chemkar studie (Chemkar III) waarbij de gemiddelde bijdrage in de wintermaanden  $1,7 - 6,0 \mu\text{g}/\text{m}^3$  bedroeg voor de verschillende stations met een gemiddelde van  $3,0$  (alle stations). Deze waarden liggen lager dan sommige andere literatuurwaarden:  $1,8 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (Fuller et al., 2014).

Het verschil in  $PM_{10}$  met de achtergrond voor dezelfde periode (geselecteerde filters) bedraagt tot  $4,1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , dit betekent dat 20% van het verschil in  $PM_{10}$  verklaard kan worden door houtverbranding. Wanneer we de meer recentere factor (22,6) van Maenhaut et al. (2016) zouden gebruiken kunnen we ca. 40% van de lokale toename aan PM toewijzen aan houtverbranding.

Tabel 18: Aandeel houtverbranding ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) in OC en  $PM_{10}$  berekend met de tracer methode (levoglucosan)

|   | Locatie A<br>gem (min – max)<br>mediaan (P25 – P75) | Locatie B<br>gem (min – max)<br>mediaan (P25 – P75) | Locatie C<br>gem (min – max)<br>mediaan (P25 – P75) | Locatie E<br>gem (min – max)<br>mediaan (P25 – P75) |
|---|---|---|---|---|
| aandeel hout in OC<br>( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )        | 2,25 (0,80 – 4,75)<br>1,92 (1,18 – 3,16)            | 2,42 (1,03 – 4,52)<br>1,97 (1,41 – 3,28)            | 2,43 (1,06 – 4,50)<br>2,34 (1,33 – 3,27)            | 2,01 (0,39 – 5,01)<br>1,83 (0,89 – 2,57)            |
| aandeel hout in $PM_{10}$<br>( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) | 4,31 (1,53 – 9,10)<br>3,68 (2,26 – 6,05)            | 4,63 (1,97 – 8,65)<br>3,78 (2,71 – 6,28)            | 4,66 (2,02 – 8,61)<br>4,47 (2,55 – 6,26)            | 3,85 (0,75 – 9,60)<br>3,50 (1,70 – 4,91)            |

### 5.11. VERGELIJKING VAN AE33 EN DE TRACERMETHODE

De correlatie tussen PM afkomstig van houtverbranding berekend met de Aethalometermethode versus die bekomen via de tracer methode wordt weergegeven in Figuur 35. De verschillende locaties zijn in andere kleuren (volle symbolen) weergegeven. De berekende bijdrage houtverbranding met beide methoden vertoont een goede correlatie. De absolute verschillen zijn echter groot wanneer we de PM/L omrekeningsfactor 10,7 en de literatuurwaarden gebruiken voor



de coëfficiënt ( $C_2 = 675000$ ) om  $b_{abs,470}$  om te zetten in  $PM_{WB}$ . Wanneer we de regressielijn door de oorsprong laten gaan, zien we dat de inschatting van PM afkomstig van houtverbranding via de Aethalometermethode bij deze aannames 3,47 keer hoger ligt in vergelijking met de tracermethode.

Dit kan deels te wijten zijn aan onderschatting door de tracermethode. Secundair organisch aerosol kan ervoor zorgen dat de werkelijke factor hoger is dan 10,7.

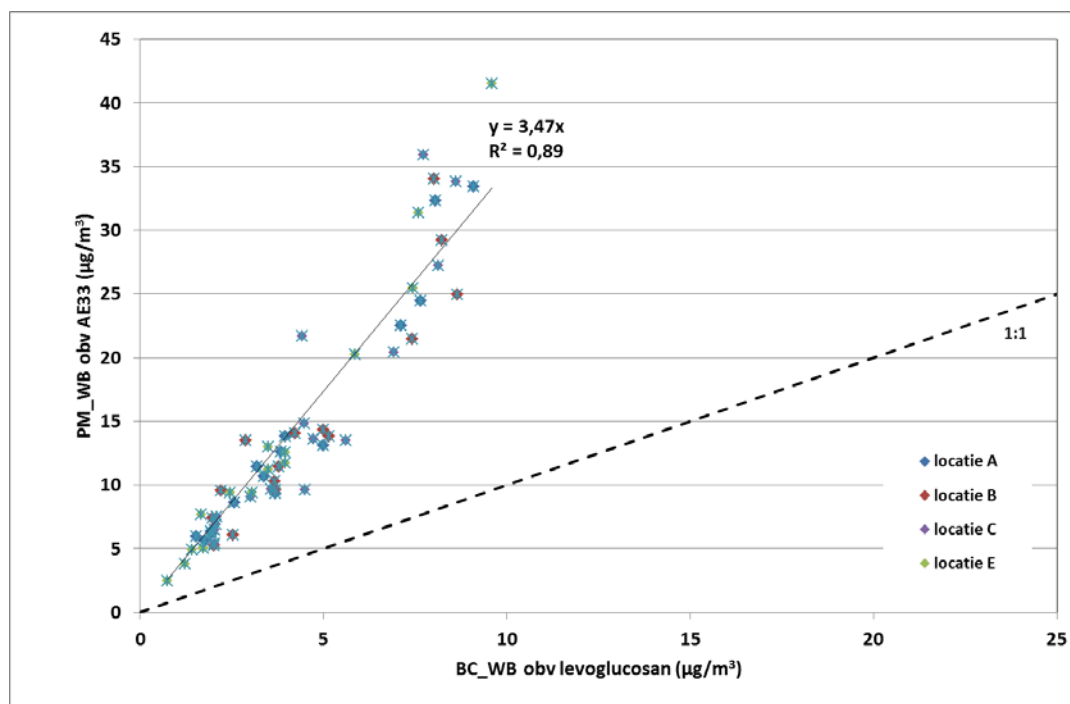
In een recente publicatie van Maenhaut et al. (2016) werd ook ingeschat dat de huidige factor 10,7 voor Vlaanderen te laag is en werd een nieuwe factor van 22,56 bepaald op basis van PMF. De aldus bepaalde factor is mogelijk aan de hoge kant omwille van secundaire aerosolvorming en eventuele afbraak van levoglucosan wanneer de bron verderaf gelegen is. Volgens Zang et al. (2010) zijn vooral hydroxylradicalen verantwoordelijk voor de afbraak van levoglucosan maar is dit proces niet belangrijk in wintermaanden wanneer fotochemie beperkt is. Ook op basis van emissiemetingen werd aangetoond dat de factor van 10,7 aan de lage kant is. Er is echter een verschil met immissiemetingen omdat in het geval van emissiemetingen de bijdrage van secundaire aerosolvorming beperkt is en daarnaast ook de afbraak van levoglucosan beperkt is.

In Tabel 19 worden de resultaten van de berekening van  $PM_{WB}$  aan de hand van tracermethode met de factor 22,56 weergegeven.

In een tweede stap van de Aethalometermethode werd de coëfficiënt ( $C_2$ ) bepaald uit regressie analyse tussen  $CM_{\text{totaal}}$  versus  $b_{abs,950,FF}$  en  $b_{abs,4750,WB}$ , waarbij  $CM_{\text{totaal}}$  berekend werd uit EC en OC gemeten op de filter. De aldus bepaalde coëfficiënt ( $C_2$ ) was veel lager en ook de uiteindelijke  $PM_{WB}$ . Deze berekening is echter gebaseerd op een beperkt aantal analyses (15 filters op 4 locaties) en we kunnen niet met zekerheid stellen dat deze coëfficiënt kan toegepast worden op andere dagen. In Tabel 19 zijn de resultaten van  $PM_{WB}$  berekend via de Aethalometermethode voor verschillende aannames bij de berekening van  $C_2$  weergegeven (zie 3.7.2).

We stellen vast dat de Aethalometermethode (met  $C_2$  berekend via regressie) resulteert in een waarde voor  $PM_{WB}$  die ligt tussen de levoglucosan-methode op basis van factor 10,7 en 22,56 en afhangt van de gebruikte waarde voor omzetting van OC naar OM en correctie voor OC-blanco van de filters. Enkel wanneer we gebruik maken van  $f_{OC-OM} = 1,4$  – waarvan we weten dat deze aan de lage kant is – ligt de berekende waarde voor  $PM_{WB}$  lager. Wanneer gebruik gemaakt wordt van literatuurwaarden voor  $C_2$  ligt de berekende  $PM_{WB}$ -waarde hoger dan de tracermethode (voor beide factoren).

Op basis van bovenstaande kunnen we stellen dat bij het gebruik van de Aethalometermethode in Vlaanderen verder onderzocht moet worden welke de meest geschikte coëfficiënt is op basis van EC/OC-metingen.



Figuur 35: Correlatie PM afkomstig van houtverbranding berekend via de Aethalometermethode en de tracermethode

Tabel 19: Resultaten  $PM_{WB}$  berekend via tracermethode en Aethalometermethode,  $PM_{10}$  massa en %  $PM_{WB}$  in  $PM_{10}$  voor de vier locaties

| methode<br>$PM_{WB}$<br>( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) | Locatie A<br>gem (min – max)<br>% $PM_{WB}$ in $PM_{10}$ | Locatie B<br>gem (min – max)<br>% $PM_{WB}$ in $PM_{10}$ | Locatie C<br>gem (min – max)<br>% $PM_{WB}$ in $PM_{10}$ | Locatie E<br>gem (min – max)<br>% $PM_{WB}$ in $PM_{10}$ |
|--|--|--|--|--|
| Aethalometermethode<br>$C_2$ literatuur (675000)     | 14,4 (5,6 – 33,4)<br>53,2 ± 13,7%                        | 15,0 (5,2 – 34,1)<br>54,6 ± 14,9%                        | 15,7 (5,4 – 35,9)<br>55,3 ± 15,5%                        | 14,0 (2,5 – 41,5)<br>54,6 ± 19,1%                        |
| Aethalometer methode<br>$C_2 = 152980^*$             | 3,27 (1,27 – 7,57)<br>12,1 ± 3,1%                        | 3,40 (1,19 – 7,72)<br>12,4 ± 3,4%                        | 3,56 (1,22 – 8,14)<br>12,5 ± 3,5%                        | 3,17 (0,57 – 9,41)<br>12,4 ± 4,3%                        |
| Aethalometer methode $PM_{WB}$<br>$C_2 = 201280^*$   | 4,30 (1,67 – 9,96)<br>15,9 ± 4,1%                        | 4,47 (1,56 – 10,16)<br>16,3 ± 4,4%                       | 4,69 (1,61 – 10,71)<br>16,5 ± 4,6%                       | 4,17 (0,74 – 12,38)<br>16,3 ± 5,7%                       |
| Aethalometer methode $PM_{WB}$<br>$C_2 = 388220^*$   | 8,30 (3,22 – 19,22)<br>30,6 ± 7,9%                       | 8,63 (3,01 – 19,59)<br>31,4 ± 8,6%                       | 9,04 (3,10 – 20,66)<br>31,8 ± 8,9%                       | 8,04 (1,44 – 23,87)<br>31,4 ± 11,0%                      |
| Levoglucosan<br>(factor 10,7)                        | 4,31 (1,53 – 9,10)<br>16,4 ± 5,1%                        | 4,63 (1,97 – 8,65)<br>17,3 ± 5,2%                        | 4,66 (2,02 – 8,61)<br>17,5 ± 5,8%                        | 3,85 (0,75 – 9,60)<br>15,7 ± 5,7%                        |
| Levoglucosan<br>(factor 22,56)                       | 9,10 (3,22 – 19,18)<br>34,6 ± 10,8%                      | 9,75 (4,15 – 18,24)<br>36,4 ± 11,0%                      | 9,82 (4,27 – 18,15)<br>36,8 ± 12,3%                      | 8,11 (1,58 – 20,24)<br>33,1 ± 11,9%                      |
| $PM_{10}$ ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )               | 26,7 (12,9 – 61,7)                                       | 27,9 (12,2 – 61,8)                                       | 27,6 (14,5 – 62,1)                                       | 23,8 (11,3 – 59,1)                                       |

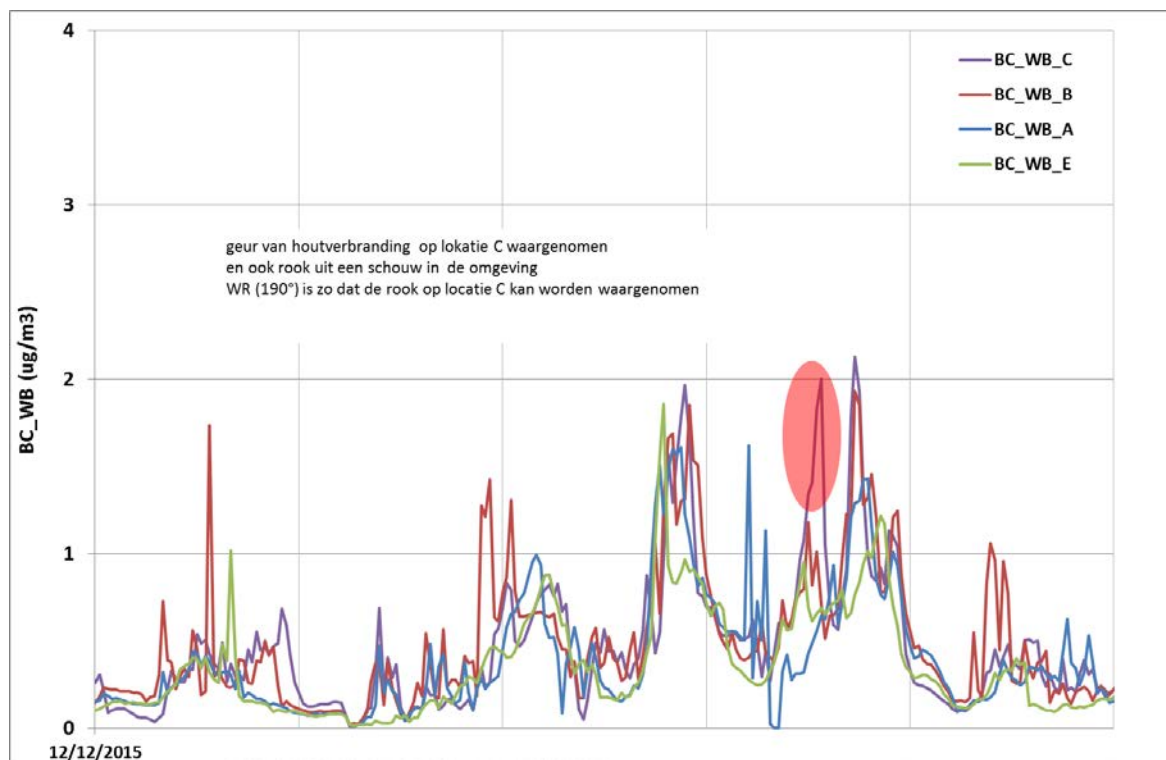
\* Berekend op basis van regressie (zie hierboven)

## 5.12. GEBRUIK VAN DE AE33 VOOR HET OPVOLGEN VAN DE TIJDSTREND VAN DE BIJDRAGE VAN HOUTVERBRANDING

Het voordeel van de Aethalometermethode is dat tijdstrends kunnen worden opgevolgd. Mogelijke toepassingen zijn het inzetten van de AE33 in het meetnet om de bevolking te informeren over de bijdrage van houtverbranding.

### 5.12.1. TIJDSTRENS TOTALE CONCENTRATIES OP ALLE LOCATIES

Tijdstrends kunnen ons meer inzicht geven over de aanwezigheid van bronnen, welke mogelijk een effect kunnen hebben op de lokale luchtkwaliteit; dit effect kan zeer lokaal zijn. Een voorbeeld hiervan wordt gegeven in Figuur 36. Tijdens een plaatsbezoek werd op locatie C een geur van houtverbranding waargenomen en tegelijkertijd ook visueel rook waargenomen uit een schouw. In de figuur is op dat ogenblik een verhoging van  $BC_{WB}$  waar te nemen welke niet op de andere locaties te zien is. Dit toont aan dat houtverbranding een lokale impact kan hebben op de luchtkwaliteit welke met de AE33 kan waargenomen worden.



Figuur 36: Voorbeeld van verhoogde concentratie op een van de locaties wanneer houtverbrandingsgeur werd waargenomen op deze locatie

Figuur 37 en Figuur 38 geven de tijdstrends voor BC opgesplitst in aandeel houtverbranding en fossiele brandstoffen. De figuren zijn gemaakt met Openair en geven achtereenvolgend de tijdstrends voor de verschillende dagen van de week, weekgemiddeld dagprofiel, gemiddelde per maand en daggemiddelde in functie van de dag van de week.

Hierbij valt op dat  $BC_{WB}$  tegen de avond toeneemt en lager is overdag.  $BC_{FF}$  vertoont een duidelijk dagpatroon met ochtend- en avondpiek welke deels verklaard kunnen worden door de

hoeveelheid verkeer. De waargenomen profielen zijn ook te zien op de achtergrondlocatie maar de concentraties liggen veel lager en de trends zijn minder uitgesproken.

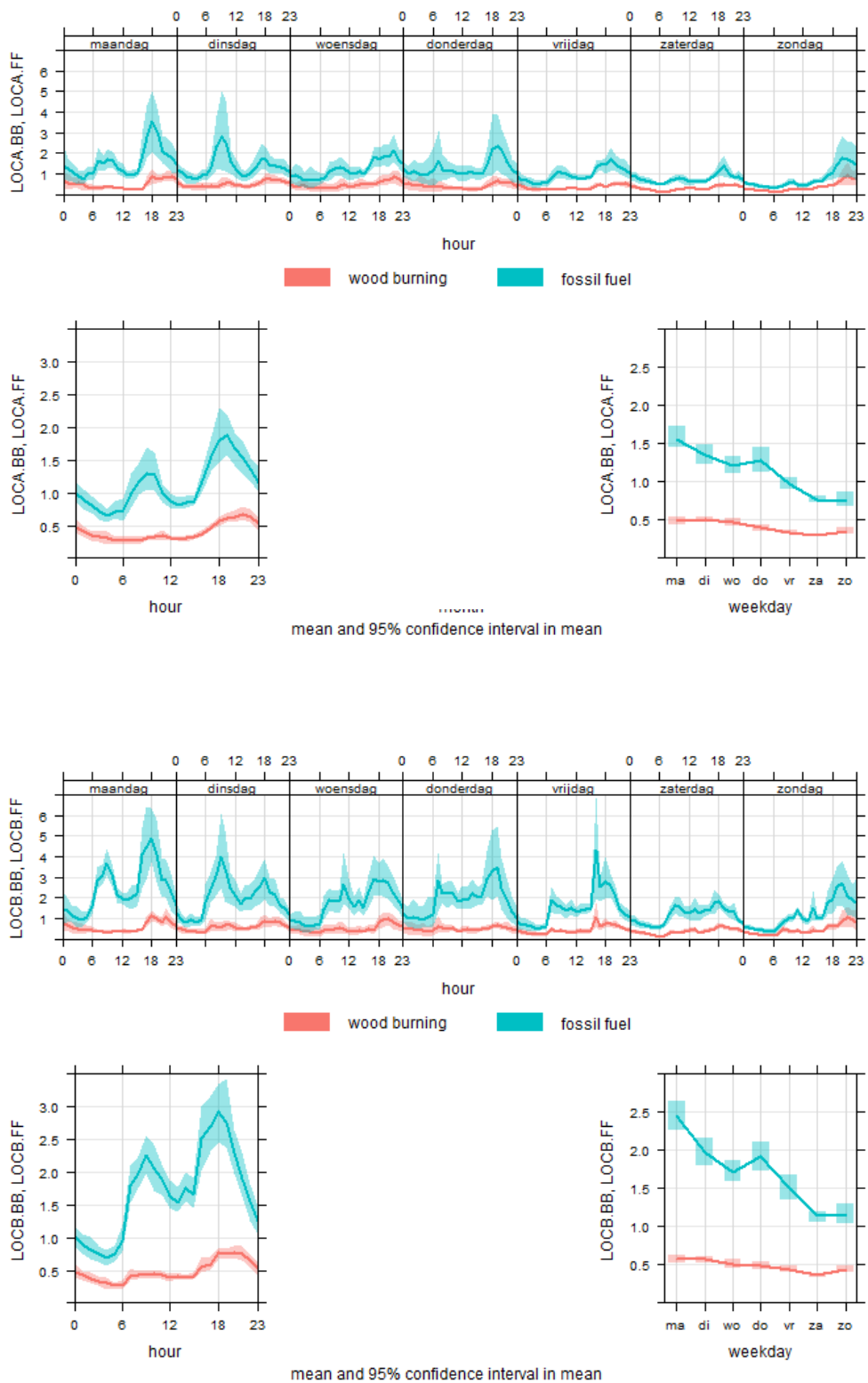
Op locatie C is er naast de avondpiek voor  $BC_{WB}$  ook een lichte verhoging te zien vanaf net vóór de middag en op locatie B ook 's ochtends. Dit wordt hieronder verder besproken.

Toch moeten we opmerken dat naast de emissies ook meteorologische condities (bv. het voorkomen van stabiele luchtcondities) een rol spelen.

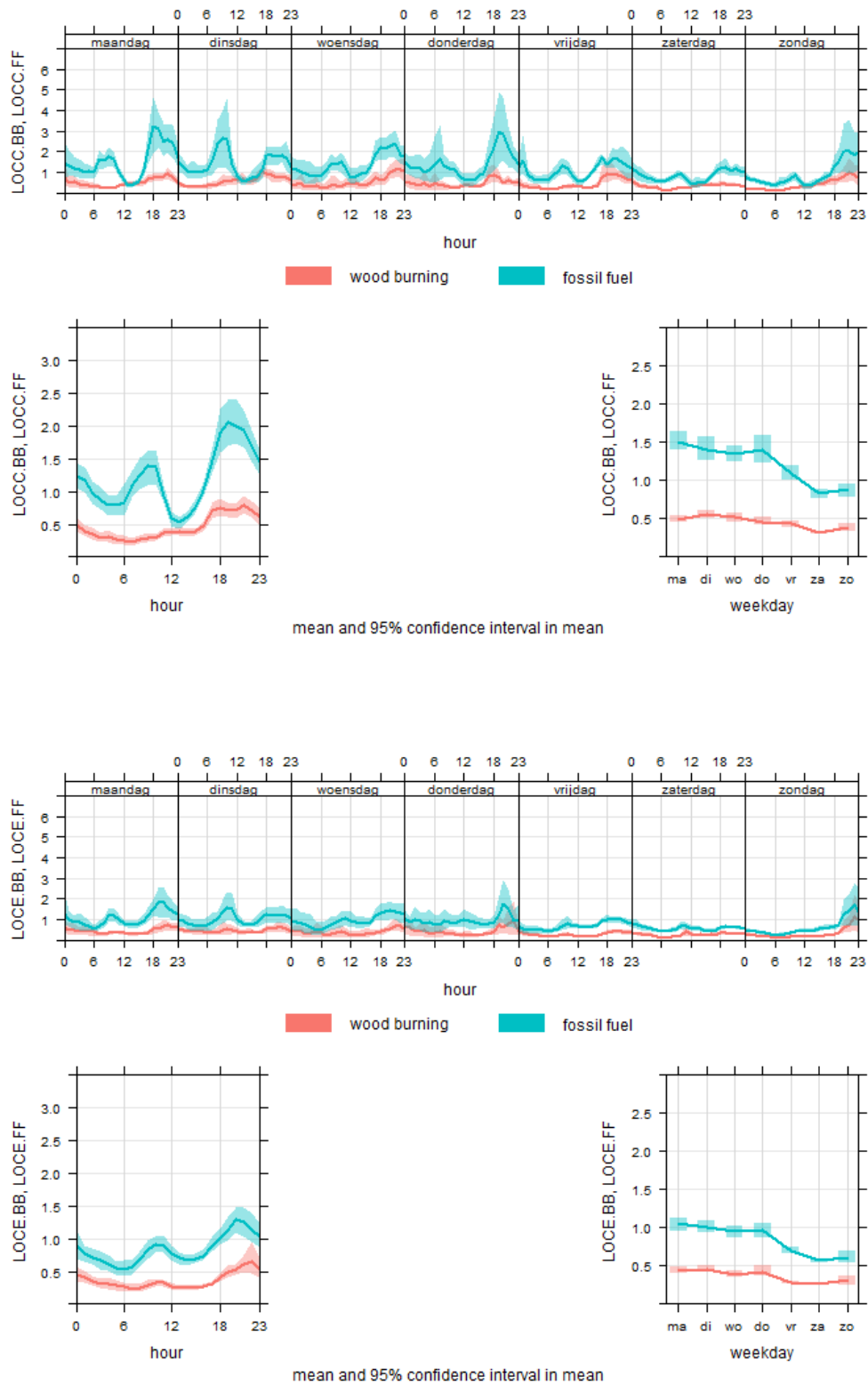
In Figuur 39 wordt het gemiddeld dagprofiel getoond op alle locaties voor alpha, %BB,  $BC_{WB}$  en  $BC_{FF}$ . Hierbij valt op dat er voor alpha op locatie C een verhoging is tijdens de middag. Wanneer we de tijdstrend in detail bekijken, zien we dat die verhoging regelmatig terugkomt in de loop van de meetcampagne en dus zeker niet het gevolg is van het voorkomen van één uitzonderlijk hoge waarde. Verder zien we dat er op locatie B een verlaging is van alpha overdag. Dit laatste komt overeen met de aanwezigheid van een drukke omleidingsweg naast locatie B. Een mogelijke verklaring van de verhoging bij locatie C is de aanwezigheid van een lokale bron van houtverbranding. Tijdens de plaatsbezoeken werd op locatie C overdag soms een geur van houtverbranding waargenomen. Een voorbeeld hiervan is weergegeven in Figuur 36.

Als we de verschillende tijdstrends vergelijken zien we eenzelfde profiel voor alpha als voor %BB, deze parameters geven dus dezelfde informatie.  $BC_{WB}$  en  $BC_{FF}$  daarentegen geven een ander patroon. Locatie B heeft een duidelijk dagpatroon met twee pieken en algemeen hogere concentraties voor  $BC_{FF}$  terwijl het patroon voor  $BC_{WB}$  meer vergelijkbaar is met Locatie C ('s avonds hetzelfde maar overdag nog kleine verschillen). We hebben geen verklaring waarom op Locatie C de waarde voor  $BC_{FF}$  gedurende een deel van de dag onder de concentratie op de achtergrondlocatie ligt. De achtergrondlocatie is gelegen op het VITO-domein en mogelijk is de bijdrage van verkeer er overdag groter dan op locatie C.

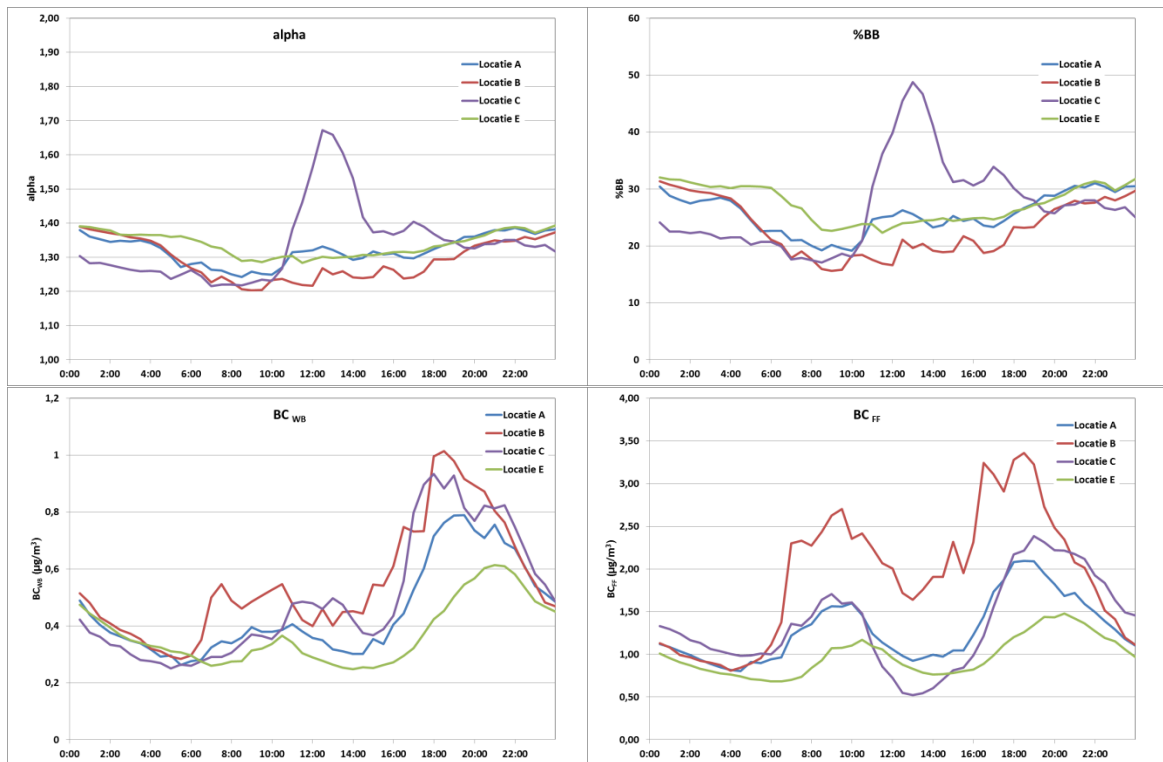
Bovenstaande geeft aan dat hoewel alpha en %BB goede parameters zijn om de bijdrage van houtverbranding continu op te volgen, het beter is om de bijdrage houtverbranding op te volgen als concentratie  $BC_{WB}$  waarbij ook rekening gehouden wordt met de absolute concentratie.



Figuur 37: Tijdsprofiel BC\_FF en BC\_BB op locatie A (boven) en B (onder)



Figuur 38: Tijdsprofiel BC\_FF en BC\_BB op locatie C (boven) en E (onder)

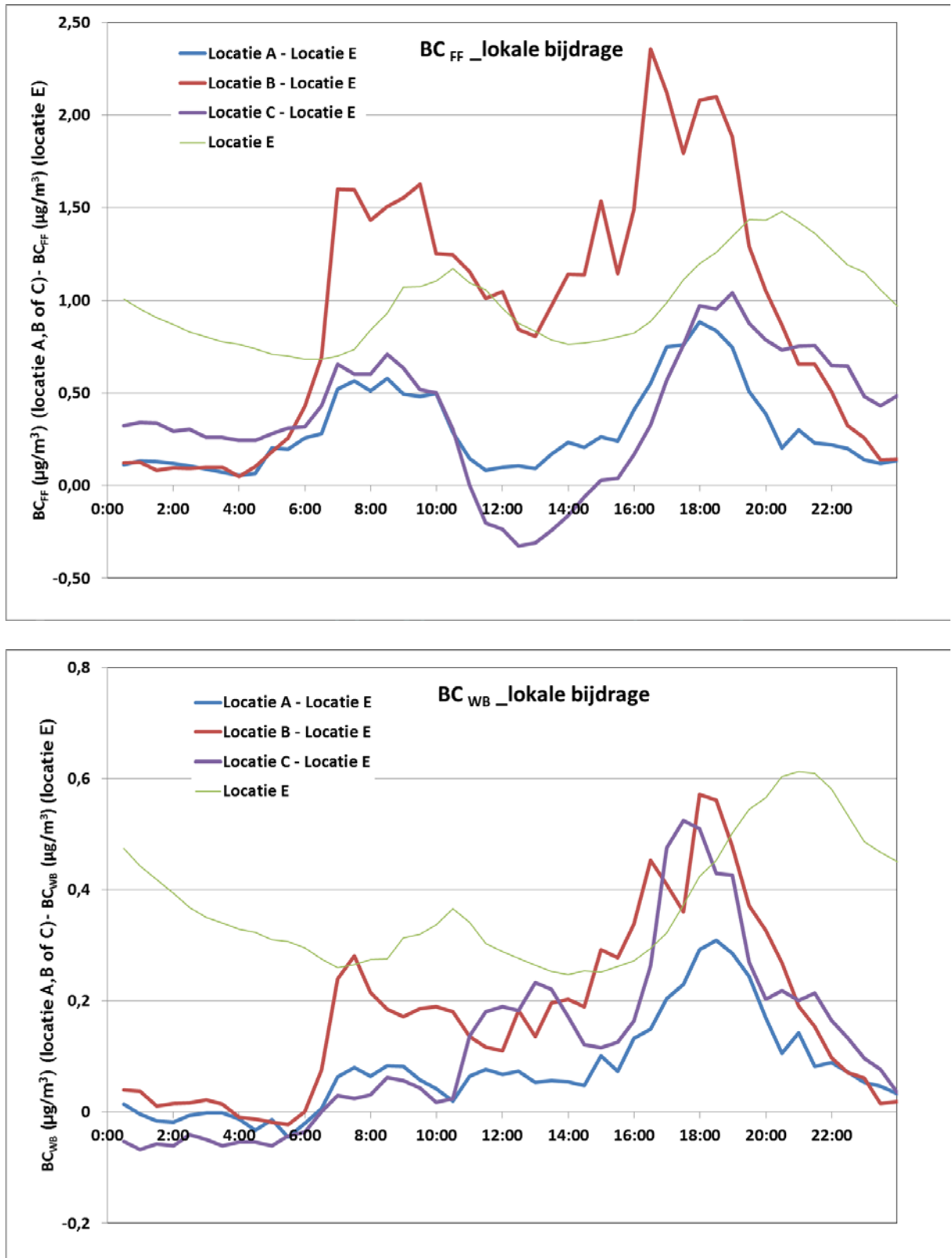


Figuur 39: Weekgemiddeld dagprofiel voor alpha, %BB, BC<sub>WB</sub> en BC<sub>FF</sub>

### 5.12.2. TIJDSTRENDEN VAN DE LOKALE BIJDRAGE OP LOCATIES A, B EN C

Figuur 40 toont de tijdstrends van BC<sub>WB</sub> en BC<sub>FF</sub> voor locaties A, B en C samen met de achtergrondconcentratie gemeten op locatie E. Hierop is te zien dat er binnen het studiegebied lokale verschillen zijn, hoewel deze voor de bijdrage houtverbranding kleiner zijn dan voor verkeer. Voor locatie B, welke sterk beïnvloed wordt door verkeer, is een dagprofiel te zien met een ochtend- en avondpiek voor BC<sub>FF</sub> met max. van respectievelijk 1,6 en 2,4 µg/m<sup>3</sup>. Op de andere locaties bedragen de ochtend- en avondpieken tussen 0,6 – 1,0 µg/m<sup>3</sup>. Wat opvalt is dat in het tijdsprofiel van BC<sub>FF</sub> op locatie E de pieken later komen en breder uitgespreid zijn. Dit is vermoedelijk omdat de concentraties ook veroorzaakt worden door meer regionale bronnen en de stabiliteit van de luchtlagen belangrijk is (zie bv. de verhoging tijdens de ochtend die volledig verdwijnt bij de lokale profielen).

Voor BC<sub>WB</sub> is nu de avondpiek vooral te zien tussen 16:00 en 22:00. De pieken op de achtergrondlocatie komen een drietal uur later; ook hier kunnen we weer meer regionale bijdrage veronderstellen. Op locatie B en C is er ook overdag een verhoging te zien (respectievelijk 's ochtends en 's middags) die niet op locatie A wordt waargenomen. Het is niet uit te sluiten dat bij de vroege ochtendpiek op locatie B deels verse emissies van verkeer worden meegemeten.



Figuur 40: Weekgemiddeld dagprofiel voor de lokale bijdrage van BC<sub>WB</sub> en BC<sub>FF</sub> op locaties A, B en C en weekgemiddeld dagprofiel van BC<sub>WB</sub> en BC<sub>FF</sub> op locatie E



### 5.13. BC CONCENTRATIES EN BIJDRAGE HOUTVERBRANDING IN FUNCTIE VAN DE WINDRICHTING.

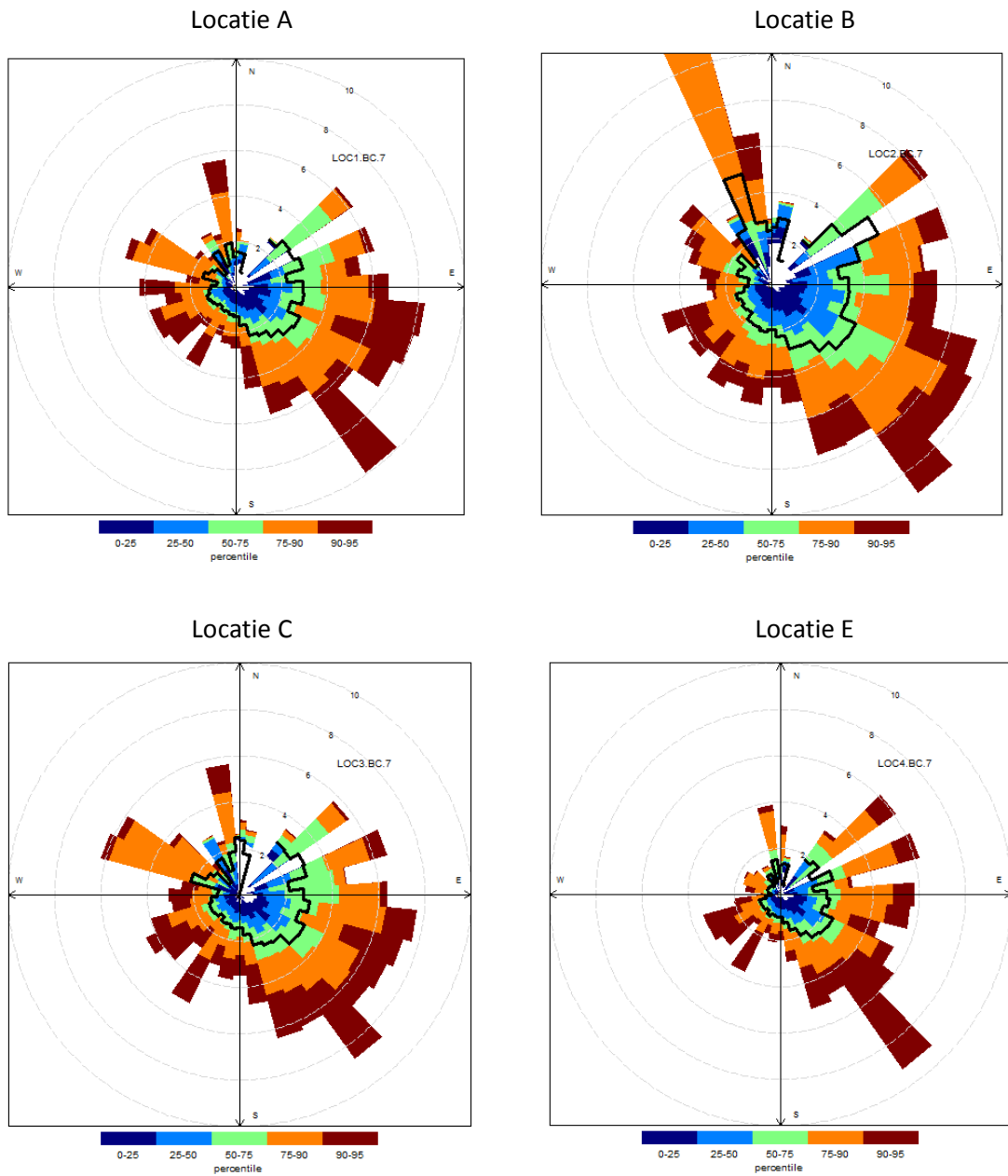
Hieronder worden de BC-concentraties en het aandeel houtverbranding dat werd gemeten besproken in functie van de windrichting. De wind kwam hoofdzakelijk uit ZW richting en deels ZO. Hierbij maken we gebruik van een percentielplot. Dit plot toont de verdeling van de concentraties per windrichting aan de hand van de percentielen (gekleurde blokken) en het gemiddelde (zwarte lijn).

Figuur 41 toont de BC concentratie, gemeten op elk van de vier locaties in functie van de windrichting. Wanneer de windrichting te weinig voorkwam gedurende de meetperiode is in de plot geen percentiel getoond. De gemiddelde waarde die dan weergegeven is, is slechts de gemiddelde van een beperkt aantal punten en is niet representatief.

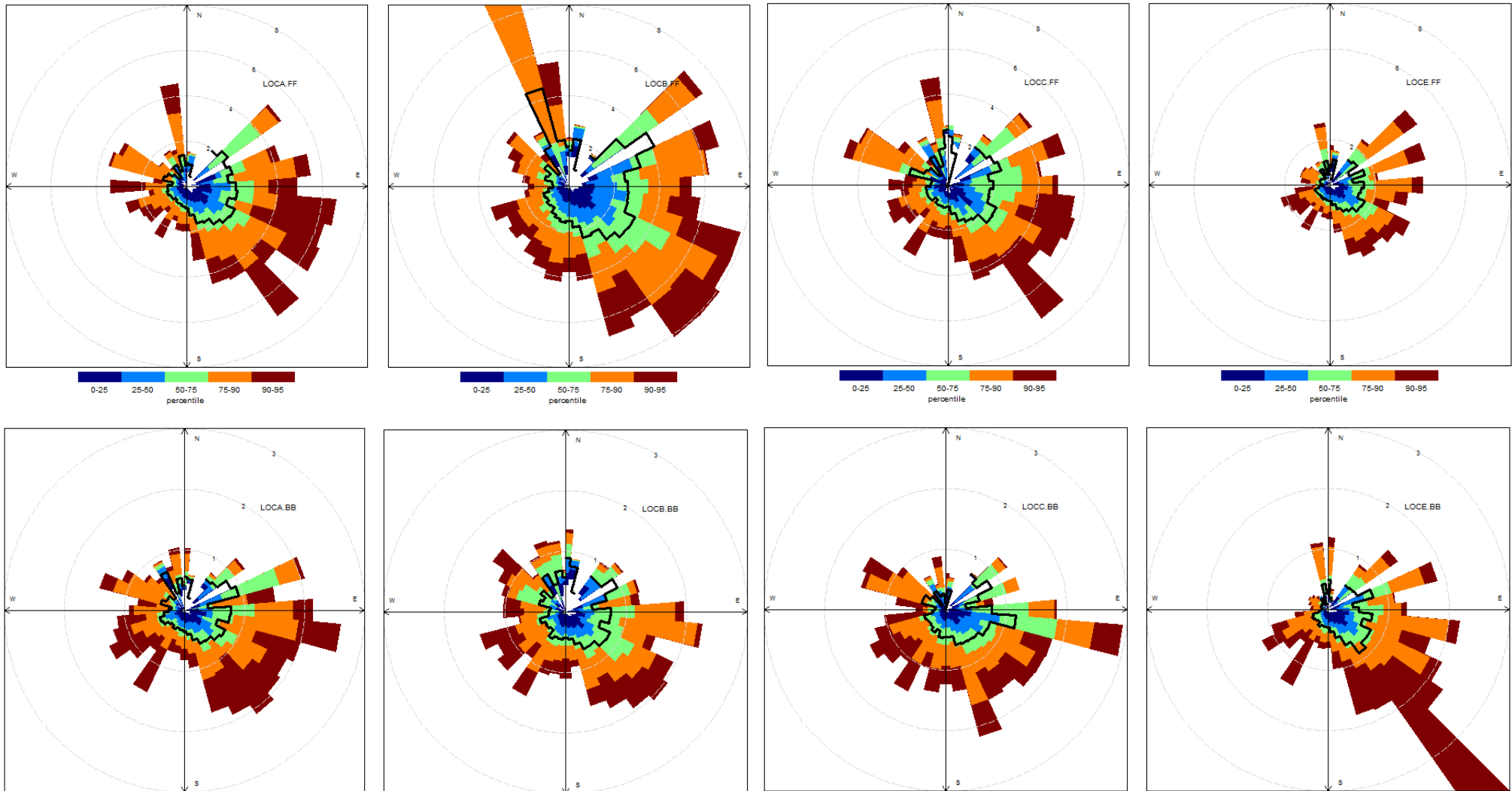
De **BC concentratie** is hoger wanneer de wind uit ZO richting komt in vergelijking met ZW richting. Dit is te verwachten omdat de gemeten concentraties in Vlaanderen vaak lager zijn bij deze windrichting wat te wijten is aan verse zeelucht en veel verdunning. De vorm van het onderste deel van de plot is gelijkaardig maar de absolute waarden zijn verschillend: de gemiddelde concentratie bij ZO windrichting bedraagt  $4 \mu\text{g}/\text{m}^3$  op locatie B in vergelijking met  $2,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$  op de achtergrondlocatie (E). In het bovenste deel zien we uitschieters maar deze zijn op elk van de locaties verschillend. Dit is mogelijk te wijten aan een lokale bron maar de dataset is te klein (te weinig voorkomen van deze windrichting) om hierover uitspraak te kunnen doen.

In Figuur 42 zijn de percentielplots in functie van de windrichting getoond voor **BC<sub>FF</sub>** en **BC<sub>WB</sub>**. Hierop is te zien dat de hoogste concentraties voor het aandeel fossiele brandstoffen (onder andere verkeer) aan BC voorkomen op locatie B bij ZO windrichting. Dit is de locatie die het meest beïnvloed is door de lokale omleidingsweg. Ook op locatie E is deze parameter het hoogst bij ZO windrichting maar de absolute waarde is veel lager (ongeveer  $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$  op locatie B in vergelijking met  $1,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$  op locatie E). De hoogste concentratie BC<sub>WB</sub> wordt ook gemeten in de ZO windsector. Op locatie C is een sterkere verhoging van de concentratie te zien bij OZO wind, welke niet te zien is op locatie B en A, vermoedelijk te wijten aan een lokale bron. De bijdrage uit ZO richting lijkt vergelijkbaar op locatie A en B maar er is een lichte verhoging in gemiddelde waarde bij ZZW richting. Ook in WNW richting is een verhoging te zien voor WB maar het aandeel datapunten is hier beperkter (<1% per sector in de NW richting).

Dit toont aan dat het opvolgen van houtverbranding met hogere tijdsresolutie (vb. 30 min) potentieel biedt om beter bronnen te identificeren. Tijdens deze beperkte meetcampagne was het aandeel van bepaalde windrichtingen echter beperkt zodat gemiddelden niet representatief zijn.



Figuur 41: Percentieplots van de BC-concentratie in functie van de windrichting op locaties A, B, C en E (achtergrond)



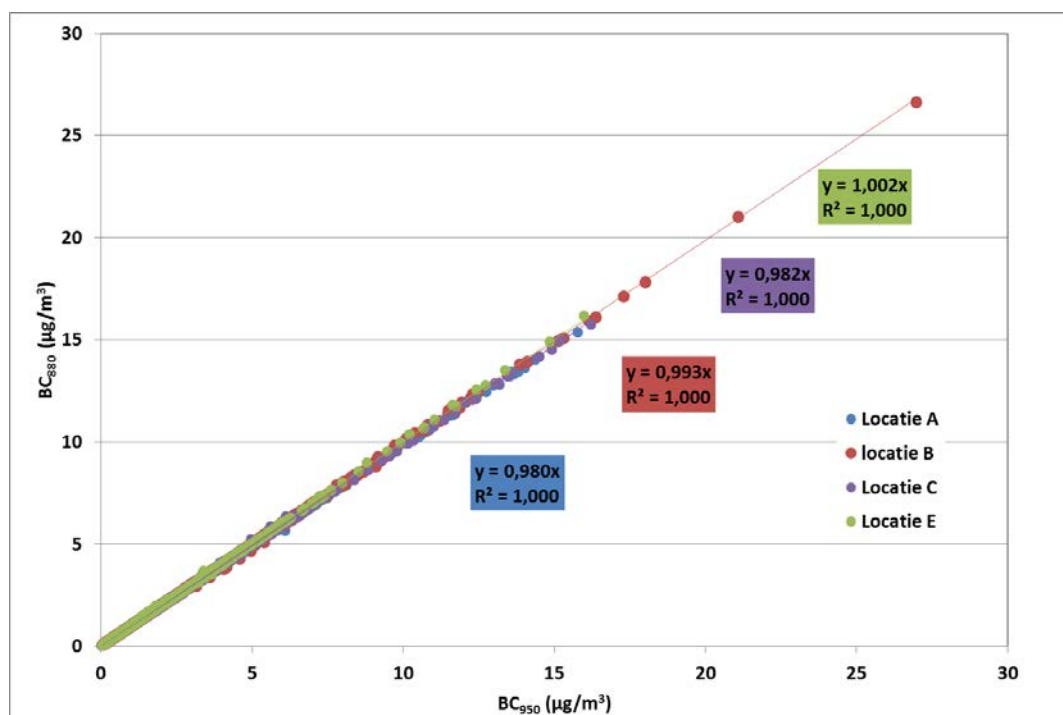
Figuur 42: Percentielplots van  $BC_{FF}$  (boven) en  $BC_{WB}$  (onder) in functie van de windrichting op locaties A, B, C en E (achtergrond)

#### 5.14. CORRELATIES TUSSEN VERSCHILLENDE PARAMETERS

De correlaties tussen een aantal parameters werden bekeken. De resultaten worden in onderstaande besproken.

##### 5.14.1. BC BIJ VERSCHILLENDE GOLFLENGTEN GEMETEN: 880 NM VERSUS 950 NM

De bepaling van de hoeveelheid houtverbranding gebeurt enerzijds op basis van BC gemeten bij 950 en 470 nm. Meestal wordt BC als indicator voor roet echter gerapporteerd bij 880 nm. De correlatie tussen BC gemeten bij elk van deze golflengten is zeer goed en de richtingscoëfficiënt RC geeft aan dat het verschil 2% of minder bedraagt (zie Figuur 43). Daarom is het te verantwoorden om BC te rapporteren, gemeten bij golflengte 950.



Figuur 43: Black Carbon gemeten bij verschillende golflengten in IR (880 nm versus 950 nm)

##### 5.14.2. HOUTVERBRANDINGSTRACERS EN BC, PM<sub>10</sub>

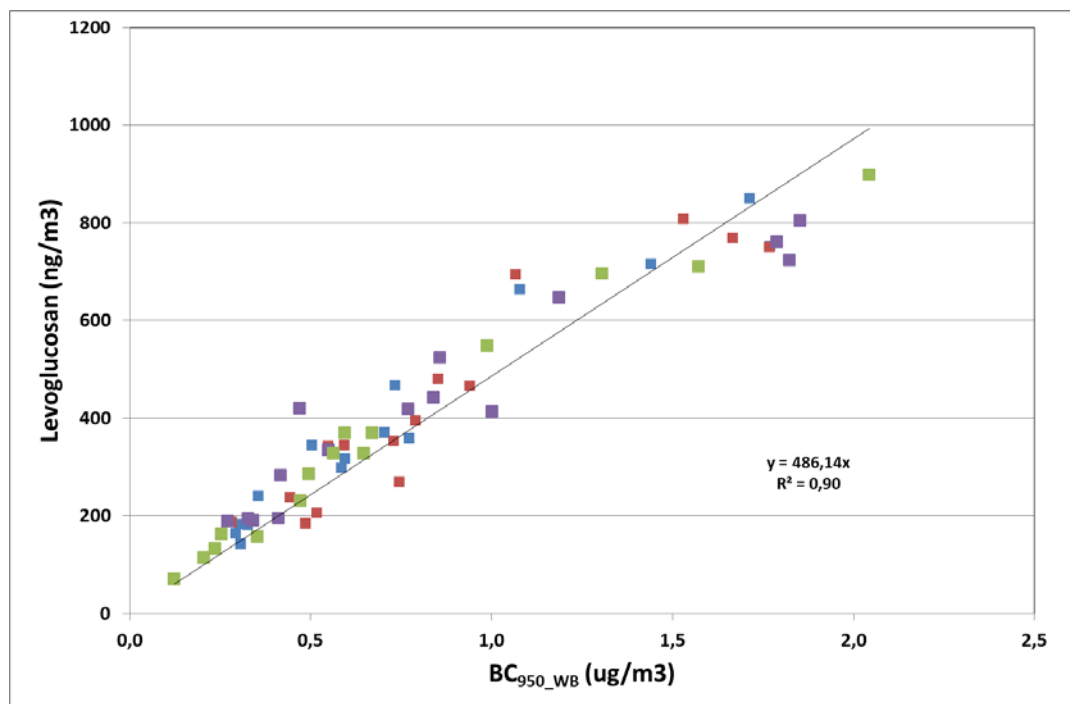
Figuur 44 toont een goede correlatie ( $R^2 = 0,93$  en wanneer door oorsprong gefit  $0,90$ ) tussen de gemeten concentratie levoglucosan en de berekende waarde  $BC_{WB}$ .  $BC_{WB}$  is de bijdrage van houtverbranding tot de BC-concentratie, berekend op basis van BC-waarden voor verschillende golflengten (950 nm en 470 nm).

De correlatie is minder goed voor levoglucosan – BC ( $R^2 = 0,83$ ) en levoglucosan – PM<sub>10</sub> ( $R^2 = 0,79$ ). Dit is te verwachten omdat er ook andere bronnen bijdragen aan PM<sub>10</sub> en BC. De correlatie levoglucosan is ook beter met OC (0,89) in vergelijking met EC (0,40).

We vinden ook een goede correlatie tussen beide methoden voor de berekening van het aandeel houtverbranding aan PM. De absolute waarde volgens de Aethalometermethode ligt wel hoger dan verwacht. De goede correlatie tussen levoglucosan en  $BC_{WB}$  toont aan dat de bepaling van

houtverbranding via de Aethalometermethode equivalent is aan de tracermethode (met levoglucosan), levoglucosan kan afgeleid worden uit  $BC_{WB}$  op basis van volgende formule:

$$\text{levoglucosan } (\mu\text{g}/\text{m}^3) = 0,5 \times BC_{WB} (\mu\text{g}/\text{m}^3)$$



Figuur 44: Correlatie tussen levoglucosan en  $BC_{WB}$  berekend met de Aethalometer

#### 5.14.3. VERSCHILLENDE PARAMETERS VOOR KOOLSTOFHOUDEND AEROSOL: EC/OC, TC, BC

Opvallend is dat de correlatie ( $R^2 = 0,57$ ) tussen BC en EC niet zo goed is als we zouden verwachten. Op Figuur 45 is te zien dat daar een paar punten (die dicht bij de 1:1-lijn liggen) voor verantwoordelijk zijn. Beide grootheden zijn een parameter voor roet in fijn stof, gemeten via een andere methode (optisch versus thermisch met optische correctie). Omdat we kunnen aannemen dat beide grootheden een maat zijn voor eenzelfde component van fijn stof, zouden we de regressielijn door 0 kunnen laten gaan: dit levert een minder goede correlatie op en een grotere helling ( $\pm 2$ ). Het feit dat ongeveer alle punten boven 1:1 liggen betekent mogelijk dat de gebruikte MAC (Mass Absorption Coëfficiënt) te laag is (en bijgevolg de ingeschatte BC te hoog (als we vergelijken met EC). Een andere verklaring kan zijn dat de EC-concentratie te laag is. Het vaststellen van verschillen tussen verschillende technieken om BC en EC te meten is niet ongewoon omdat er ook geen absolute definitie is van BC en EC, beide parameters zijn een maat voor het roetgehalte, maar wat exact wordt meegeteld als EC of BC hangt af van de techniek en de instrumentele instellingen.

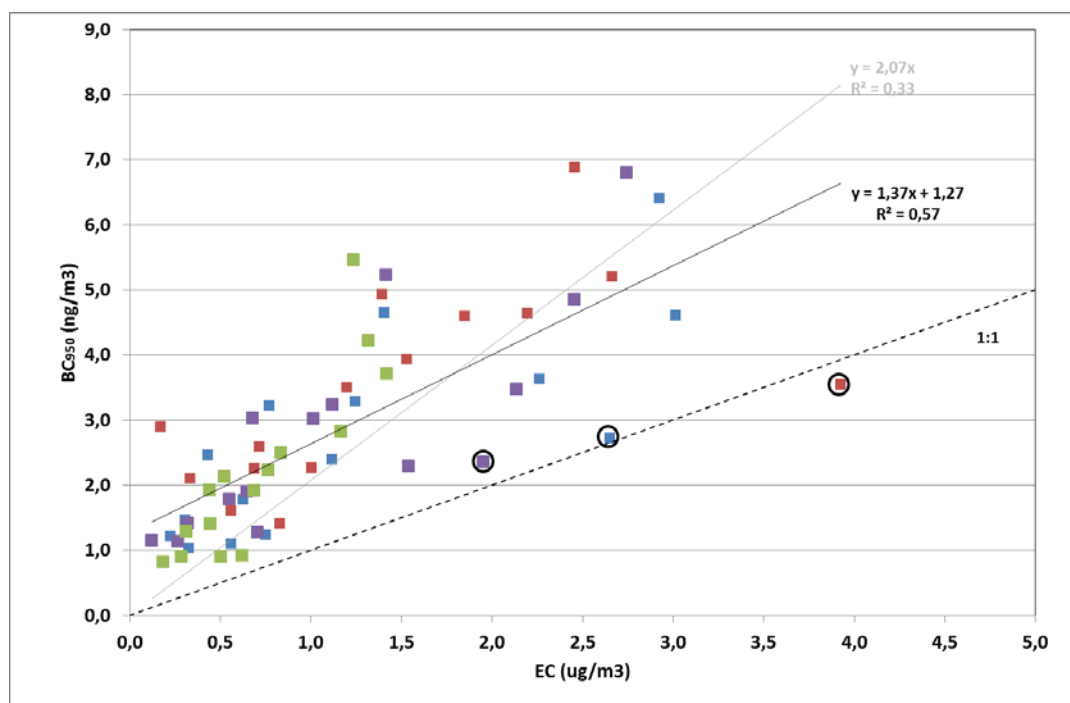
De correlatie van BC met TC is wel beter, nl 0,92 (figuur niet getoond hier). Daar liggen alle punten onder de 1:1-lijn, zoals te verwachten omdat TC ook OC bevat, dat niet bij 950 nm absorbeert. Wanneer we enkel BC van fossiele brandstoffen vergelijken  $BC_{FF}$  dan verbetert de correlatie met EC niet veel (0,62). De helling neemt wel af en de punten liggen dicht bij de 1:1-lijn.

Er zijn nu drie punten die onder de 1:1-lijn liggen, deze zijn data van eenzelfde dag (28/12/2015). Op basis van de relatief grote spreiding van de correlatieplots kunnen we vermoeden dat de BC/EC-

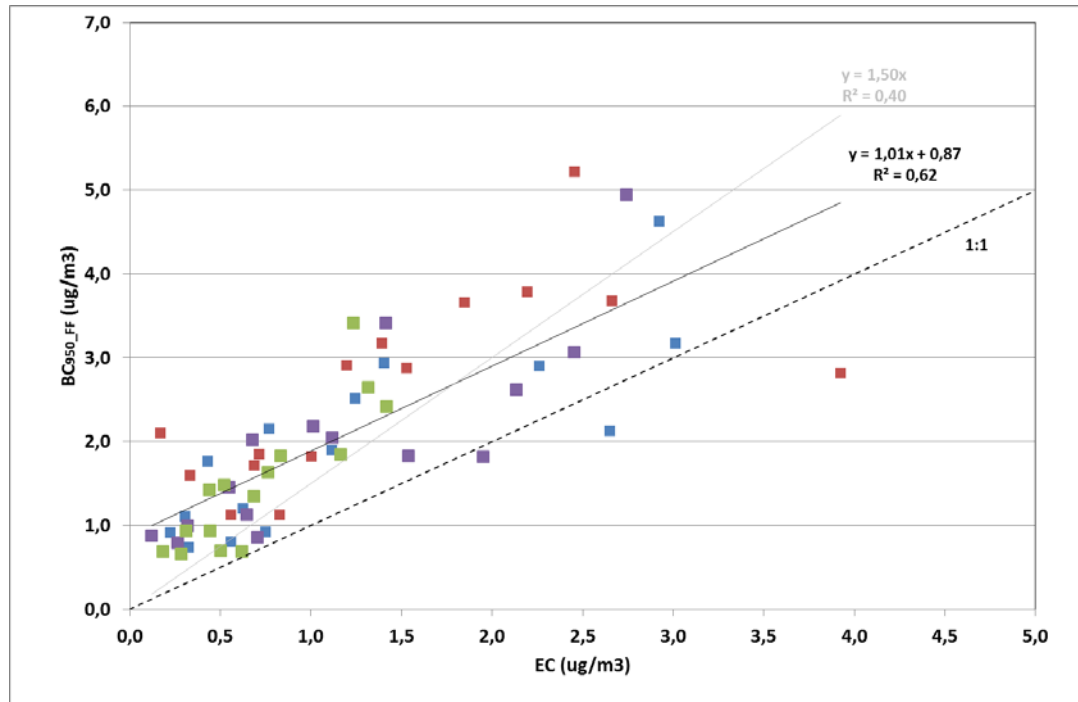
verhouding verschillend is van dag tot dag. Om dit na te gaan wordt de BC/EC-verhouding uitgezet in functie van de meetdag voor alle locaties (Figuur 47). Op de figuur is ook de concentratie van EC,  $BC_{FF}$  en  $BC_{WB}$  voor locatie B weergegeven. We stellen vast dat de lage BC/EC-verhouding overeen komt met hoge EC-concentratie en hoge  $BC_{FF}$  (op 28/12/2016 en iets minder uitgesproken ook op 14/12/15, 19/1/16 en 21/1/16). Wat ook opvalt in de figuur is dat de BC/EC-verhouding zowel varieert van dag tot dag als tussen de locaties.

De extreem hoge waarden voor BC/EC komen overeen met zeer lage EC-concentraties:  $0,56 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (locatie C, 16/12/2015),  $0,33 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (locatie B, 19/12/2015),  $0,17 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (locatie B, 22/1/2016) en zijn deels te wijten aan de meetonzekerheid in elk van de methoden en worden bijgevolg niet als representatief beschouwd.

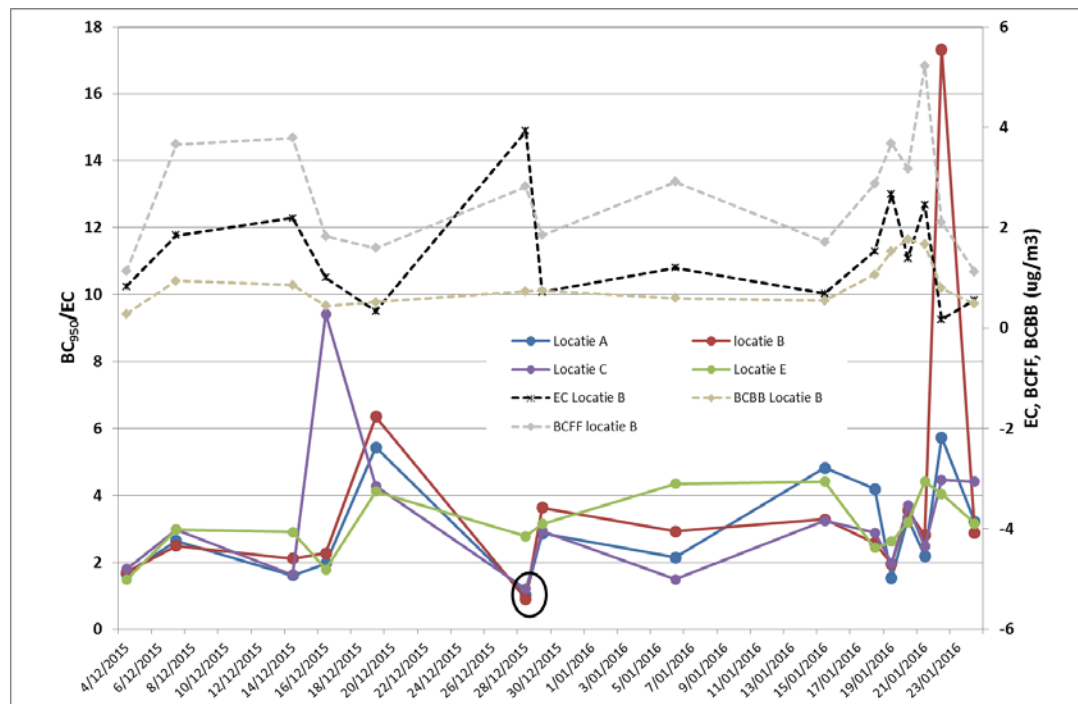
Deze waarnemingen geven aan dat bij gebruik van AE33 vergelijking met EC-meting het aan te raden is dit te doen op regelmatige basis. Eventueel kan hier afgewacht worden wat in de Europese werkgroep voor EC/OC bepaling (CEN TC264/WG35) hierover beslist wordt.



Figuur 45: Correlatie BC versus EC



Figuur 46: Correlatie BC<sub>FF</sub> versus EC voor de vier locaties



Figuur 47: BC/EC-verhouding voor locaties A,B,C en E en concentraties van EC, BC<sub>FF</sub> en BC<sub>WB</sub> gemeten op locatie B

#### 5.14.4. CORRELATIES TUSSEN INDIVIDUELE PAK EN HOUTVERBRANDINGSTRACERS EN TRACER VOOR VERBRANDING VAN FOSSIELE BRANDSTOFFEN

De correlaties tussen enerzijds indicatoren voor houtverbranding ( $BC_{WB}$  en levoglucosan) en anderzijds de som van de PAK en de individuele PAK werden onderzocht. Ook werd de correlatie van  $BC_{FF}$  met de PAK nagegaan om te zien of er een betere correlatie is van bepaalde PAK met de verbranding van fossiele brandstoffen (verkeer en ander fossiele bronnen). In een eerste stap werd gekeken naar de correlatie van de ganse dataset (alle locaties), dan werden de locaties afzonderlijk bekeken en vervolgens werd enkel de lokale bijdrage van de parameters beschouwd.

Figuur 48 toont de correlaties voor alle locaties samen en we vinden een goede tot redelijke correlatie tussen de houtverbrandingsindicatoren, BC afkomstig van fossiele brandstoffen en de PAK. Verder zien we dat de som van de PAK beter gecorreleerd is met de houtverbrandingsparameters dan met parameters voor fossiele brandstoffen. Wanneer we naar de afzonderlijke PAK kijken, zien we een minder goede correlatie van houtverbrandingsparameters (levoglucosan en  $BC_{WB}$ ) met fluorantheen en pyreen ( $R^2 = 0,69 - 0,75$ ) in vergelijking met de andere PAK ( $R^2 = 0,86 - 0,93$ ). We zien dat de correlaties altijd iets hoger liggen voor levoglucosan in vergelijking met  $BC_{WB}$ , vermoedelijk omdat beide parameters op dezelfde filter gemeten zijn. De verschillen zijn echter niet zo groot vb. 0,92 versus 0,89 voor de som van de PAK.

Figuur 49 tot en met

Figuur 49 tonen de correlaties voor de vier locaties afzonderlijk.

Tabel 20 geeft de correlatiecoëfficiënten voor de verschillende locaties afzonderlijk en alle locaties samen voor de som van de PAK, B(a)P en fluorantheen. De correlaties voor de afzonderlijke locaties zijn vrij vergelijkbaar. B(a)P volgt dezelfde trend als de som van de PAK. Voor fluorantheen liggen de correlaties op locaties A en E iets hoger voor de houtverbrandingsparameters en ligt de correlatie op locatie B duidelijk hoger voor  $BC_{FF}$ . Dit laatste komt omdat deze locatie het meest beïnvloed is door verkeer en fluorantheen een betere correlatie heeft met  $BC_{FF}$ .

Tabel 20: Resultaten correlatie ( $R^2$ ) voor de som van de PAK, B(a)P en fluorantheen met  $BC_{WB}$ ,  $BC_{FF}$  en levoglucosan, weergegeven voor de verschillende locaties samen en afzonderlijk.

|                     |           |           |           |           |      |
|---------------------|-----------|-----------|-----------|-----------|------|
| <b>alle PAK</b>     | Locatie A | Locatie B | Locatie C | Locatie E | alle |
| $BC_{WB}$           | 0,90      | 0,92      | 0,91      | 0,87      | 0,89 |
| $BC_{FF}$           | 0,66      | 0,68      | 0,78      | 0,82      | 0,67 |
| levoglucosan        | 0,95      | 0,95      | 0,91      | 0,91      | 0,92 |
| <b>B(a)P</b>        | Locatie A | Locatie B | Locatie C | Locatie E | alle |
| $BC_{WB}$           | 0,91      | 0,94      | 0,92      | 0,88      | 0,92 |
| $BC_{FF}$           | 0,67      | 0,70      | 0,81      | 0,83      | 0,68 |
| levoglucosan        | 0,94      | 0,95      | 0,90      | 0,91      | 0,90 |
| <b>fluorantheen</b> | Locatie A | Locatie B | Locatie C | Locatie E | alle |
| $BC_{WB}$           | 0,80      | 0,70      | 0,71      | 0,74      | 0,71 |
| $BC_{FF}$           | 0,75      | 0,85      | 0,72      | 0,71      | 0,75 |
| levoglucosan        | 0,78      | 0,69      | 0,78      | 0,80      | 0,75 |

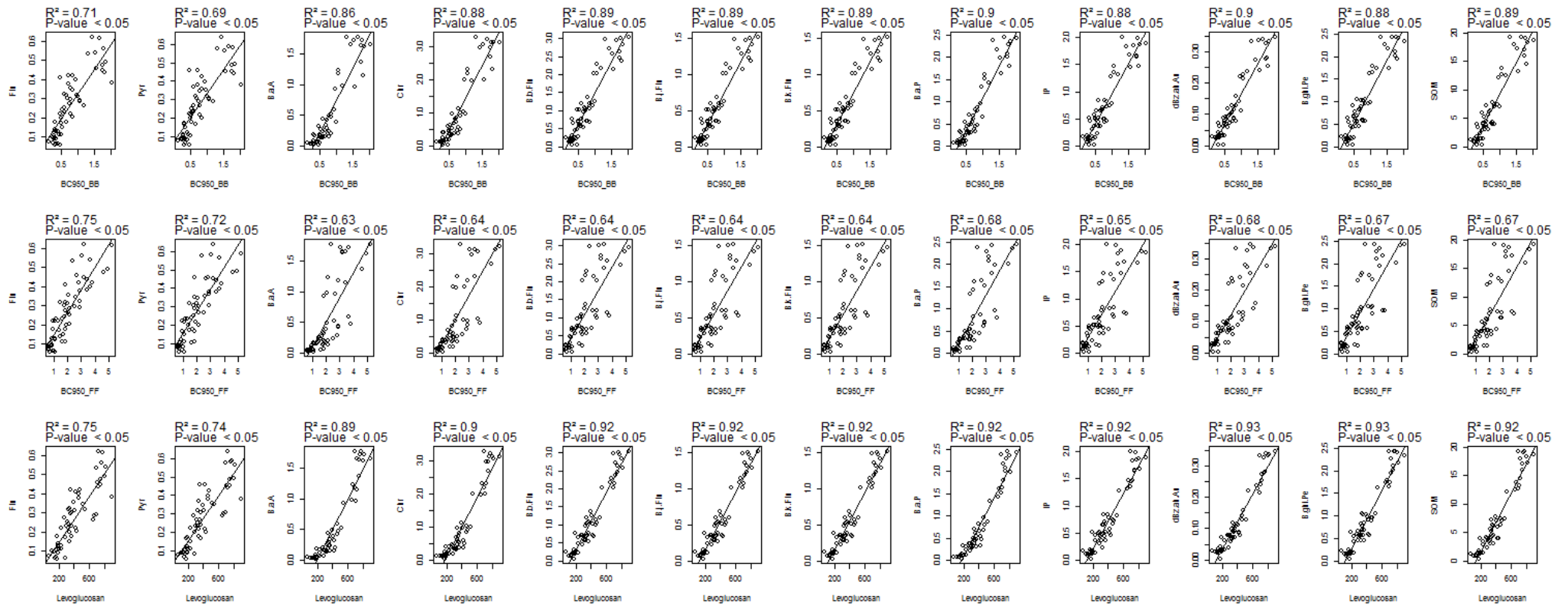


Wanneer we enkel de lokale bijdrage (concentratie op locatie (A,B,C) – concentratie op locatie E) bekijken voor alle locaties samen, voor elk van de parameters stellen we vast dat de correlaties nog significant zijn, maar wel slechter worden (Figuur 53). Voor de lokale bijdragen zijn enkel positieve waarden weerhouden (negatieve waarden werden verwijderd). De hoogste correlatie wordt vastgesteld voor  $BC_{FF}$  met fluorantheen ( $R^2=0,60$ ) en pyreen ( $R^2=0,64$ ). De hoogste correlaties met de houtverbrandingsparameters worden gevonden voor benzo(b)fluorantheen, benzo(j)fluorantheen en benzo(k)fluorantheen ( $R^2=0,50$  voor levoglucosan en  $R^2=0,42$  voor  $BC_{WB}$ ) en voor  $BC_{WB}$  ook voor de andere zwaardere PAK ( $R^2$  tussen 0,43 – 0,51).

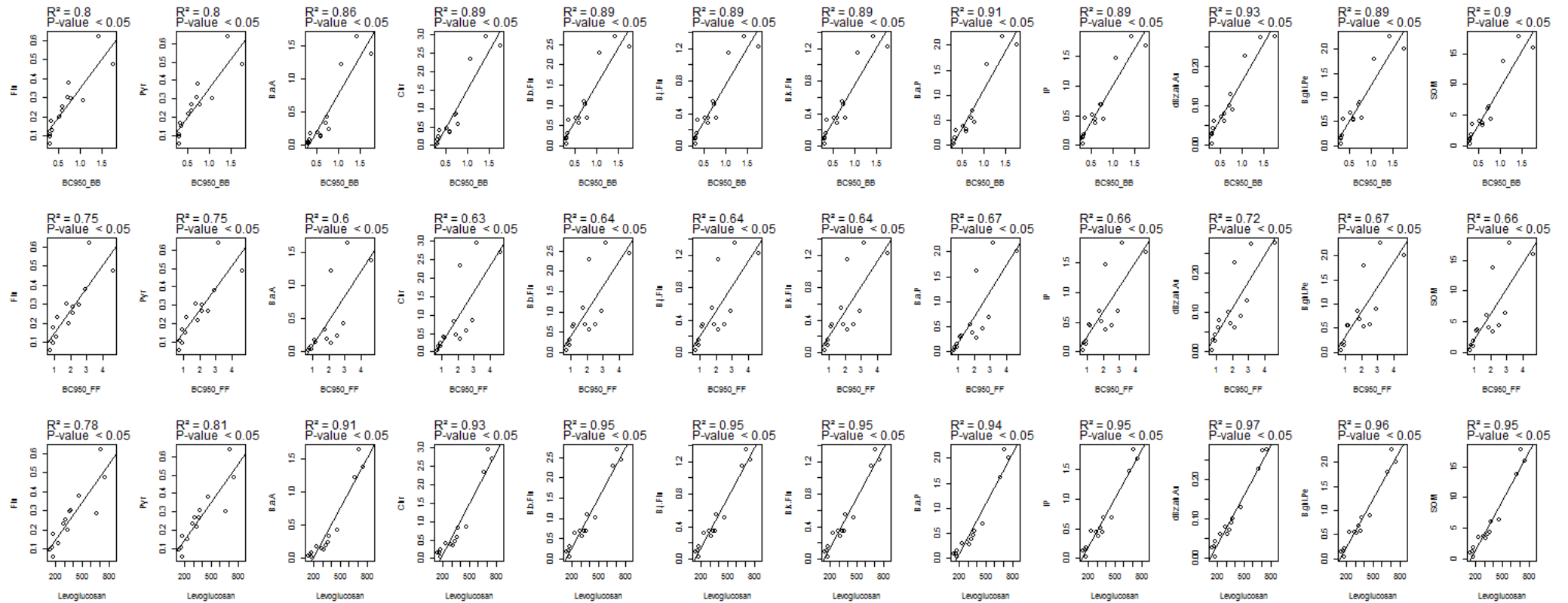
Wanneer we naar de correlaties kijken voor elk van de locaties apart (Figuur 54 tot en met Figuur 56) stellen we vast dat correlaties niet altijd significant zijn. Verder stellen we het volgende vast:

- Op locatie A zijn de correlaties met  $BC_{FF}$  vergelijkbaar met deze voor de totale dataset en worden de correlaties met de houtverbrandingsparameters veel beter. Ook hier worden de hoogste correlatiecoëfficiënten gevonden voor de benzofluorantheen-isomeren.
- Op locatie B zijn de correlaties met  $BC_{FF}$  hoger in vergelijking met de ganse dataset maar zijn alle correlaties met de houtverbrandingsparameters lager en niet meer significant (zowel voor levoglucosan als voor  $BC_{FF}$ ).
- Op locatie C zijn de correlaties met  $BC_{FF}$  niet meer significant. Verder zijn de correlaties met de benzofluorantheen-isomeren en benzo(a)pyreen iets lager met levoglucosan maar niet meer significant met  $BC_{FF}$ . Op de plot zien we dat een paar punten verantwoordelijk zijn voor de slechtere correlatie (benzofluorantheen-isomeren).

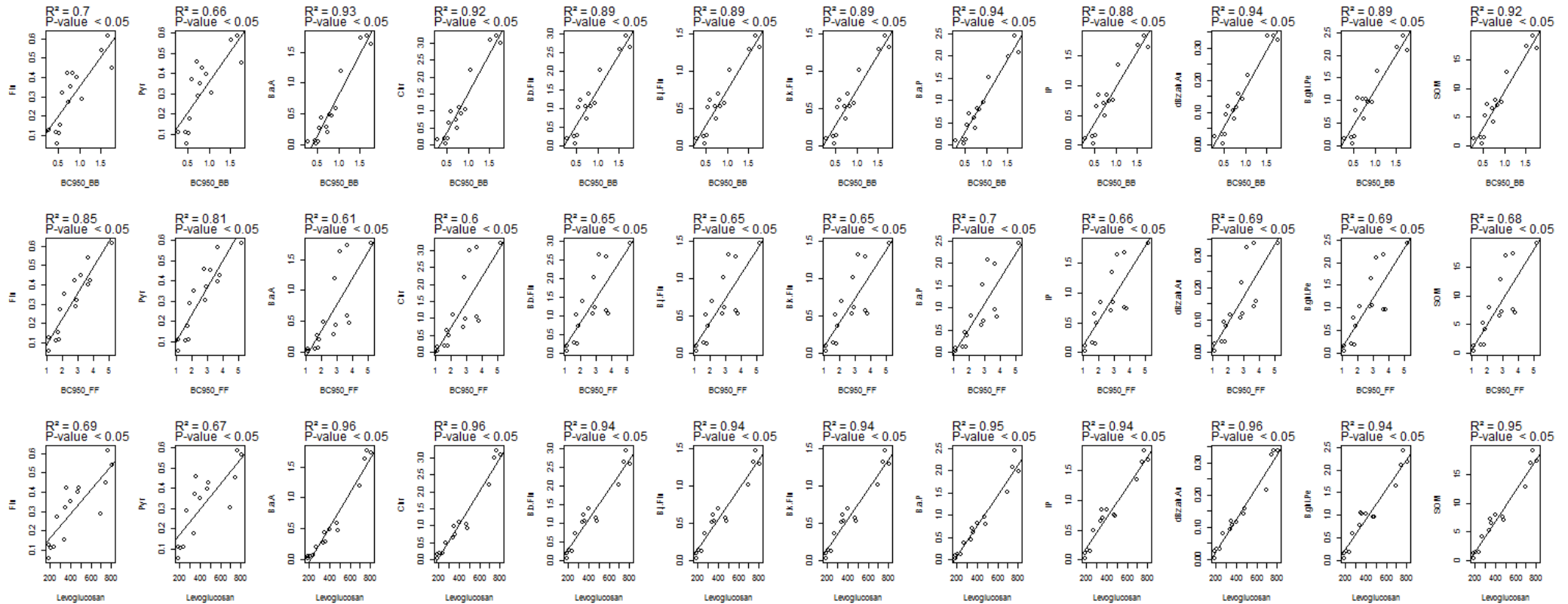
Ook Pietrogrande et al. (2015) vonden een goede correlatie tussen enerzijds levoglucosan en anderzijds de som van de PAK ( $R^2 = 0,78$ ) of individuele PAK (Chr, B(b)F, B(k)F, B(e)P, B(a)P, Ind(123)P en B(ghi)P, met  $R^2$  tussen 0,71 – 0,79) wat een indicatie is dat houtverbranding een belangrijke bron is van PAK.



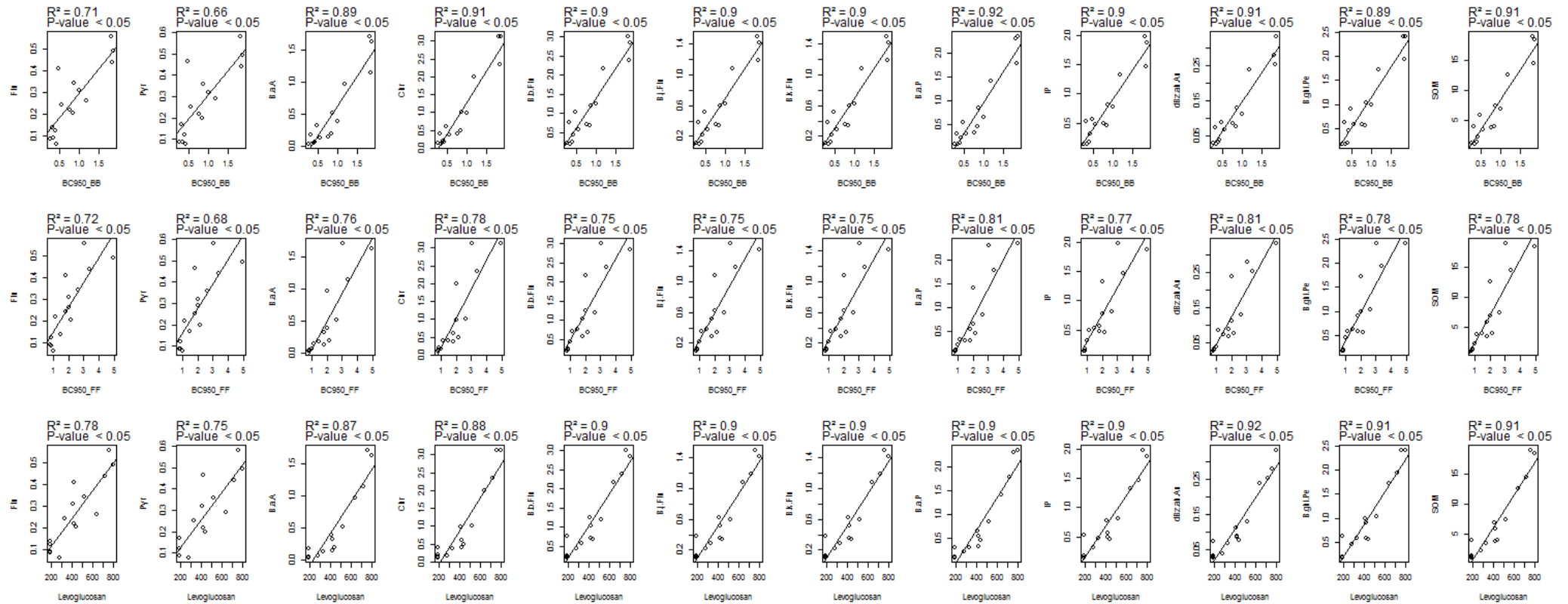
Figuur 48: Correlatieplots van  $BC_{WB}$ ,  $BC_{FF}$  en levoglucosan met de individuele PAK en de som van de PAK



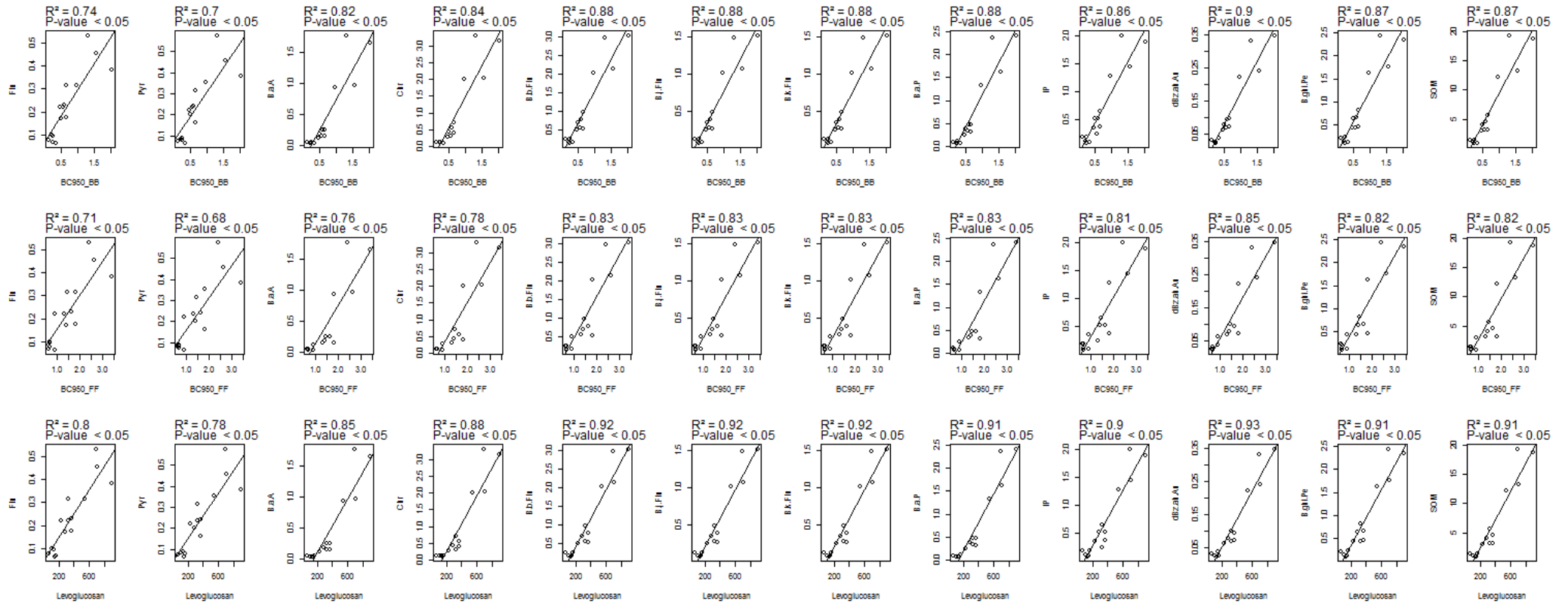
Figuur 49: Correlatieplots van  $BC_{WB}$ ,  $BC_{FF}$  en levoglucosan met de individuele PAK en de som van de PAK voor locatie A



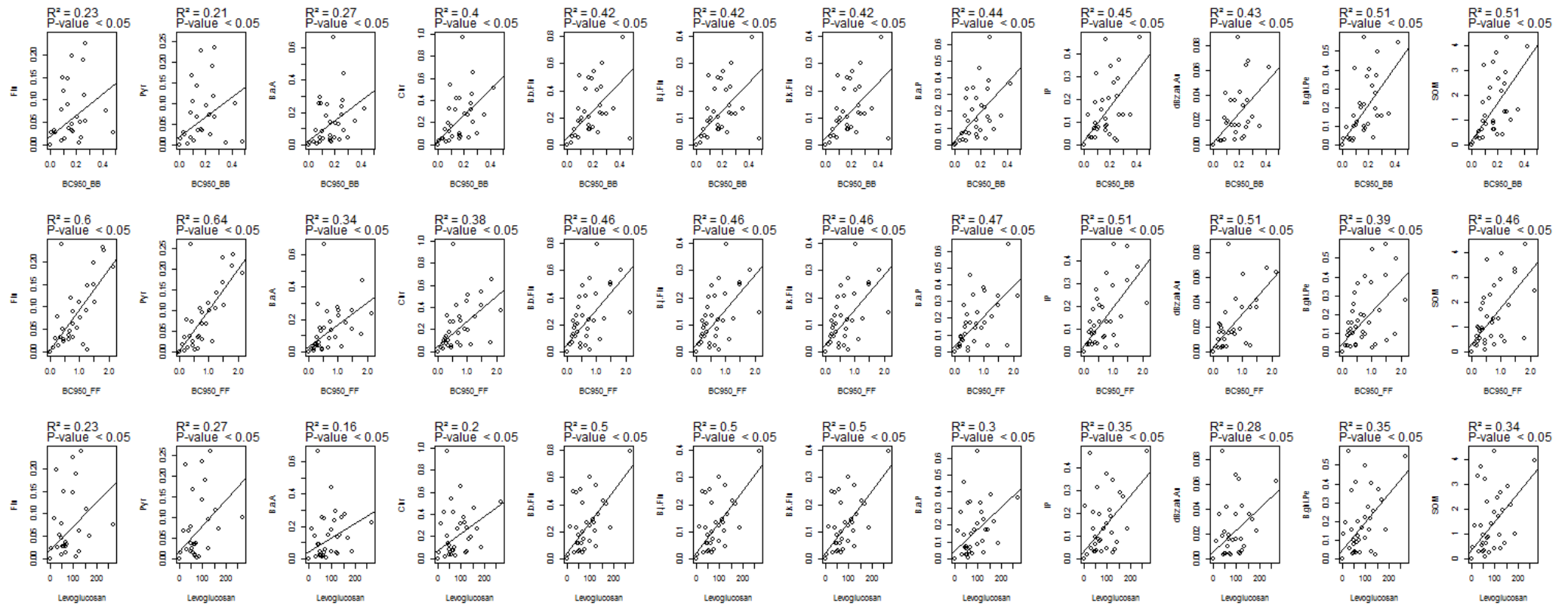
Figuur 50: Correlatieplots van  $BC_{WB}$ ,  $BC_{FF}$  en levoglucosan met de individuele PAK en de som van de PAK voor locatie B



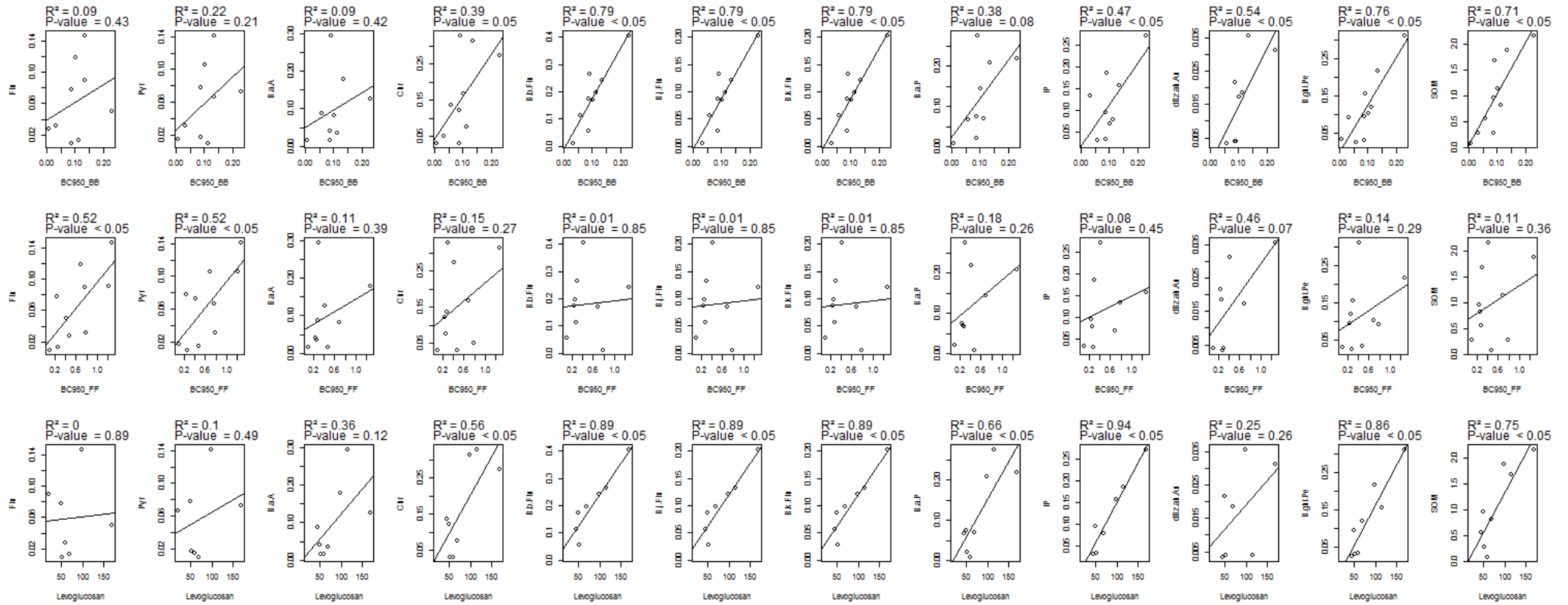
Figuur 51: Correlatieplots van BC<sub>WB</sub>, BC<sub>FF</sub> en levoglucosan met de individuele PAK en de som van de PAK voor locatie C



Figuur 52: Correlatieplots van BC<sub>WB</sub>, BC<sub>FF</sub> en levoglucosan met de individuele PAK en de som van de PAK voor locatie E

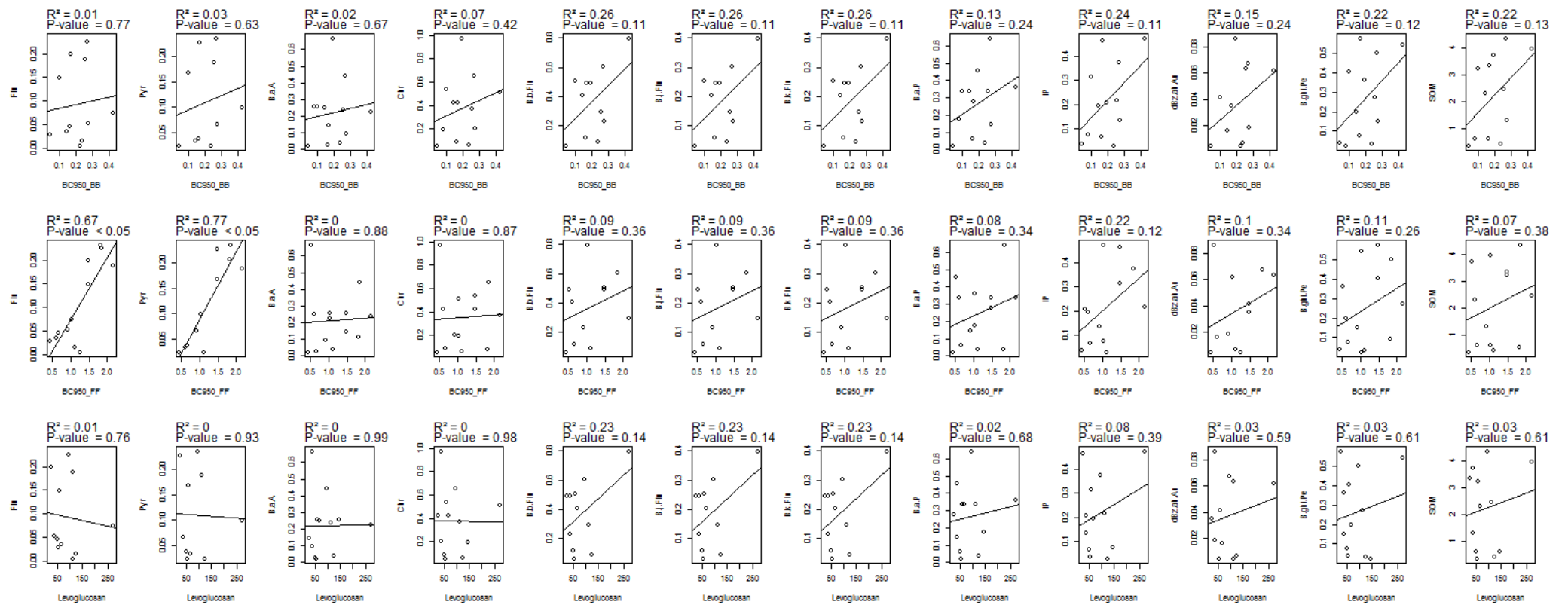


Figuur 53: Correlatieplots van de lokale bijdrage  $BC_{WB}$ ,  $BC_{FF}$  en levoglucosan met de lokale bijdrage voor de individuele PAK en de som van de PAK

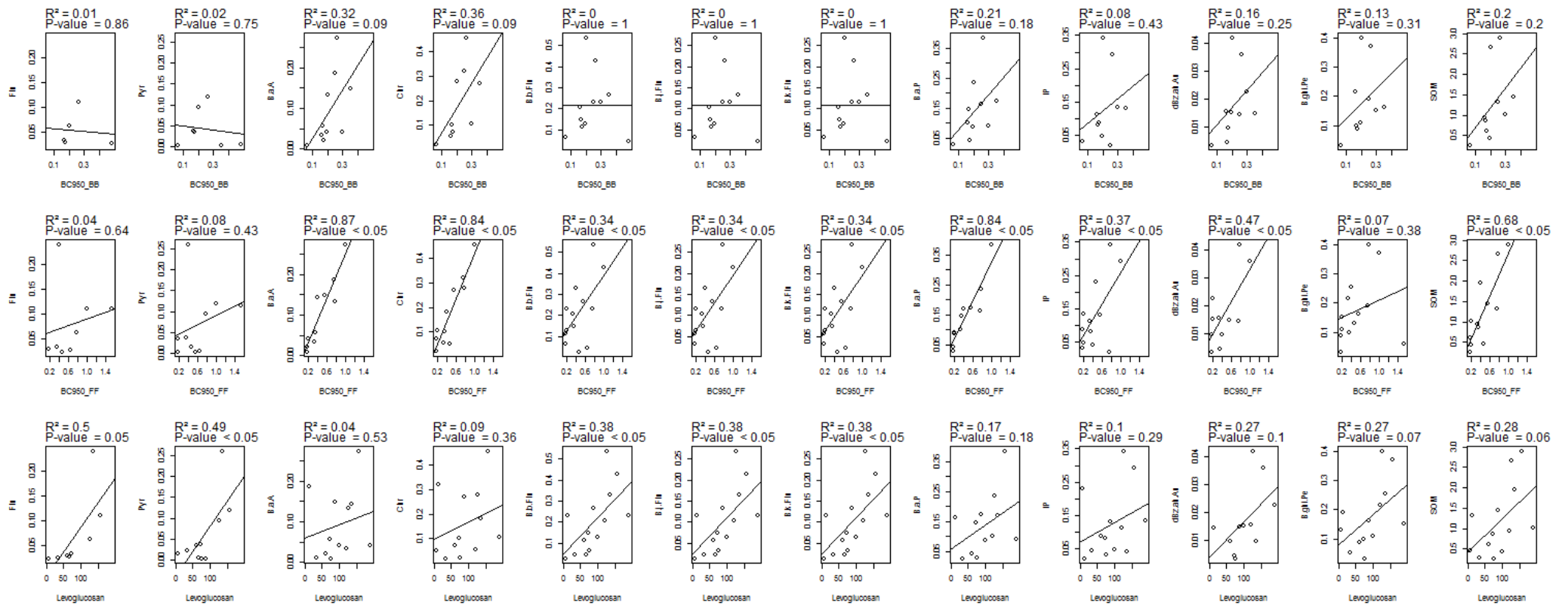


Figuur 54: Correlatieplots van de lokale bijdrage BC<sub>WB</sub>, BC<sub>FF</sub> en levoglucosan met de lokale bijdrage voor de individuele PAK en de som van de PAK, voor locatie A





Figuur 55: Correlatieplots van de lokale bijdrage BC<sub>WB</sub>, BC<sub>FF</sub> en levoglucosan met de lokale bijdrage voor de individuele PAK en de som van de PAK, voor locatie B



Figuur 56: Correlatieplots van de lokale bijdrage BC<sub>WB</sub>, BC<sub>FF</sub> en levoglucosan met de lokale bijdrage voor de individuele PAK en de som van de PAK, voor locatie C

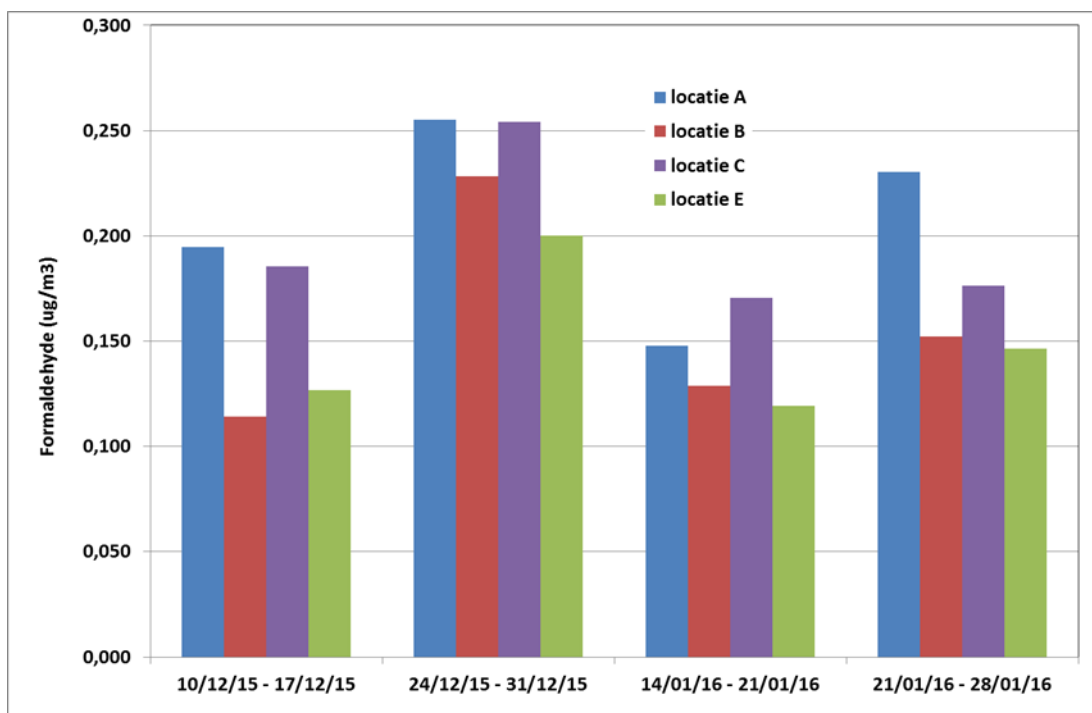
## 5.15. RESULTATEN VOOR DE ALDEHYDEN

### 5.15.1. PASSIEVE SAMPLERMETINGEN

Aldehyden worden vaak geassocieerd met hinder door houtverbranding en mogelijke gezondheidseffecten. Vooral acroleïne en formaldehyde zijn de meest schadelijke (Lipari et al., 1984). De passieve samplers (UMeX) werden geanalyseerd om de concentratie van formaldehyde en acroleïne te bepalen.

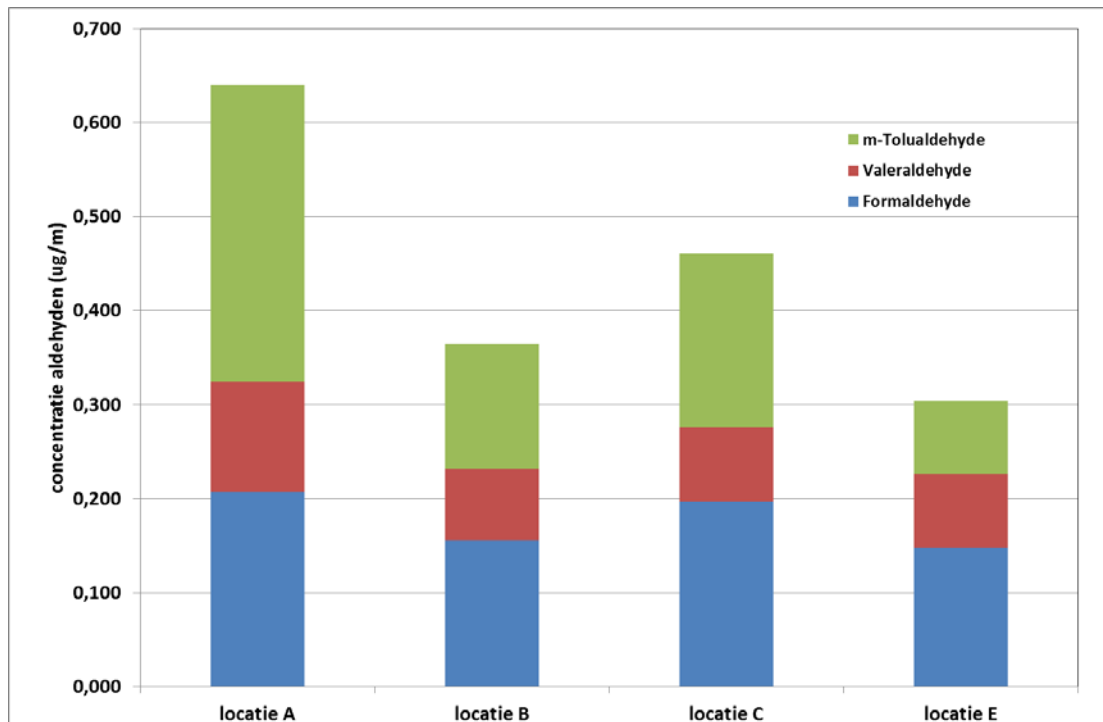
Voor acroleïne lag de concentratie voor alle samplers onder de detectielimiet van 0,01  $\mu\text{g/g}$  wat overeenkomt met een concentratie van 0,25  $\mu\text{g/m}^3$ . De resultaten voor formaldehyde zijn weergegeven in Figuur 57.

De hoogste concentraties werden gemeten op locatie A en locatie C, De laagste concentraties op locatie E. De concentraties op locatie B waren vergelijkbaar of iets hoger dan op locatie E. Dit is opmerkelijk aangezien voor de andere parameters op locatie B eerder hoge concentraties werden gemeten in vergelijking met de andere locaties.



Figuur 57: Resultaten voor formaldehyde

Naast formaldehyde en acroleïne werden nog andere componenten bepaald waarvan enkel voor valeraldehyde en m-tolualdehyde een significante hoeveelheid werd gevonden. De gemiddelde concentraties op alle locaties is weergegeven in Figuur 58.



Figuur 58: Concentratie van de aldehyden op de vier locaties

Spada et al. (2008) hebben op basis van dagprofielen van verschillende aldehyden de bronnen geïdentificeerd. m-Tolualdehyde (samen met p- en o-tolualdehyde) konden gelinkt worden met nabije verkeersemisies en houtverbranding. Valeraldehyde (of pentenal) en formaldehyde werden niet gerapporteerd in de studie. Acroleïne kon gelinkt worden aan houtverbranding en niet aan directe verkeersemisies. We moeten wel opmerken dat de maximale waarde van de gemeten 2-uurlijkse concentraties in de wintercampagne 324 ng/m<sup>3</sup> bedroeg, wat in de buurt ligt van de hier gerapporteerde detectielimiet voor acroleïne.

Volgens Cahill (2014) zijn verbrandingsbronnen de belangrijkste bronnen van acroleïne: zoals voertuigen, houtverbranding, tabaksrook en wierookstokjes. Ze vonden dat de acroleïne concentratie in een stedelijke omgeving 3 tot 8 keer hoger lag dan op achtergrondlocaties aan de kust (40 ng/m<sup>3</sup>). Ze stelden ook vast dat tolualdehyde een ander patroon vertoont dan acroleïne en sterk gelinkt is aan verkeersemisies. Op basis van de literatuur stellen we vast dat aldehyden niet specifiek genoeg zijn voor houtverbranding en daarom weinig meerwaarde kunnen bieden voor identificatie van houtverbranding. Wanneer aldehyden gelinkt kunnen worden aan hinder kunnen ze eventueel wel een meerwaarde hebben maar in dat geval kunnen passieve samplers eerder dienst doen als screening omwille van hun beperkte tijdsresolutie (weekwaarden).

### 5.15.2. TIJDSTRENDEN MET SIFT-MS

De SIFT-MS werd gebruikt om na te gaan of er tijdstrends waar te nemen zijn die we kunnen linken aan houtverbranding.

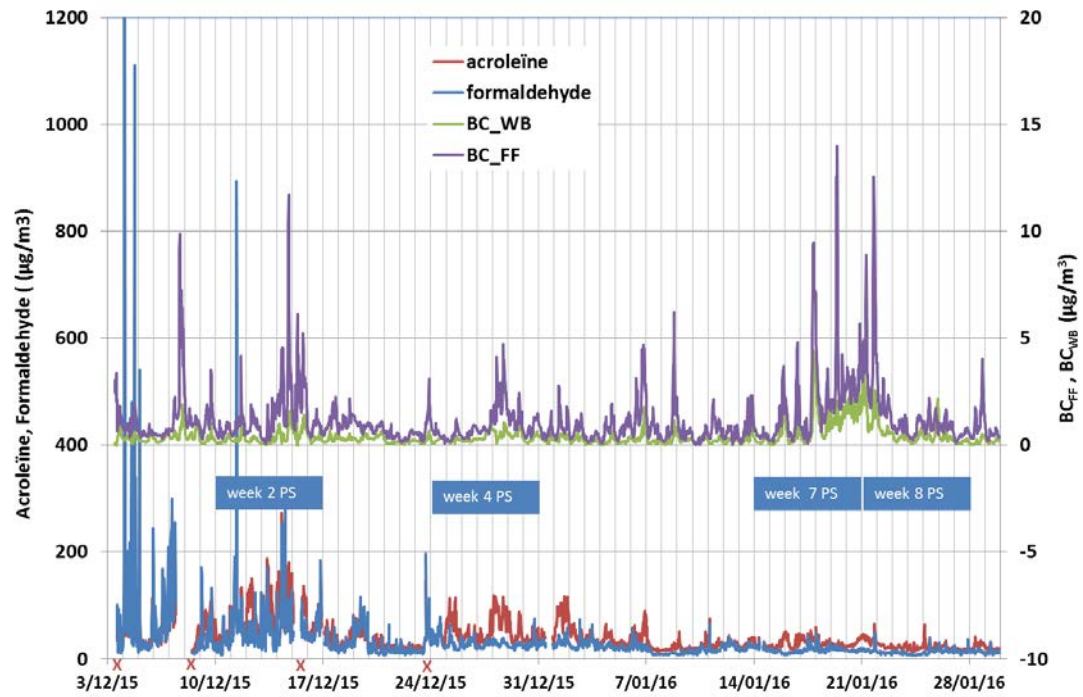
Figuur 59 geeft de concentraties van acroleïne en formaldehyde samen met die van BC<sub>FF</sub> en BC<sub>WB</sub>. Het was de bedoeling om deze techniek in te zetten gedurende de eerste vier weken. Daarom zijn er enkel gedurende deze weken kalibraties uitgevoerd met een gasmengsel om de sensitiviteit eventueel bij te stellen (aangeduid met een rood kruisje onderaan). Wanneer we de tijdstrend

bekijken en vergelijken met BC, lijkt het erop dat de gevoeligheid na deze vier weken afneemt. Dit is heel duidelijk in de smogperiode midden januari waar de concentraties voor de aldehyden niet verhoogd zijn. Op 23/12 werd nog een sterke verhoging van de concentratie vastgesteld na de kalibratie. Daarom kunnen we de data van deze laatste weken niet als betrouwbaar beschouwen en worden ze verder niet besproken. Bij de kalibratie na afloop van de meetcampagne stelden we bovendien vast dat de terugvindingspercentages vrij laag waren. Na afloop van de meetcampagne werd een verstopping in de inlaat vastgesteld die vermoedelijk de oorzaak is van de lagere concentraties gedurende de tweede helft van de meetcampagne. Daarom worden de tijdstrend van de laatste vier weken verder niet in detail besproken. Voor de metingen met passieve samplers werd beslist om de bemonsteringen uit te voeren gedurende de ganse meetcampagne en na afloop 4 weken te selecteren voor analyse. Deze 4 weken zijn aangeduid op de figuur (week 2, week 4, week 7 en week 8).

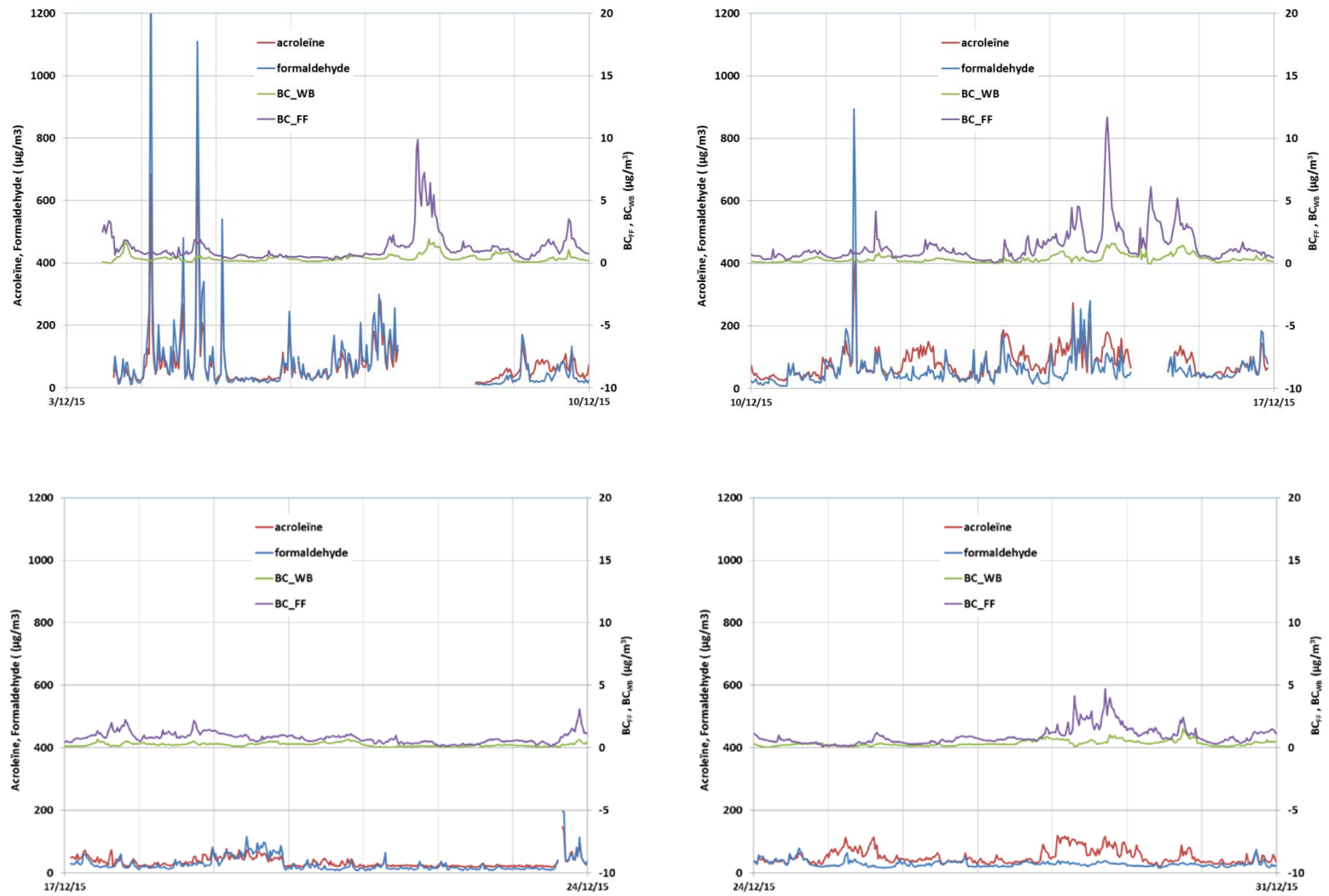
Op de tijdstrends is te zien dat de pieken van acroleïne en formaldehyde soms samenvallen met een verhoging van  $BC_{WB}$  maar ook van  $BC_{FF}$ , maar dit is niet altijd zo. Soms zijn er pieken van de aldehyden te zien die niet samenvallen met een verhoging van BC. De correlaties tussen enerzijds  $BC_{WB}$  en  $BC_{FF}$  en anderzijds de aldehyden acroleïne en formaldehyde is echter zeer slecht (maximale  $R^2 = 0,1$  ; voor de eerste 4 weken). Enkele voorbeelden van waarnemingen van de tijdstrends:

- op 4/12 worden duidelijk pieken van aldehyden waargenomen welke samenvallen met verhoging van BC in de late namiddag. Maar ook op andere ogenblikken die dag wordt een verhoging waargenomen voor aldehyden maar niet voor BC.
- Op 9/12 is een piek te zien voor  $BC_{FF}$  in de voor- en namiddag en voor  $BC_{WB}$  enkel in de namiddag. Het lijkt erop dat acroleïne eerder de trend van  $BC_{FF}$  volgt en formaldehyde eerder deze van  $BC_{WB}$ . De piek van de aldehyden die 's nachts wordt gemeten is niet terug te vinden in BC.
- Op 14/12 lijkt het dat acroleïne eerder de trend volgt van  $BC_{WB}$  en formaldehyde de trend van  $BC_{FF}$ . Maar de sterke verhoging in de avond van  $BC_{FF}$  wordt door geen van de aldehyden waargenomen.
- Op 28/12 (ochtend en avond) en 29/12 (avond) zijn er verhogingen te zien voor acroleïne die overeenkomen met deze voor  $BC_{FF}$  (en in veel mindere mate  $BC_{WB}$ ).

We kunnen besluiten dat de SIFT-MS techniek wel mogelijk potentieel heeft om tijdstrends van aldehyden en andere componenten op te volgen maar momenteel staat het gebruik van deze techniek voor omgevingsmetingen nog onvoldoende op punt. Bovendien is het wegens technische problemen tijdens de meetcampagne moeilijk om de resultaten te interpreteren. Bij gebruik van de techniek voor buitenmetingen is het aan te raden om regelmatige controles uit te voeren van de goede werking.



Figuur 59: Tijdstrends van de aldehyden (acroleïne en formaldehyde) en BC<sub>WB</sub> en BW<sub>FF</sub> over de ganse meetperiode



Figuur 60: Tijdstrends van de aldehyden (acroleïne en formaldehyde) en BC<sub>WB</sub> en BW<sub>FF</sub> voor weken 1 tot en met 4.

## HOOFDSTUK 6. RESULTATEN EMISSIEMETINGEN

### 6.1. CONDITIES TIJDENS DE METINGEN

Enkele parameters tijdens de emissiemetingen zijn weergegeven in Tabel 21. De weergegeven parameters zijn gemeten in de verdunningstunnel en daarnaast is ook de T en RV van de omgevingslucht weergegeven.

De condities voor de vier metingen waren vrij vergelijkbaar. Het debiet in de tunnel lag tussen 1036,3 – 1151,6 m<sup>3</sup>/u. De temperatuur in de verdunningstunnel was voldoende laag (12,7 – 18,2 °C) om eventuele verliezen bij bemonstering te vermijden. De CO/CO<sub>2</sub>-verhouding is vrij vergelijkbaar maar licht iets lager bij 2 (0,054) in vergelijking met de andere drie (0,071 – 0,86). Bij de opstartfase die gemeten is bij meting 1\_b lag de CO/CO<sub>2</sub>-verhouding ook lager (0,049).

Tabel 21: Condities in de verdunningstunnel en in omgevingslucht

|  | 1                | 1_b               | 2                 | 3                 |
|--|------------------|-------------------|-------------------|-------------------|
| <b>Datum</b>                                 | <b>9/12/2015</b> | <b>10/12/2015</b> | <b>13/01/2016</b> | <b>27/01/2016</b> |
| <b>Meetperiode</b>                           | 11u38 – 13u10    | 10u45 – 12u15     | 11u14 – 12u44     | 11u09 – 12u39     |
| <b>Debiet (m<sup>3</sup>/u)</b>              | 1036,3           | 1055,1            | 1142,9            | 1151,6            |
| <b>Watergehalte (%)</b>                      | 1,26             | 1,37              | 0,80              | 0,86              |
| <b>Temperatuur (°C) in verdunningstunnel</b> | 18,2             | 13,2              | 12,7              | 16,6              |
| <b>CO/CO<sub>2</sub></b>                     | 0,071            | 0,086*            | 0,054             | 0,081             |
| <b>Temperatuur (°C) van omgevingslucht</b>   | 9,3              | 6,5               | 6,7               | 12,7              |
| <b>RV (%) van omgevingslucht</b>             | 79,8             | 78,3              | 98,0              | 78,5              |
| <b>WS (m/s)</b>                              | 2,08             | 2,71              | 1,08              | 3,07              |

\* bij opstart bedroeg deze 0,049

### 6.2. VERDUNNING

Door het afzuigen van de schoorsteen met een overmaat aan omgevingslucht wordt het afgas van de schoorsteen sterk verdund. Deze verdunningsfactor kan berekend worden op basis van de gemeten CO<sub>2</sub> concentratie in de schouw en de gemeten CO<sub>2</sub> concentratie en het debiet gemeten in de verdunningstunnel. Hiernaast werd er ook rekening gehouden met de gemeten CO<sub>2</sub> concentratie in de omgevingslucht (achtergrondconcentratie).

$$\text{Verdunningsfactor} = \frac{C_{sch} - C_{omg}}{C_{vent} - C_{omg}}$$

Het debiet van de schouw wordt dan als volgt berekend:



$$Q_{sch} = \frac{Q_{verd}}{\text{Verdunningsfactor}}$$

Met :

$Q_{verd}$  = Debiet verdunningstunnel ( $\text{m}^3/\text{u}$ )

$C_{vent}$  =  $\text{CO}_2$  concentratie in de verdunningstunnel (ppm)

$C_{sch}$  =  $\text{CO}_2$  concentratie in de schouw (ppm)

$C_{omg}$  =  $\text{CO}_2$  concentratie in omgevingslucht (ppm)

De resultaten worden samengevat in Tabel 22. De gemeten concentraties in de verdunningstunnel worden vermenigvuldigd met deze verdunningsfactor om de totale concentratie en emissies te berekenen.

Tabel 22:  $\text{CO}_2$  gehalten, debiet en verdunningsfactor

|  | <b>1</b>    | <b>1_b</b>   | <b>3</b>    | <b>4</b>     |
|--|-------------|--------------|-------------|--------------|
| <b><math>\text{CO}_2</math> in de schouw (ppm)</b>                         | 22076       | 13967        | 17943       | 13616        |
| <b><math>\text{CO}_2</math> in de verdunningstunnel (ppm)</b>              | 2667        | 1740         | 2450        | 1588         |
| <b><math>\text{CO}_2</math> omgeving (ppm)</b>                             | 440         | 418          | 525         | 420          |
| <b>Gemeten debiet verdunningstunnel (<math>\text{m}^3/\text{u}</math>)</b> | 1036,3      | 1055,1       | 1142,9      | 1151,6       |
| <b>Berekend debiet schouw(<math>\text{m}^3/\text{u}</math>)</b>            | 106,7       | 102,9        | 126,3       | 101,9        |
| <b>Verdunningsfactor</b>   | <b>9,71</b> | <b>10,25</b> | <b>9,05</b> | <b>11,30</b> |

### 6.3. UITDRUKKEN VAN DE RESULTATEN

#### 6.3.1. EMISSIEFACTOREN IN DE LITERATUUR

De emissiefactoren van houtverwarmingsinstallaties worden meestal uitgedrukt in massa-eenheid emissies per energie-eenheid ( $\text{mg}/\text{MJ}$ ) (zie vb. Renders et al. 2011) of in massa-eenheid emissies per massa-eenheid hout verbruikt.

Volgens de EN 13240/A2 worden de resultaten van de emissiemetingen verrekend naar een referentiezuurstofgehalte van 13%. Gezien de grote verdunningsfactor in het meetkanaal en de grotere nauwkeurigheid van de  $\text{CO}_2$  meting in deze omstandigheden, wordt geopteerd de gemeten concentraties te verrekenen op basis van de  $\text{CO}_2$  concentratie. Een  $\text{O}_2$ -concentratie van 13% komt bij gebruik van vaste brandstof zoals steenkool en/of hout overeen met een  $\text{CO}_2$  gehalte van 8%. (zie ook Wevers 2002)

Volgens Dönzelman en Nelissen (2010) bedraagt het gemiddeld houtverbruik bij stoken in Nederland 2,8  $\text{kg}/\text{h}$ . Dezelfde auteurs hanteren 16  $\text{MJ}/\text{kg}$  hout als stookwaarde.

Wanneer we de hoeveelheid hout kennen, kunnen we gemakkelijk omrekenen naar emissies per energiehoeveelheid.

### 6.3.2. BEPALING VAN DE HOEVEELHEID HOUT

In deze studie was het de bedoeling de hoeveelheid hout dat verbrand is tijdens de emissiemetingen in te schatten. In de studie van Wevers (2002) werden de gemeten kachels op een balans geplaatst (in het labo) zodat gedurende de meting de hoeveelheid hout dat verbrand werd continu kon worden opgevolgd. In deze studie werden metingen uitgevoerd op kachels in huizen om de omstandigheden zo realistisch mogelijk te hebben. Daarom is geen continue opvolging van de massa mogelijk. Als benadering werd het hout alvorens het in de houtverwarmingsinstallatie werd gebracht gewogen en de tijd zorgvuldig genoteerd. Toch bleek het niet zo evident om de werkelijke hoeveelheid die verbrand was af te leiden omdat het hout soms deels verbrand was op het einde van de meting en bij het begin van de bemonstering.

Op locatie 1 werd tijdens de eerste meting van 10u17 tot 13u18 ongeveer 9,354 kg opgebrand, dit komt neer om een gemiddeld verbruik van 3,1 kg/h. Voor de herhaalde meting zijn er onvoldoende gegevens voorhanden.

Bij locatie 2 werd het toevoegen van hout nauwkeurig opgevolgd.

In totaal werd 4,355 kg hout gestookt van 11u14 – 14u44 wat neer komt op een verbruik van 2,9 kg/h.

Bij locatie 3 schatten we dat er 7,078 kg is opgestookt tussen 10u15 en 12u39, wat neer zou komen op een verbruik van 2,9 kg/h. Er is op deze locatie echter onvoldoende info over hoeveel hout er aanwezig was bij start en einde van de metingen.

De ingeschatte hoeveelheden hout verbruikt komen overeen met de cijfers uit Nederland (2,8 kg/h).

Omdat er mogelijk onzekerheid zit op de resultaten en we niet zeker zijn van onderlinge verschillen hebben we beslist om de gemeten emissies niet uit te drukken in 'per kg hout verbruikt'. De resultaten kunnen wel vergeleken worden met literatuurwaarden rekening houdend met een geschat verbruik van ongeveer 3 kg/h. Voor omzetting naar energie-eenheid gebruiken we de factor 15,47MJ/kg hout (voor blokken hout) die ook door Renders et al. (2011) gebruikt werd.

### 6.4. RESULTATEN VOOR HET TOTAAL STOFGEHALTE

De resultaten van de stofmassameting zijn weergegeven in Tabel 23. Voor de stofmeting werd telkens gedurende ongeveer 1,5 uur bemonsterd.

De gemeten concentraties bij de herhaalde metingen op de eerste meetlocatie komen goed overeen. De gemeten concentratie is het hoogst voor locatie 1 en het laagst voor locatie 2. Ook de uitstoot per uur volgt dezelfde trend tussen de locaties.

Voor locatie 1 is er een groot verschil tussen de gemeten CO<sub>2</sub>-concentratie bij eerste en tweede meting. Toch is de verdunningsfactor gelijk. De zuurstofconcentratie volgt de omgekeerde trend (hoger bij de tweede meting). De CO/CO<sub>2</sub>-verhouding van respectievelijk 0,089 en 0,071 wijst op iets andere stookomstandigheden. Toch is de stofconcentratie gelijk.

De stofconcentraties liggen tussen 41,2 en 143,6 mg/Nm<sup>3</sup>. Deze liggen in dezelfde grootteorde als gerapporteerd in Dönzelman en Nelissen (2010), met name 59 – 106 mg/m<sup>3</sup>.

Als we veronderstellen dat het houtverbruik steeds 3 kg/h bedroeg en de energetische waarde 15,47MJ/kg hout bedraagt, liggen de stofemissies tussen 107 - 310 mg/MJ. Dit is van dezelfde

grootteorde als de waarden uit de WoET-studie: respectievelijk 250 mg/MJ en 850 mg/MJ voor nieuwe en oude houtkachels (Renders et al. (2011)).

Uitgedrukt per kg hout liggen de PM-emissies tussen 1,65 – 4,79 g/kg hout. Deze waarden zijn van dezelfde grootteorde als gerapporteerd door Fine et al. (2004) m.n. 0,88 – 3,4 g/kg.

Tabel 23: Resultaten voor de stofmeting

|   | Locatie 1   | Locatie 1_b | Locatie 2   | Locatie 3     |
|---|-------------|-------------|-------------|---------------|
| Datum   | 9/12/2015   | 10/12/2015  | 13/01/2016  | 27/01/2016    |
| Meetperiode   | 11u38-13u10 | 10u45-11u30 | 11u14-12u44 | 11u09 – 12u39 |
| Aangezogen volume (NLdr)                                | 1121,7      | 1186,64     | 1130,4      | 1221,4        |
| Concentratie (mg/Nm <sup>3</sup> ) (onverdund)          | 136,6       | 143,6       | 41,2        | 98,8          |
| 8% CO <sub>2</sub> (mg/Nm <sup>3</sup> )                | 495,0       | 822,5       | 183,7       | 580,7         |
| Uitstoot bij reële CO <sub>2</sub> concentratie (g/uur) | 1,50        | 1,44        | 0,57        | 0,89          |

#### 6.5. RESULTATEN VAN DE GROOTTEVERDELING: FRACTIES PM<sub>10</sub> EN PM<sub>2,5</sub>

De stofmassa en analyses gebeuren op basis van een totale stofmeting (zonder voorafscheider). Om een idee te krijgen van de stoffracties en aldus de waargenomen emissies te kunnen vergelijken met omgevingsmetingen (PM<sub>10</sub>) werd een meting uitgevoerd met een tweetrapsimpactor.

In

tabel 24 worden de resultaten van de grootteverdelingsmetingen weergegeven. Per fractie (< 2,5  $\mu\text{m}$ ; tussen 2,5  $\mu\text{m}$  en 10  $\mu\text{m}$  en > 10  $\mu\text{m}$ ). De resultaten worden weergegeven als percentage van het totaal gehalte. De massa's worden weergegeven tussen haakjes.

De stoffractie varieert tussen **95,1 – 97,7% voor PM<sub>2,5</sub>** en tussen **97,7 - 99,0% voor PM<sub>10</sub>** over de verschillende metingen. Dit ligt in lijn met de resultaten gerapporteerd in Dönzselman en Nelissen (2010) welke een PM<sub>10</sub>-fractie tussen 98,2 en 99,2 % rapporteerden.

Wanneer de massa's van de verschillende fracties worden opgeteld, stellen we vast dat dit totaalgehalte aan stof lager ligt dan de gehalten gemeten met de referentiemethode. Met respectievelijk 9,57 mg/Nm<sup>3</sup>; 8,38 mg/Nm<sup>3</sup>; 1,46 mg/Nm<sup>3</sup> en 4,64 mg/Nm<sup>3</sup> via de grootteverdeling ten opzichte van 14,06 mg/Nm<sup>3</sup>; 14,01 mg/Nm<sup>3</sup>; 4,55 mg/Nm<sup>3</sup> en 8,75 mg/Nm<sup>3</sup> via de referentiemethode. Dit kan te maken hebben met het verschil in opzet van de metingen. Bij stofmeting zijn iso-kinetische omstandigheden vereist (EN 13284-1, 2001) en wordt de nozzle op basis daarvan gekozen. Bij de bepaling van de verschillende stoffracties is een bepaalde flow nodig om de juiste afsnijkaracteristieken te bekomen. We moeten ook opmerken dat de bemonsteringen niet altijd simultaan zijn uitgevoerd omwille van praktische redenen. De grootteverdelingsmeting is hier echter uitgevoerd als indicatieve meting om een idee te hebben van de grootteverdeling.

Tabel 24: Resultaten voor de grootteverdeling PM<sub>10</sub> en PM<sub>2,5</sub>

|                          | Locatie 1                                  | Locatie 1_b                                | Locatie 2                                  | Locatie 3                                  |
|--------------------------|--|--|--|--|
| Datum                    | 9/12/2015                                  | 10/12/2015                                 | 13/01/2016                                 | 27/01/2016                                 |
| Meetperiode              | 10u32-11u02                                | 10u45-12u15                                | 11u14-12u44                                | 11u09-11u39                                |
| Aangezogen volume (NLdr) | 1778,52                                    | 1853,53                                    | 3360,77                                    | 931,82                                     |
| Fractie <2,5 µm (%)      | <b>95,1%</b><br>(9,10 mg/Nm <sup>3</sup> ) | <b>95,1%</b><br>(7,96 mg/Nm <sup>3</sup> ) | <b>96,1%</b><br>(1,40 mg/Nm <sup>3</sup> ) | <b>97,7%</b><br>(4,53 mg/Nm <sup>3</sup> ) |
| Fractie 2,5<>10 µm (%)   | <b>3,4%</b><br>(0,33 mg/Nm <sup>3</sup> )  | <b>3,9%</b><br>(0,33 mg/Nm <sup>3</sup> )  | <b>1,6%</b><br>(0,02 mg/Nm <sup>3</sup> )  | <b>0,9%</b><br>(0,04 mg/Nm <sup>3</sup> )  |
| Fractie > 10 µm (%)      | <b>1,5%</b><br>(0,15 mg/Nm <sup>3</sup> )  | <b>1,0%</b><br>(0,09 mg/Nm <sup>3</sup> )  | <b>2,3%</b><br>(0,03 mg/Nm <sup>3</sup> )  | <b>1,4%</b><br>(0,06 mg/Nm <sup>3</sup> )  |

## 6.6. RESULTATEN ANALYSE STOFFILTERS

De stoffilters van de stofmeting uitgevoerd met de referentiemethode werden geanalyseerd op het gehalte Organic Carbon (OC), Elemental Carbon (EC) en Total Carbon (TC). Verder werd ook een analyse gedaan naar het gehalte levoglucosan (L), mannosan (M) en galactosan (G).

Het onverdunde resultaat werd telkens bekomen door vermenigvuldiging met een gemiddelde verdunningsfactor over de ganse meetperiode. De resultaten voor EC, OC en TC worden samengevat in Tabel 25.

Tabel 25: Resultaten voor EC, OC, TC en levoglucosan(L), mannosan (M) en galactosan (G) bepaald op filter

|                          | Locatie 1 | Locatie 1_b | Locatie 2 | Locatie 3 |
|--------------------------|-----------|-------------|-----------|-----------|
| OC (µg/Nm <sup>3</sup> ) | 74875     | 83138       | 16539     | 46177     |
| EC (µg/Nm <sup>3</sup> ) | 5947      | 7192        | 1085      | 4386      |
| TC (µg/Nm <sup>3</sup> ) | 80823     | 90330       | 17624     | 50564     |
| OC/EC                    | 12,6      | 11,6        | 15,2      | 10,5      |
| EC/TC                    | 0,07      | 0,08        | 0,06      | 0,09      |
| TC/PM                    | 0,59      | 0,63        | 0,43      | 0,51      |
|                          |           |             |           |           |
| L (µg/Nm <sup>3</sup> )  | 7688      | 5347        | 3916      | 4517      |
| M (µg/Nm <sup>3</sup> )  | 3939      | 447         | 224       | 2300      |
| G (µg/Nm <sup>3</sup> )  | 1525      | 128         | 47        | 404       |
| PM/L                     | 17,8      | 26,9        | 10,5      | 21,9      |
| OC/L                     | 9,7       | 15,5        | 4,2       | 10,2      |

### → OC/EC/TC

Er zijn grote verschillen te zien tussen de locaties: de OC en EC concentraties variëren tussen ongeveer 16,5 – 83,1 mg/m<sup>3</sup> voor OC en 1,1 – 7,2 mg/m<sup>3</sup> voor EC. (Tabel 25) De laagste

concentratie werd opnieuw gemeten bij locatie 2, zoals ook het geval was voor de totale stofmassa. De OC-concentratie op locatie 1 (meting 1\_b) lag een factor 5,0 hoger dan op locatie 2. Het relatieve verschil met de EC-concentratie was nog groter (factor 6,6). Dit zijn grotere relatieve verschillen in vergelijking met de totale stofmassa, die 3,5 keer hoger was op locatie 1\_b in vergelijking met 2. De verschillen met locatie 3 zijn minder groot: 45% hoger voor PM en respectievelijk 64 en 80% hoger voor EC en OC. De gemeten EC/TC-verhouding ligt tussen 0,06 en 0,09. Deze verhouding is het laagst bij locatie 2. De filters van locatie 2 toonden ook visueel een groot verschil met de andere, deze waren namelijk veel bruiner. Ongeveer de helft van PM bestaat uit TC (43 – 63 %) en de laagste verhouding wordt gemeten bij locatie 2.

#### → levoglucosan, galacosan en mannosan

De analyse voor **levoglucosan, galacosan en mannosan** in de emissiesamples gebeurde op dezelfde manier als voor de omgevingsmetingen. De analyses waren echter opgezet en gevalideerd voor omgevingssamples (mondelinge communicatie R. Cordell, U Leicester). Daarom moesten de derivaten 100 maal verdund worden na een eerste analyse. Dit betekent dat de stalen 24h in de autosampler bij kamertemperatuur hebben gezeten vóór de analyse werd uitgevoerd. Het is niet duidelijk wat het effect hiervan is.

Bovendien werd er een contaminant in de stalen vastgesteld dat samen met de IS (Interne Standaard) werd gemeten, zodat deze IS niet gebruikt kon worden voor de correctie van de ruwe data (om te corrigeren voor verliezen bij extractie en instrumentvariabiliteit). Dit betekent dat het labo geen garantie kan geven over de accuraatheid van de data. Het is mogelijk dat er in deze samples andere interfererende pieken in de buurt van M en G zijn, die meer uitgesproken zijn in bepaalde samples en daardoor onnauwkeurige data geven voor deze 2 componenten.

Het is niet duidelijk in welke mate de heranalyse eventueel kan leiden tot afbraak van levoglucosan (tijdens bewaring in het meettoestel) en/of de eventuele afbraak dan sterk verschillend is voor levoglucosan en de andere isomeren. Dit zou dan kunnen leiden tot een onder/overschatting van de L/M-factor van de emissiemetingen.

De resultaten van levoglucosan (L), galactosan (G) en mannosan (M) zijn weergegeven in Tabel 25. De concentratie L lag tussen ongeveer 3,9 en 6,7 mg/Nm<sup>3</sup>.

Op locatie 1 waren de concentraties voor de houtverbrandingstracers hoger dan op locatie 1\_b, terwijl dit voor PM, EC en OC omgekeerd was. Meting 1\_b is op dezelfde houtverwarmingsinstallatie uitgevoerd als meting 1, maar met een ander houtmengsel: den en beuk (1\_b) in plaats van den (1). Op locatie 1 wordt 70% meer gemeten dan op locatie 3, wat een vergelijkbaar verschil is als bij OC/EC en de PM massa. Op locatie 1 wordt dubbel zoveel gemeten als op 2, wat een kleiner verschil is dan voor stof en OC/EC. Over het algemeen zijn de verschillen voor de houtverbrandingstracer levoglucosan kleiner dan voor de stofemissies.

De PM/L ratio varieert tussen 10,5 en 26,9 en de OC/L varieert tussen 4,2 en 15,5. Ook door Fine et al. (2004) werd vastgesteld dat de verhouding L/OC verschillend is in functie van type kachel en hout.

De hoge waarde voor PM/L geeft aan dat de bepaling van aandeel houtverbranding op basis van de veel gebruikte factor 10,7 waarschijnlijk onderschat is.

#### → Verhouding L/M

De verhouding L/M is een maat voor het aandeel hard en zacht hout. Tabel 26 geeft de ratio's weer gemeten in deze studie samen met de houtsoort die bij elk experiment gebruikt werd.

Op locatie 1 werd bij de eerste meting een combinatie van eik en den gestookt maar enkel den tijdens de effectieve bemonstering. Bij de tweede meting op locatie 1 (1\_b) werd een combinatie van den en beuk gestookt. Bij de locatie 2 werd eik gestookt en op locatie 3 enkel den.

Door Schmidl et al. (2008) werd een verhouding van 14 – 15 bepaald voor hard hout en een verhouding van 3,6 – 3,9 voor zacht hout.

Fine et al. (2004) bepaalden de verhouding L/M op 13 – 24 voor hard hout en 3,9 – 6,7 voor zacht hout. De waarden bepaald in deze studie zijn vergelijkbaar, maar liggen iets lager voor zacht hout.

Tabel 26: L/M- en L/M+G-ratio voor de vier emissiemetingen en het soort hout dat werd gebruikt

|             | soort hout  | L/M  | L/(M+G) |
|-------------|-------------|------|---------|
| Locatie 1   | den         | 2,0  | 1,4     |
| Locatie 1_b | den en beuk | 12,0 | 9,3     |
| Locatie 2   | eik         | 17,5 | 14,4    |
| Locatie 3   | den         | 2,0  | 1,7     |

## 6.7. RESULTATEN VOOR DE PAK

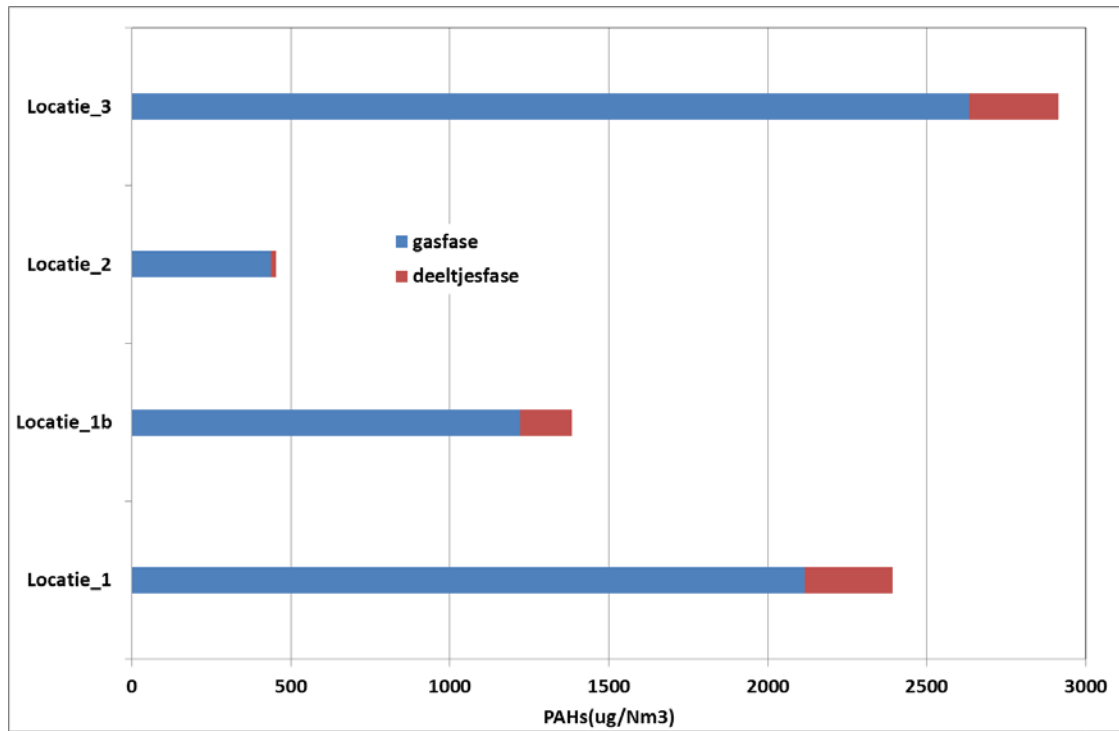
De resultaten van de PAK zijn weergegeven in Figuur 61 en Tabel 25. Opnieuw werd op locatie 2 de laagste concentratie gemeten; deze was een factor 4,5 lager dan op locatie 1 (eerste meting) en een factor 6 hoger dan op locatie 3. De PAK concentratie die op locatie 3 werd gemeten was hoger dan op locatie 1. Als we enkel naar de PAK in de stoffractie kijken, zien we dat locatie 1 (eerste meting) en 3 vergelijkbaar zijn en locatie 2 veel lager ligt (15x). Dit betekent dat enkel de stofemissies geen indicator zijn voor de hoeveelheid PAK die wordt uitgestoten. Op de locaties waar de hoogste PAK-concentraties werden gemeten werd telkens een zachte houtsoort (den) gestookt. We kunnen op basis van deze vier metingen niet besluiten of deze trend representatief is of er andere factoren gespeeld hebben. Wat ook opvalt is dat houtverbrandingsinstallaties verantwoordelijk zijn voor vluchtige PAK die niet op filter worden gemeten.

In Figuur 62 is de bijdrage van de verschillende PAK in de deeltjesfase weergegeven voor alle emissiemetingen. Op locatie 1 zijn de belangrijkste PAK in de stoffractie fluorantheen en pyreen. Ook op locatie 3 vormen ze de belangrijkste fractie. Samen met benzo(a)anthraceen en chryseen maken zij ongeveer  $\frac{3}{4}$  uit van de PAK op stof. Voor locatie 2 vormen benzo(a)anthraceen en chryseen de belangrijkste bijdrage en zijn fluorantheen en pyreen in verwaarloosbare fractie aanwezig. Hierbij moet opgemerkt worden dat fluorantheen en pyreen wel in de gasfase gemeten werden op locatie 2.

Benzo(a)pyreen is in alle stalen in een vergelijkbare fractie aanwezig; het aandeel B(a)P ten opzichte van de 10 PAK die VMM in omgevingslucht meet, bedraagt respectievelijk 6,1; 10,0 en 7,5% op locatie 1, 2 en 3. Dit aandeel is van dezelfde grootteorde als wat VMM meet in omgevingslucht.

Van de PAK in de gasfase is naftaleen in alle stalen de belangrijkste component met een bijdrage tussen 68-75%.

Van de 10 PAK die door VMM in omgevingslucht worden gemeten, werd op locatie 1 en 3 slechts een beperkte fractie in de gasfase gemeten namelijk 0,3 en 4% op locatie 1 en 3. Op locatie 2 was de bijdrage hoger: daar werden pyreen en fluorantheen in de gasfase gemeten. Dit verklaart mogelijk waarom deze niet in deeltjesfase gemeten zijn. Het is niet duidelijk waarom deze hier in de gasfase gemeten werden in plaats van in de deeltjesfase zoals bij de andere kachels.



Figuur 61: Som van de PAK concentraties in de deeltjesfase en gasfase



Tabel 27: Resultaten voor de PAK emissiemetingen

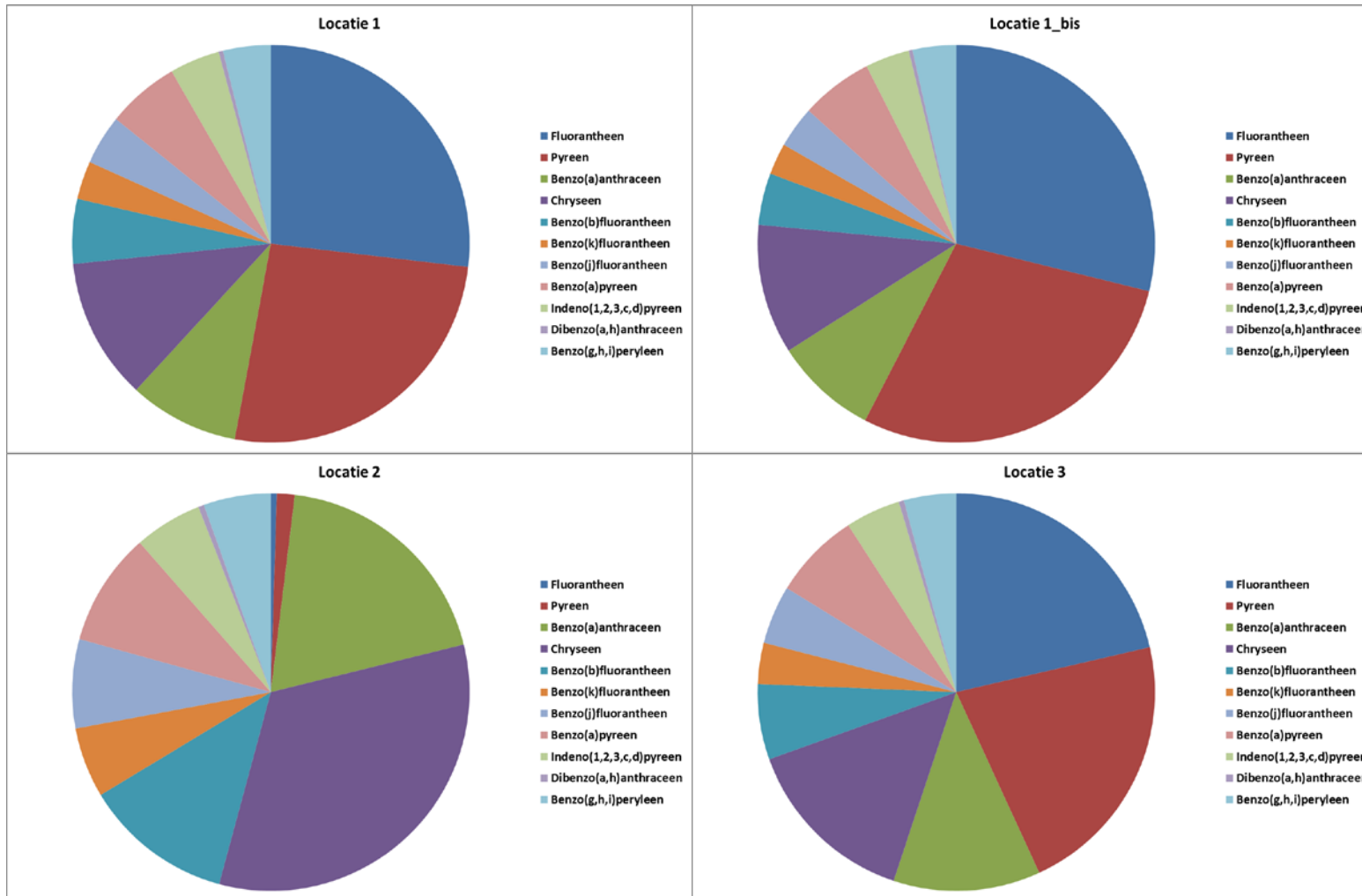
| Meetlocatie  | 1                 |                  | 1_b               |                  | 2                 |                  | 3                 |                  |
|--|-------------------|------------------|-------------------|------------------|-------------------|------------------|-------------------|------------------|
| Datum  | 9/12/2015         |                  | 10/12/2015        |                  | 13/01/2016        |                  | 27/01/2016        |                  |
| Meetperiode  | 11u38 – 13u10     |                  | 10u45 – 12u15     |                  | 11u14 – 12u44     |                  | 11u09 – 12u39     |                  |
| Aangezogen volume (Nldr)   | 1076,91           |                  | 1166,50           |                  | 1144,14           |                  | 1121,35           |                  |
| Stofgehalte (mg/Nm <sup>3</sup> )                                      | 128,6             |                  | 156,6             |                  | 41,0              |                  | 105,0             |                  |
| <b>Totaal gehalte PAKS *</b>   |                   |                  |                   |                  |                   |                  |                   |                  |
|  | <b>Stofvormig</b> | <b>Gasvormig</b> | <b>Stofvormig</b> | <b>Gasvormig</b> | <b>Stofvormig</b> | <b>Gasvormig</b> | <b>Stofvormig</b> | <b>Gasvormig</b> |
| Totaal (µg/Nm <sup>3</sup> dr)   | 276,1             | 2117,2           | 163,9             | 1221,3           | 17,6              | 437,4            | 279,6             | 2634,0           |
|  | 2393,3            |                  | 1385,2            |                  | 455,0             |                  | 2914,7            |                  |
| <b>Totaal VMM PAK** (µg/Nm<sup>3</sup>dr)</b>                          | <b>275,5</b>      |                  | <b>158,6</b>      |                  | <b>23,6</b>       |                  | <b>290,9</b>      |                  |
| Uitstoot (mg/u)<br>Onverdund bij reële<br>CO <sub>2</sub> concentratie | 255,3             |                  | 142,6             |                  | 57,5              |                  | 297,0             |                  |

\* analyseresultaten < DL werden als 0 beschouwd in het totale gehalte PAK

\*\* som van de PAK die door VMM op filter worden gemeten in de omgevingslucht (hier wordt de som van deeltjes- en gasfase van de emissiemetingen weergegeven)

Tabel 28: Resultaten PAK profiel

| Meetlocatie             | 1  |           | 1_b        |           | 2          |           | 3          |           |
|-------------------------|--|-----------|------------|-----------|------------|-----------|------------|-----------|
|                         | PAK profiel ( $\mu\text{g}/\text{Nm}^3\text{dr}$ ) |           |            |           |            |           |            |           |
|                         | Stofvormig   | Gasvormig | Stofvormig | Gasvormig | Stofvormig | Gasvormig | Stofvormig | Gasvormig |
| Naftaleen               | 0,12   | 1533,40   | 0,11       | 966,46    | 0,08       | 325,91    | <0,1       | 1814,03   |
| Acenaftyleen            | <0,1   | 317,50    | <0,1       | 159,03    | <0,09      | 29,19     | <0,1       | 367,85    |
| Acenafteen              | <0,1   | 22,55     | <0,1       | 13,44     | <0,09      | 3,03      | <0,1       | 35,47     |
| Fluoreen                | <0,1   | 40,95     | <0,1       | 36,29     | <0,09      | 12,34     | <0,1       | 65,41     |
| Fenanthreen             | 1,13   | 165,07    | 4,58       | 36,55     | 0,40       | 50,94     | <0,6       | 281,17    |
| Anthraceen              | 0,21   | 36,89     | 1,08       | 9,05      | 0,08       | 9,41      | 0,10       | 58,75     |
| Fluorantheen            | 73,78  | 0,60      | 45,60      | 0,35      | 0,08       | 4,17      | 59,76      | 7,57      |
| Pyreen                  | 71,53  | 0,27      | 45,42      | 0,17      | 0,25       | 2,42      | 60,87      | 3,74      |
| Benzo(a)anthraceen      | 24,53  | <0,1      | 13,27      | <0,1      | 3,27       | <0,09     | 33,46      | <0,1      |
| Chryseen                | 31,66  | <0,1      | 16,69      | <0,1      | 5,63       | <0,09     | 40,31      | <0,1      |
| Benzo(b)fluorantheen    | 14,43  | <0,1      | 6,65       | <0,1      | 2,07       | <0,09     | 17,13      | <0,1      |
| Benzo(k)fluorantheen    | 8,53   | <0,1      | 4,03       | <0,1      | 0,97       | <0,09     | 9,37       | <0,1      |
| Benzo(j)fluorantheen    | 11,09  | <0,1      | 5,34       | <0,1      | 1,23       | <0,09     | 13,30      | <0,1      |
| Benzo(a)pyreen          | 16,24  | <0,1      | 9,31       | <0,1      | 1,57       | <0,09     | 19,85      | <0,1      |
| Indeno(1,2,3,c,d)pyreen | 11,18  | <0,1      | 5,68       | <0,1      | 0,94       | <0,09     | 12,50      | <0,1      |
| Dibenzo(a,h)anthraceen  | 0,99   | <0,1      | 0,48       | <0,1      | 0,08       | <0,09     | 1,18       | <0,1      |
| Benzo(g,h,i)peryleen    | 10,64  | <0,1      | 5,60       | <0,1      | 0,93       | <0,09     | 11,89      | <0,1      |



Figuur 62: Relatieve bijdrage van de verschillende PAK in de deeltjesfase

## 6.8. RESULTATEN AFGASSEN

De resultaten van de gassen zijn weergegeven in Tabel 29. De relatieve verschillen voor de gassen zijn veel minder groot dan voor de deeltjes. Voor CO zijn de verschillen het grootst.

Tabel 29: Resultaten voor de gassen bij de emissiemetingen

| Meetlocatie   | 1                     |                    | 1_b                   |                    | 2                     |                    | 3                     |                    |
|---|-----------------------|--------------------|-----------------------|--------------------|-----------------------|--------------------|-----------------------|--------------------|
| Datum   | 9/12/2015             |                    | 10/12/2015            |                    | 13/01/2016            |                    | 27/01/2016            |                    |
| Meetperiode   | 11u38-13u10           |                    | 10u45-12u15           |                    | 11u14-12u44           |                    | 11u09 – 12u39         |                    |
|   | Reële CO <sub>2</sub> | 8% CO <sub>2</sub> | Reële CO <sub>2</sub> | 8% CO <sub>2</sub> | Reële CO <sub>2</sub> | 8% CO <sub>2</sub> | Reële CO <sub>2</sub> | 8% CO <sub>2</sub> |
| O <sub>2</sub> vol%   | 18,51                 |                    | 19,40                 |                    | 19,08                 |                    | 19,45                 |                    |
| CO <sub>2</sub> %   | 2,21                  |                    | 1,40                  |                    | 1,79                  |                    | 1,36                  |                    |
| NO (mg/Nm <sup>3</sup> )  | 19,83                 | 72,8               | 15,24                 | 79,2               | 12,91                 | 61,4               | 13,96                 | 80,8               |
| NO <sub>2</sub> (mg/Nm <sup>3</sup> )                                   | 2,21                  | 9,1                | 2,11                  | 13,5               | 4,73                  | 22,5               | 2,55                  | 16,8               |
| NO <sub>x</sub> (uitgedrukt als NO <sub>2</sub> ) (mg/Nm <sup>3</sup> ) | 32,61                 | 120,7              | 25,49                 | 135,0              | 24,53                 | 109,0              | 23,96                 | 140,7              |
| CO (mg/Nm <sup>3</sup> )  | 1963,6                | 7962,1             | 1493,8                | 10470,4            | 1208,6                | 6180,8             | 1369,9                | 8768,7             |
| SO <sub>2</sub> (mg/Nm <sup>3</sup> )                                   | 33,01                 | 133,2              | 39,95                 | 264,7              | 23,34                 | 113,4              | 32,18                 | 216,2              |

| Meetlocatie   | 1           |  | 1_b         |  | 2           |  | 3             |  |
|---|-------------|--|-------------|--|-------------|--|---------------|--|
| Datum   | 9/12/2015   |  | 10/12/2015  |  | 13/01/2016  |  | 27/01/2016    |  |
| Meetperiode   | 11u38-13u10 |  | 10u45-12u15 |  | 11u14-12u44 |  | 11u09 – 12u39 |  |
| Uitstoot  |             |  |             |  |             |  |               |  |
| NO (g/uur)  | 2,12        |  | 1,57        |  | 1,63        |  | 1,42          |  |
| NO <sub>2</sub> (g/uur)                                   | 0,24        |  | 0,22        |  | 0,60        |  | 0,26          |  |
| NO <sub>x</sub> (uitgedrukt als NO <sub>2</sub> ) (g/uur) | 3,48        |  | 2,624       |  | 3,10        |  | 2,44          |  |
| CO (g/uur)  | 209,5       |  | 153,8       |  | 152,6       |  | 139,6         |  |
| SO <sub>2</sub> (g/uur)                                   | 3,52        |  | 4,11        |  | 2,95        |  | 3,28          |  |

**6.1. OPSTARTFASE**

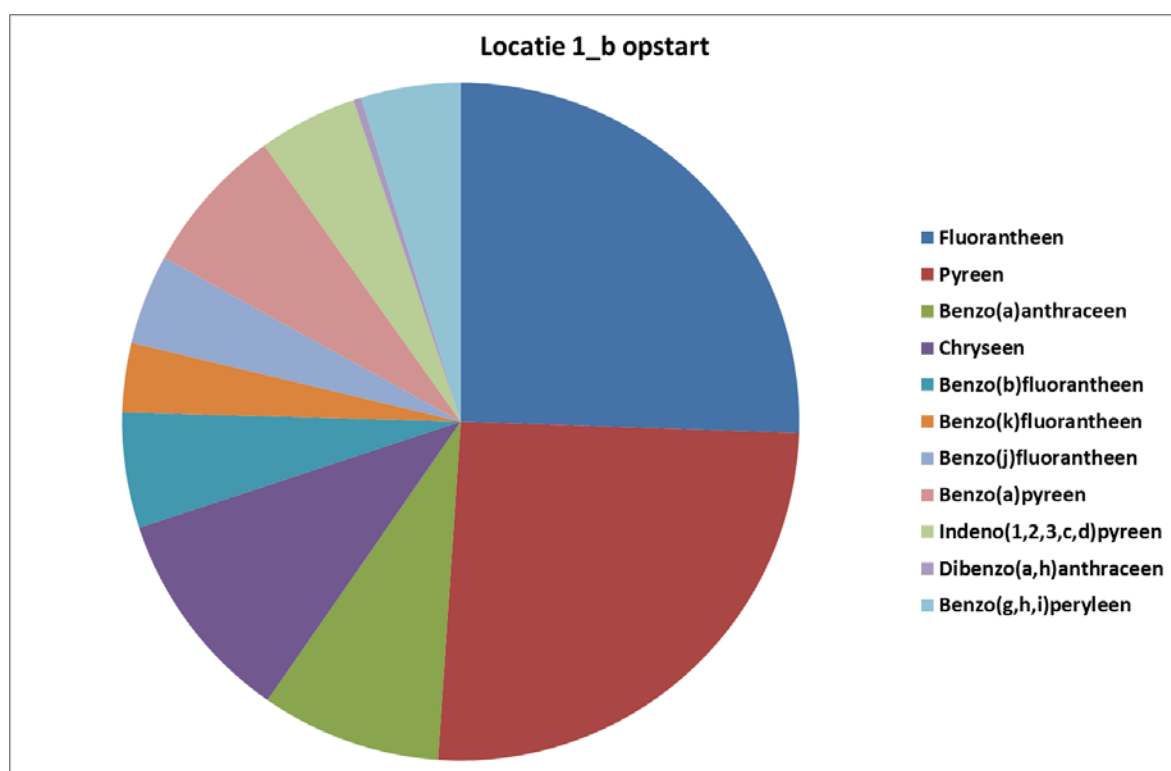
Op 10/12/2016 werd op locatie 1\_b de opstartfase van het stoken opgevolgd. Tijdens deze opstart werd een stoffilter bemonsterd waarop het gehalte PAK bepaald werd. De resultaten van deze bemonstering worden samengevat in Tabel 30. Omdat enkel een stoffilter bemonsterd werd en geen Tenax-patroon, betreft het hier enkel stofgebonden PAK. De relatieve bijdrage van de verschillende PAK in de deeltjesfase is weergegeven in Figuur 63.

De gemeten concentratie tijdens de opstart ligt iets hoger in vergelijking met normaal branden. De verhouding van de verschillende PAK is vergelijkbaar.

Het totale stofgehalte is lager dan bij de meting op locaties 1, 1\_b en 3; dit betekent dat de relatieve hoeveelheid PAK op stof groter is bij de opstart.

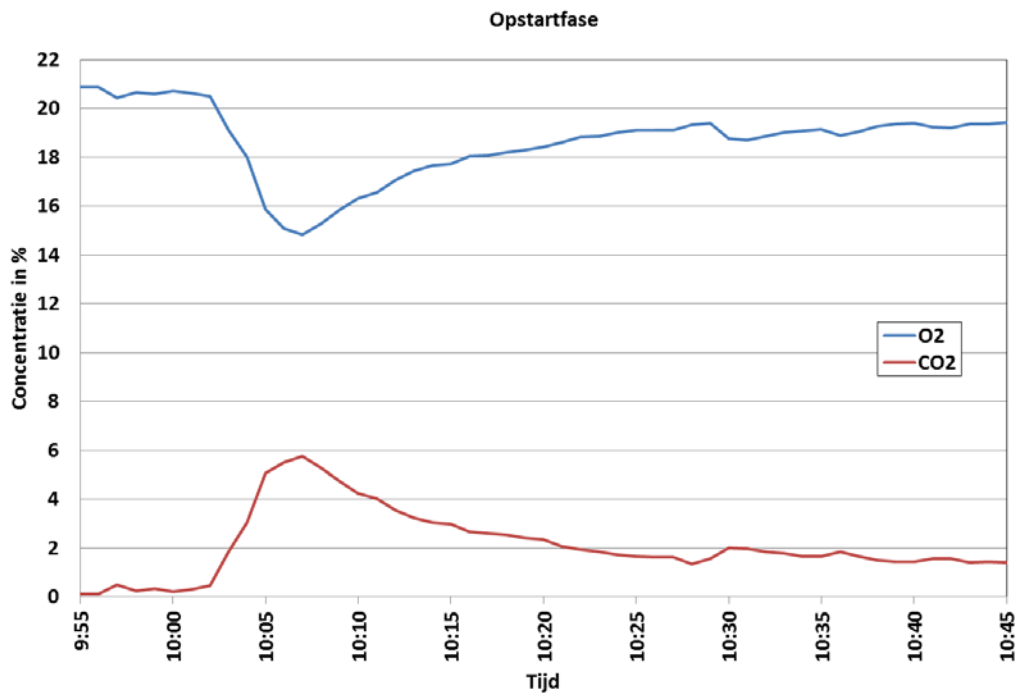
Tabel 30: Resultaten voor de PAK tijdens opstartfase

| Meetlocatie                       | 1_b                                 |
|-----------------------------------|-------------------------------------|
| Datum                             | 10/12/2016                          |
| Meetperiode                       | 9u56-10u26                          |
| Aangezogen volume (Nldr)          | 386,22                              |
| Stofgehalte (mg/Nm <sup>3</sup> ) | <b>15,28</b>                        |
|                                   | Stofvormig<br>µg/Nm <sup>3</sup> dr |
| Naftaleen                         | < 0,3                               |
| Acenaftyleen                      | <0,3                                |
| Acenafteen                        | <0,3                                |
| Fluoreen                          | <0,3                                |
| Fenanthreen                       | 1,2                                 |
| Anthraceen                        | 0,3                                 |
| Fluorantheen                      | 108,6                               |
| Pyreen                            | 108,6                               |
| Benzo(a)anthraceen                | 36,5                                |
| Chryseen                          | 43,6                                |
| Benzo(b)fluorantheen              | 23,4                                |
| Benzo(k)fluorantheen              | 14,0                                |
| Benzo(j)fluorantheen              | 18,2                                |
| Benzo(a)pyreen                    | 30,2                                |
| Indeno(1,2,3,c,d)pyreen           | 20,1                                |
| Dibenzo(a,h)anthraceen            | 1,6                                 |
| Benzo(g,h,i)peryleen              | 20,2                                |
| <b>Totaal (stofgebonden)</b>      | <b>426,6</b>                        |

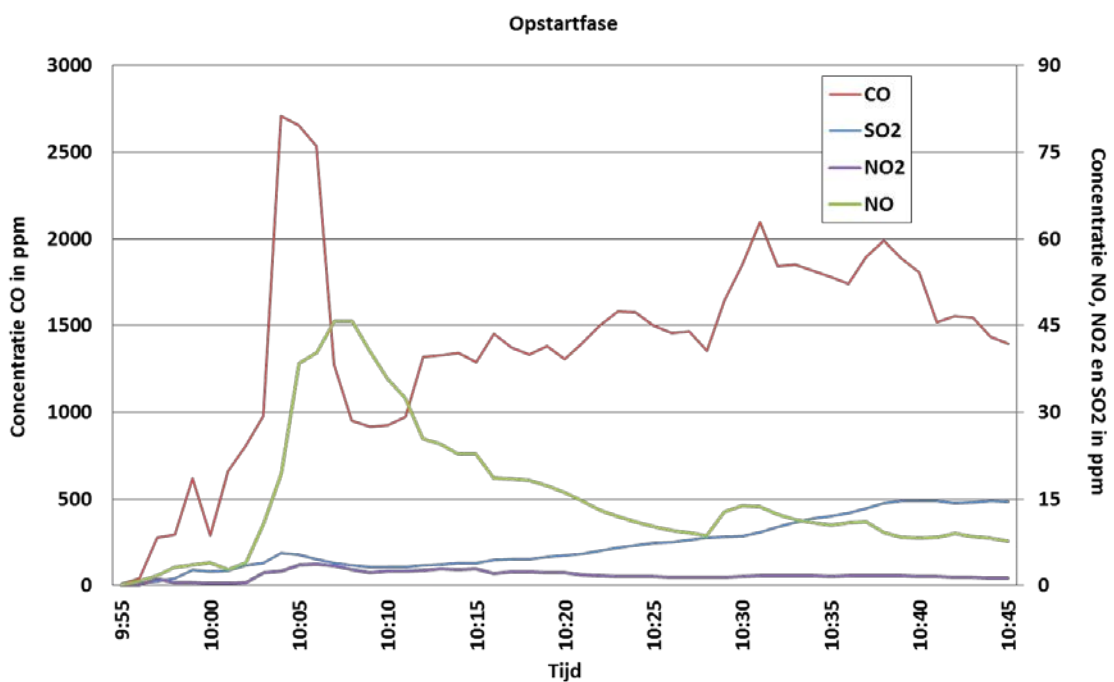


*Figuur 63: Relatieve bijdrage van de verschillende PAK in de deeltjesfase tijdens de opstart*

Figuur 64 toont de O<sub>2</sub> en CO<sub>2</sub> concentratie tijdens de opstartfase. Hierbij werd om 10u02 1,85 kg den bijgevuld, wat zichtbaar is in de concentratie. In Figuur 65 is te zien dat dit ook een piek geeft voor NO en CO.



Figuur 64: Concentratie van O<sub>2</sub> en CO<sub>2</sub> tijdens de opstartfase - locatie 1\_b



Figuur 65: Concentratie van CO, SO<sub>2</sub>, NO<sub>2</sub> en NO tijdens de opstartfase - locatie 1\_b

---

## HOOFDSTUK 7. CONCLUSIES

---

In deze studie werden metingen uitgevoerd in een woonwijk (Dessel) waar een invloed van houtverbranding te verwachten is. De meetcampagne werd uitgevoerd in de winter van 4/12/15 tot en met 31/1/16 op drie locaties in we woonwijk (A-C) en een achtergrondlocatie (E).

Het studiegebied wordt normaal niet sterk beïnvloed door belangrijke lokale verkeersemissies maar ten tijde van de metingen was er een omleidingsweg gelegen vlak naast locatie B waardoor deze wel beïnvloed werd door verkeer.

Er werd een enquête uitgevoerd in de buurt om te peilen naar het gebruik van houtverbranding en ervaringen met hinder door houtstook. De respons was 67%. Van de respondenten gaf 42% aan dat ze hout verbruiken als secundaire verwarmingsbron. Het werkelijke % ligt bijgevolg tussen 28 en 64%, wat de locatie voldoende geschikt maakt voor deze studie. In de meeste gevallen worden cassette (57%) en houtkachel (30%) gebruikt als verwarmingsbron, gestookt met blokken hout. Zowel hard als zacht hout wordt gebruikt in het studiegebied en de meeste mensen gebruiken een combinatie.

Tijdens de meetcampagne lagen de concentraties  $PM_{10}$  vrij laag (gemiddelden tussen 15,7 en 18,7  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ). Vijftien filters op elk van de locaties werden geselecteerd voor analyse van PAK, houtverbrandingstracers (L, M, G), EC en OC. De gemiddelde  $PM_{10}$  -concentraties voor de geselecteerde filters lag hoger en was meer representatief voor een winterperiode (gemiddelden tussen 23,8 en 26,3  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ). Ter vergelijking: de  $PM_{10}$ -concentratie over alle Vlaamse meetstations over alle wintermaanden voor de periode 2011 – 2015 bedraagt 28,2  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . We kunnen dus stellen dat de geselecteerde filters gemiddeld goed overeenkomen met de gemiddelde winterconcentraties in Vlaanderen van de afgelopen 5 jaar.

De gemiddelde concentratie van levoglucosan bedroegen 353  $\text{ng}/\text{m}^3$  op de achtergrondlocatie en lag tussen 403 - 435  $\text{ng}/\text{m}^3$  in het studiegebied. De waarden zijn vrij hoog in vergelijking met andere Europese studies en iets hoger dan de meeste waarden gemeten in Vlaanderen. De concentraties in Dessel zijn van dezelfde grootteorde als gemeten tijdens een wintercampagne (PAK-studie van LNE, Koppen et al, 2016) in Menen en Genk.

Op basis van de L/G verhouding wordt het aandeel zacht hout bepaald op gemiddeld 84 – 88%. Dit is iets hoger dan eerdere waarden gemeten in Vlaanderen. Deze waarde ligt hoog, hoewel uit de enquête naar voor kwam dat zowel hard als zacht hout gebruikt worden in het studiegebied. De hoge schatting kan te wijten zijn aan onzekerheden op de berekeningen of de analyse.

De gemiddelde EC en OC-concentraties lagen tussen 0,72 en 1,43  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  voor EC, en 4,98 en 6,28  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  voor OC. De EC-concentratie lag op de locaties in het studiegebied gemiddeld 64 tot 100% hoger in vergelijking met de achtergrondlocatie. De relatief grote verschillen bij de EC-concentratie zijn vooral te wijten aan de lokale verkeersbijdrage. De OC-concentratie lag gemiddeld 14 tot 26% hoger op de locaties in het studiegebied in vergelijking met de achtergrondlocatie. De lokale bijdrage (concentratie in het studiegebied verminderd met de achtergrondlocatie) voor OC ligt tussen  $0,68 \pm 0,55$  en  $1,29 \pm 0,80$   $\mu\text{g}/\text{m}^3$  en voor EC bedraagt deze tussen  $0,46 \pm 0,61$  en  $0,72 \pm 0,86$   $\mu\text{g}/\text{m}^3$ .



De gemiddelde B(a)P-concentratie lag tussen 0,62 en 0,79 ng/m<sup>3</sup>. De B(a)P-concentraties in het studiegebied lagen gemiddeld 0,03 ± 0,18 ; 0,16 ± 0,25; 0,09 ± 0,12 ng/m<sup>3</sup> hoger op locaties A, B en C in vergelijking met de achtergrondlocatie. De som van de PAK volgt dezelfde trend als B(a)P. De meest voorkomende PAK op alle locaties zijn chryseen, benzo(b)fluorantheen, benzo(ghi)peryleen en vervolgens ook benzo(a)pyreen en indeno(1,2,3-cd)pyreen.

Correlaties tussen enerzijds indicatoren voor houtverbranding (BC<sub>WB</sub> en levoglucosan) en anderzijds de som van de PAK en de individuele PAK werden onderzocht. Ook werd de correlatie van BC<sub>FF</sub> met de PAK onderzocht om na te gaan of er een betere correlatie is van bepaalde PAK met fossiele brandstoffen (verkeer en ander fossiele bronnen). Voor alle locaties samen vonden we een goede tot redelijke correlatie tussen houtverbrandingsindicatoren, BC afkomstig van fossiele brandstoffen en PAK. Verder stelden we vast dat de som van de PAK beter gecorreleerd is met houtverbrandings-parameters dan met parameters voor fossiele brandstoffen. Wanneer we naar de afzonderlijke PAK kijken, zien we een iets minder goede correlatie van houtverbrandingsparameters (levoglucosan en BC<sub>WB</sub>) met fluorantheen en pyreen (R<sup>2</sup> = 0,69 – 0,75) in vergelijking met de andere PAK (R<sup>2</sup> = 0,86 – 0,93). De correlaties met levoglucosan lagen hoger in vergelijking met BC<sub>WB</sub>, vermoedelijk omdat PAK en levoglucosan op dezelfde filter gemeten zijn, maar de verschillen zijn niet groot. De correlaties voor de afzonderlijke locaties waren vrij vergelijkbaar. De correlaties van fluorantheen en pyreen met BC<sub>FF</sub> lagen hoger op locatie B. Dit wijst er op dat deze locatie het meest beïnvloed is door verkeer.

Voor alle polluenten werd een verhoging ten opzichte van de achtergrond gemeten in het studiegebied en kleine verschillen werden waargenomen binnenin het studiegebied. De mate van verhoging ten opzichte van de achtergrond varieerde per polluent. Er is een toename vastgesteld van 12-17% voor PM<sub>10</sub>, 12-21% en 9-23% voor respectievelijk levoglucosan en BC<sub>WB</sub>, 32 - 75% voor BC<sub>FF</sub> en 6 – 26% voor de PAK. De waargenomen trend in enerzijds verschil in PAK tussen de locaties en anderzijds het verschil in BC<sub>FF</sub> en BC<sub>WB</sub> tussen de locaties wijst erop dat zowel verkeer als houtverbranding lokaal bijdragen tot de PAK-concentraties.

De metingen laten niet toe om in te schatten wat de aandelen zijn van lokale, regionale en buitenlandse emissies aan fijn stof afkomstig van houtverbranding. Hiervoor is bijkomend en uitgebreider onderzoek nodig. Om een goede inschatting te kunnen maken van de lokale/regionale en buitenlandse bijdrages is het nodig om over een groter aantal achtergrondmetingen te beschikken.

In deze studie werden twee methoden om het aandeel van houtverbranding te bepalen vergeleken: de tracermethode op basis van levoglucosan en de Aethalometermethode.

Via de tracermethode werd het gemiddelde aandeel houtverbranding aan PM<sub>10</sub> bepaald op 3,85 tot 4,66 µg/m<sup>3</sup> (of 16,1 tot 16,9%). Hiervoor werd de factor 10,7 gebruikt. Van de lokale bijdrage PM<sub>10</sub> (op basis van verschil met de achtergrondlocatie) kan 20% toegeschreven worden aan houtverbranding.

Ook via de Aethalometermethode werd het aandeel houtverbranding (aan BC en PM) berekend. Uitgemiddeld over de ganse meetperiode lag het aandeel houtverbranding aan BC tussen 24,6 ± 4,4 % en 28,5 ± 6,0 % en bedroeg de gemiddelde absolute waarde voor BC<sub>WB</sub> tussen 0,34 ± 0,06 µg/m<sup>3</sup> en 0,53 ± 0,06 µg/m<sup>3</sup>. Voor de periode waarop de filters geselecteerd zijn is het gemiddelde percentage vergelijkbaar (tussen 24,5 ± 5,3 % en 29,3 ± 6,5 %) maar ligt de gemiddelde absolute waarde voor BC<sub>WB</sub> hoger, met name tussen 0,70 ± 0,55 % en 0,86 ± 0,56 µg/m<sup>3</sup>

Voor de berekening van het aandeel houtverbranding aan PM via de Aethalometermethode werd een factor toegepast uit de literatuur ( $C_2 = 675000 \mu\text{g m}^{-2}$ ) om de gemeten absorptie voor houtverbranding om te zetten in stofmassa afkomstig van houtverbranding.

Berekend met deze factor bedroeg de relatieve bijdrage tussen  $42,2 \pm 17,4 \%$  en  $47,8 \pm 28,2 \%$  en de gemiddelde absolute waarde voor  $\text{PM}_{\text{WB}}$  tussen  $7,2 \pm 7,3 \mu\text{g/m}^3$  en  $9,3 \pm 7,6 \mu\text{g/m}^3$ . Op basis van deze factor vonden we voor de periode waarop de filters geselecteerd zijn een veel hogere absolute bijdrage aan PM van houtverbranding ( $\text{PM}_{\text{WB}}$ ) tussen  $14,0 \pm 11,1 \mu\text{g/m}^3$  en  $15,7 \pm 10,0 \mu\text{g/m}^3$ . De relatieve bijdrage voor de geselecteerde periode was slechts iets hoger (tussen  $53,2 \pm 13,7 \%$  en  $55,3 \pm 15,5 \%$ ).

De gebruikte factor is gebaseerd op literatuurwaarden uit buitenlandse studies en het is niet zeker of we deze voor Vlaanderen kunnen toepassen.

De bepaling van houtverbranding op basis van de Aethalometermethode (voor eenzelfde periode) vertoont een goede correlatie met de tracermethode ( $R^2 = 0,90$ ). Ondanks de zeer goede correlatie leiden beide methoden momenteel wel tot een verschillende inschatting van de totale bijdrage van houtverbranding aan  $\text{PM}_{10}$ . Bij het gebruik van de standaard omrekeningsfactor voor beide methoden liggen de resultaten van de Aethalometermethode 3,47 keer hoger dan bij de levoglucosanmethode. Dit is deels te wijten aan een vermoedelijke onderschatting door de tracermethode. Secundair organisch aerosol dat gevormd wordt na de emissie zal er voor zorgen dat de werkelijke factor hoger is dan de aangewende factor 10,7. Het lijkt ook waarschijnlijk dat de Aethalometermethode een overschatting geeft door de gebruikte factor.

In een extra stap werd daarom voor elk van de methoden berekeningen uitgevoerd met andere conversiefactoren. Voor de tracermethode werd een recentere conversiefactor (22,56) gebruikt uit een recente publicatie van Maenhaut et al. (2016). Bij de Aethalometermethode werd de factor ( $C_2$ ) die gebruikt werd, afgeleid uit de EC en OC metingen die simultaan werden uitgevoerd in deze studie. Deze inschatting gaat ook gepaard met onzekerheden want bij de berekening van de factor zijn ook een aantal aannames nodig (onder andere factor  $f_{\text{OC-OM}}$  voor omrekening van gemeten OC naar OM (Organic Matter)) en de beschikbare dataset van EC en OC-metingen in deze studie is beperkt (15 analyses per locatie). Bovendien heeft ook het al dan niet aftrekken van blancowaarden voor OC een effect. De factor werd berekend voor  $f_{\text{OC-OM}} = 1, 4$  en  $1,8$  en voor deze laatste ook met aftrek van blancowaarden voor OC. De factor 1,4 werd in het verleden gebruikt in Chemkar-studies maar is aan de lage kant daarom zal de berekening met factor 1,8 een realistischere waarde geven. De resulterende factor  $C_2$  was functie van de aannames maar voor elk van de aannames lager (tussen 152980 – 388220) dan deze uit de literatuur (675000).

Deze tabel toont de gemiddelde schatting van de bijdrage van houtverbranding aan  $PM_{10}$  op basis van 4 mogelijke berekeningswijzen:

| methode<br>$PM_{WB}$<br>( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) | Locatie A                                   | Locatie B                                   | Locatie C                                   | Locatie E                                   |
|--|---|---|---|---|
|  | gem (min – max)<br>% $PM_{WB}$ in $PM_{10}$ | gem (min – max)<br>% $PM_{WB}$ in $PM_{10}$ | gem (min – max)<br>% $PM_{WB}$ in $PM_{10}$ | gem (min – max)<br>% $PM_{WB}$ in $PM_{10}$ |
| Aethalometermethode<br>$C_2$ literatuur (675000)     | 14,4 (5,6 – 33,4)<br>53,2 ± 13,7%           | 15,0 (5,2 – 34,1)<br>54,6 ± 14,9%           | 15,7 (5,4 – 35,9)<br>55,3 ± 15,5%           | 14,0 (2,5 – 41,5)<br>54,6 ± 19,1%           |
| Aethalometer methode $PM_{WB}$<br>$C_2 = 388220^*$   | 8,30 (3,22 – 19,22)<br>30,6 ± 7,9%          | 8,63 (3,01 – 19,59)<br>31,4 ± 8,6%          | 9,04 (3,10 – 20,66)<br>31,8 ± 8,9%          | 8,04 (1,44 – 23,87)<br>31,4 ± 11,0%         |
| Levoglucosan<br>(factor 10,7)                        | 4,31 (1,53 – 9,10)<br>16,4 ± 5,1%           | 4,63 (1,97 – 8,65)<br>17,3 ± 5,2%           | 4,66 (2,02 – 8,61)<br>17,5 ± 5,8%           | 3,85 (0,75 – 9,60)<br>15,7 ± 5,7%           |
| Levoglucosan<br>(factor 22,56)                       | 9,10 (3,22 – 19,18)<br>34,6 ± 10,8%         | 9,75 (4,15 – 18,24)<br>36,4 ± 11,0%         | 9,82 (4,27 – 18,15)<br>36,8 ± 12,3%         | 8,11 (1,58 – 20,24)<br>33,1 ± 11,9%         |

\* berekend met aannames  $f_{OC-OM} = 1, 8$  en blanco-correctie voor OC

Wanneer we de berekende factoren voor de Aethalometermethode gebruiken vinden we een veel lagere inschatting van het aandeel houtverbranding. Voor de berekening met  $f_{OC-OM} = 1,8$  en blanco-correctie ( $C_2 = 388220$ ) ligt de berekende bijdrage houtverbranding ruim 40% lager dan wanneer we de literatuurwaarde gebruiken. Voor beide methoden voor de bepaling van de bijdrage van houtverbranding tot de  $PM$  zijn er onzekerheden over de gebruikte factor. Het is daarom aan te bevelen om deze methoden verder te onderzoeken. Het voordeel van de Aethalometermethode is de hoge tijdsresolutie waardoor het mogelijk is om zeer lokale bronnen te identificeren. Omwille van de goede correlatie tussen beide methode is de AE33 een alternatief voor de meting van levoglucosan. Het voordeel van de Aethalometermethode is de hoge tijdsresolutie waardoor het mogelijk is om zeer lokale bronnen te identificeren. Wanneer we voor beide methoden (Aethalometermethode en tracermethode) de meest waarschijnlijke omrekening hanteren vinden we dat  $1/3^e$  van het  $PM_{10}$  toe te schrijven is aan houtverbranding.

Emissiemetingen werden uitgevoerd op drie verschillende kachels waarbij een kachel herhaald werd met een andere mix van hout. De resultaten van de emissiemetingen toonden een groot verschil in emissies tussen de verschillende metingen welke te wijten kunnen zijn aan houtverwarmingsinstallatie, houtsoort, stookgedrag.

Voor een van de locaties werd voor alle pollutanten de laagste concentratie gemeten. Het verschil tussen de kachels was verschillend voor de verschillende pollutanten; de hoogste waarde lag respectievelijk een factor 3,5; 5,0 en 6,6 hoger voor  $PM$ , OC en EC. Voor levoglucosan waren de verschillen kleiner met een concentratie tussen 3916 – 7688  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . Voor de PAK waren de verschillen groter tussen de houtverwarmingsinstallaties (factor 11,6 voor B(a)P). De verschillen tussen de pollutanten geven aan dat enkel stofemissies onvoldoende informatie geven over de schadelijkheid van emissies bij stoken.

De  $PM/L$  ratio varieert tussen 10,5 en 26,9 en de  $OC/L$  varieert tussen 4,2 en 15,5. De hoge waarde voor  $PM/L$  geeft ook aan dat de bepaling van aandeel houtverbranding op basis van de veel gebruikte factor 10,7 waarschijnlijk onderschat is en een eventuele herziening van deze factor nodig is om de bijdrage van houtverbranding beter te kunnen inschatten.

Deze studie toont aan dat houtverbranding in een woongebied een rol speelt in lokale pollutie. De goede correlatie tussen houtverbrandingstracers en de PAK tonen aan dat houtverbranding een bron is van PAK.

De inschatting van houtverbranding op basis van de Aethalometermethode biedt potentieel omdat continue opvolging hiermee mogelijk is. Toch is er nog onzekerheid over de toe te passen conversiefactor en is er verder onderzoek nodig om de factor te bepalen.

Emissiemetingen tonen aan dat er grote verschillen zijn in emissies tussen vier metingen van houtverwarmingsinstallaties. Voor de PAK zijn de verschillen het grootst. Factoren die van belang kunnen zijn, zijn type houtverwarmingsinstallatie, hout en stookgedrag. We kunnen op basis van deze metingen niet beoordelen of stookgedrag de emissies kan bepalen. Het is echter zeer waarschijnlijk dat ook het stookgedrag een invloed heeft maar daarvoor zijn herhaalde metingen met eenzelfde type hout op een zelfde kachel noodzakelijk. Gegevens die het effect van stookgedrag op de emissies kwantificeren zijn mogelijk nuttig als sensibilisering om gedrag te wijzigen.

Over het relatief aandeel van lokale, regionale en buitenlandse bijdrage aan fijn stof door houtverbranding kunnen er momenteel weinig uitspraken gedaan worden en is er nog verder onderzoek nodig.

LITERATUURLIJST

Alves C., Gonçalves C., Fernandes A., Tarelho L., Pio C. (2011). Fireplace and woodstove fine particle emissions from combustion of western Mediterranean wood types. *Atmospheric Research*, 101, 692–700.

Bari M. A., Baumbach G., Kuch B., Scheffknecht G. (2009). Wood smoke as a source of particle-phase organic compounds in residential areas. *Atmospheric Environment*, 43, 4722–4732.

Bari M. A., Baumbach G., Kuch B., Scheffknecht, G. (2010). Temporal variation and impact of wood smoke pollution on a residential area in southern Germany. *Atmospheric Environment*, 44, 3823 – 3832.

Bari M. A., Baumbach G., Brodbeck J., Struschka M., Kuch B., Dreher W., Scheffknecht, G. (2011). Characterisation of particulates and carcinogenic polycyclic aromatic hydrocarbons in wintertime wood-fired heating in residential areas. *Atmospheric Environment*, 45, 7627-7634.

Birch M.E., Cary R.C. (1996). Elemental carbon-based method for monitoring occupational exposures to particulate diesel exhaust. *Aerosol Sci. Technol.* 25, 221–241.

Bølling, A.K., Pagels, J., Yttri, K.E., Barregard, L., Sallsten, G., Schwarze, P.E., Boman, C. (2009). Health effects of residential wood smoke particles: the importance of combustion conditions and physicochemical particle properties. *Particle and Fibre Toxicology* 6, 29.

Cahill T. M. (2014). Ambient Acrolein Concentrations in Coastal, Remote, and Urban Regions in California. *Environ. Sci. Technol.* , 48, 8507–8513.

Caseiro A., Marr I. L., Claeys M., Kasper-Giebl A., Puxbaum H., Pio C. A. (2007). Determination of saccharides in atmospheric aerosol using anion-exchange high-performance liquid chromatography and pulsed-ampereometric detection. *Journal of Chromatography A*, 1171, 37–45.

Caseiro A., Bauer H., Schmidl C., Pio C. A., Puxbaum H. (2009). Wood burning impact on PM<sub>10</sub> in three Austrian regions, *Atmospheric Environment*, 2186-2195.

Cordell R. L., White I. R., Monks P. (2014). Validation of an assay for the determination of levoglucosan and associated monosaccharide anhydrides for the quantification of wood smoke in atmospheric aerosol. *Anal Bioanal Chem*, 406, 5283–5292.

Cordell R., Mazet M., Dechoux C., Hama S., Staelens J., et al. (2016). Evaluation of biomass burning across North West Europe and its impact on air quality. *Atmospheric Environment*, 141, 276-286.

Caumo S.E.S., Claeys M., Maenhaut W., Vermeylen R., Behrouzi S., et al. (2016). Physicochemical characterization of winter PM<sub>10</sub> aerosol impacted by sugarcane burning from Sao Paulo city, Brazil. *Atmospheric Environment*, 145, 272-279.

Drinovec L., Mocnik G., Zotter P., Prévôt A. S. H., Ruckstuhl, C., Coz, E., Rupakheti, M., Sciare, J., Müller T., Wiedensohler A., Hansen A. (2014). The “dual-spot” Aethalometer: an improved measurement of aerosol black carbon with real-time loading compensation. *Atmos. Meas. Tech. Discuss.*, 7, 10179–1022.

Dönzelman C. E. P., Nelissen D. (2010). Beoordeling rapport Luchtemissies houtkachels. Publ. 10.3205.58. Studie in opdracht van milieudefensie Groningen

EN 12341 (1999). Air quality. Determination of the PM10 fraction of suspended particulate matter. Reference method and field test procedure to demonstrate reference equivalence of measurement methods.

EN 13284-1 (2001). Stationary source emissions – determination of low range mass concentrations of dust – part 1: manual gravimetric method.

EN 13240/A2 (2002) Roomheaters fired by solid fuel – requirements and test methods.

Favez O., Cachier H, Sciare J., Sarda-Estève R., Martinon R. (2009) Evidence for a significant contribution of wood burning aerosols to PM<sub>2,5</sub> during the winter season in Paris, France *Atmospheric Environment*, 43, 3640-3644.

Favez O., El Haddad I., Piot C., Boreave A., Abidi E., Marchand N., Jaffrezo J.-L., Besombes J.-L., Personnaz M.-B., Sciare J., Wortham H., George C., D'Anna B. (2010). Inter-comparison of source apportionment models for the estimation of wood burning aerosols during wintertime in an Alpine city (Grenoble, France). *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 5295-5314.

Fine P. M., Cass G.R., Simoneit B. R. T. (2001) Chemical Characterization of Fine Particle Emissions from Fireplace Combustion of Woods Grown in the Northeastern United States. *Environ. Sci. Technol.*, 35, 2665-2675.

Fine P. M., Cass G.R., Simoneit B. R. T. (2004). Chemical Characterization of Fine Particle Emissions from the Wood Stove Combustion of Prevalent United States Tree Species. *Environmental Engineering Science*, 21, 705-721.

Fuller, G. W., Tremper A. H., Baker, T.D., Yttri K. E. (2014). Contribution of wood burning to PM<sub>10</sub> in London. *Atmospheric Environment*, 87, 87-94.

Genberg J., Denier van der Gon H. A. C., Simpson D., Swietlicki E., Areskoug H., Beddows D., Ceburnis D., Fiebig M., Hansson H. C., Harrison R. M., Jennings S. G., Saarikoski S., Spindler G., Visschedijk A. J. H., Wiedensohler A., Yttri K. E., Bergström R. (2013). Light-absorbing carbon in Europe – measurement and modelling, with a focus on residential wood combustion emissions, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 8719-8738.

Glasius M., Ketzler M., Wahlin P., Jensen B., Mønster J., Berkowicz R., Palmgren F. (2006). Impact of wood combustion on particle levels in a residential area in Denmark. *Atmos. Environ.* 40, 7115-7124

Harrison R. M., Beddows D. C. S., Hu L., Yin J. (2012) Comparison of methods for evaluation of wood smoke and estimation of UK ambient concentrations. *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 8271-8283.

Harrison R. M., Beddows D. C. S., Jones A. M., Calvo A., Alves C., Casimiro P. (2013). An evaluation of some issues regarding the use of Aethalometers to measure woodsmoke concentrations. *Atmospheric Environment*, 80, 540-548.

Hellén H., Hakola H., Haaparanta S., Pietarila H., Kauhaniemi M. (2008). Influence of residential wood combustion on local air quality. *Science of the Total Environment*, 393, 283 – 290.

Herich H., Hueglin C., Buchmann B. (2011). A 2.5 year's source apportionment study of black carbon from wood burning and fossil fuel combustion at urban and rural sites in Switzerland. *Atmos. Meas. Tech.*, 4, 1409–1420.

ISO 11338-1 (2003) Stationary source emissions – Determination of gas and particle-phase polycyclic aromatic hydrocarbons – Part 1: Sampling.

Jedynska A., Hoek G., Eeftens M., Cyrus J., Keuken M., Ampe C., et al. (2014). Spatial variations of PAH, hopanes/steranes and EC/OC concentrations within and between European study areas. *Atmospheric Environment*, 87, 239–248.

Jedynska A., Hoek G., Wang M., Eeftens M., Cyrus J., Beelen R., Cirach M., De Nazelle A., Keuken M., Visschedijk A., Nystad W., Akhlaghi H.M., Meliefste K., Nieuwenhuijsen M., de Hoogh K., Brunekreef B., Kooter I.M. (2015). Spatial variations of levoglucosan in four European study areas. *Science of the Total environment*, 505, 1072-1081.

Karanasiou A., Minguillón M. C., Viana M., Alastuey A., Putaud J.-P., Maenhaut W., Panteliadis P., Močnik G., Favez O., Kuhlbusch T. A. J. (2015). Thermal-optical analysis for the measurement of elemental carbon (EC) and organic carbon (OC) in ambient air a literature review. *Atmos. Meas. Tech. Discuss.*, 8, 9649–9712.

Kos G., Weijers E. (2009) De bijdrage van houtverbranding aan PM10 en PM2,5 tijdens een winterperiode in Schoorl. Studie uitgevoerd in opdracht van VROM, project nummer 50099, rapport ECN-E--09-083.

Křůmal K., Mikuška P., Vojtěšek M., Večeřa Z. (2010). Seasonal variations of monosaccharide anhydrides in PM<sub>1</sub> and PM<sub>2,5</sub> aerosol in urban areas. *Atmospheric Environment*, 44, 5148-5155.

Lipari, F., Dasch, J.M., Scruggs, F. (1984) Aldehyde emissions from wood-burning fireplaces. *Environ. Sci. Technol.* 18, 326-330.

Koppen G., Buekers J., Fierens T., Remy S., Colles A., Van De Mierop E., Spruyt M., Ooms D., Daems J., Maldoy I., Dons E., Jacobs G., Bellemans M., Hoek G. (2016). Identification of the sources of local higher human polyaromatic hydrocarbon (PAH) exposure in the regions Menen and Genk-Zuid, and policy interpretation. Studie in opdracht van LNE, VITO-rapport 2016/MRG/R/0672.

LUC/0/002, LUC/0/003, LUC/0/004, LUC/0/005, LUC/0/008, LUC/I/001, LUC/I/003, LUC/II/001 (2014). Alle LUC-procedures zijn raadpleegbaar op emis-website: <https://emis.vito.be/nl/luc-2014>

Maenhaut W., Vermeylen R., Claeys M., Vercauteren J., Matheeussen C., Roekens E. (2012) Assessment of the contribution from wood burning to the PM<sub>10</sub> aerosol in Flanders, Belgium. *Science of the Total Environment* 437, 226 – 236.

Maenhaut W., Vermeylen R., Claeys M., Vercauteren J., Roekens E. (2016). Sources of the PM10 aerosol in Flanders, Belgium, and re-assessment of the contribution from wood burning. *Science of the Total Environment*, 562, 550–560.

MIM-OR-001 (2014), Bepaling van PAK in bodem, vaste/pasteuze afvalstoffen en adsorbentia van gasbemonstering.

- Močnik G., Turšič J., Muri G., Bolte T., Ježek I., Drinovec L., Petit J.-E., Sciare J. (2011). Optical detection and discrimination between biomass and fossil fuel combustion: influence on air quality in different environments. *Monitoring Ambient Air*, London, 12 December 2011. <http://aamg-rsc.org/wp-content/uploads/2012/07/GMocnik.pdf>
- Panteliadis P., Hafkenscheid T., Cary B., Diapouli E., Fischer A., Favez, O., Quincey P., Viana M., Hitzenberger R., Vecch, R., Saraga D., Sciare J., Jaffrezo J. L., John A., Schwarz J., Giannoni M., Novak J., Karanasiou A., Fermo P. and Maenhaut W. (2015) ECOC comparison exercise with identical thermal protocols after temperature offset correction – instrument diagnostics by in-depth evaluation of operational parameters. *Atmos. Meas. Tech.*, 8, 779–792
- Pashynska V., Vermeylen R., Vas G., Maenhaut W., Claeys M. (2002). Development of a gas chromatographic/ion trap mass spectrometric method for the determination of levoglucosan and saccharidic compounds in atmospheric aerosols. Application to urban aerosols. *J. Mass Spectrom.* 2002, 37, 1249-1257.
- Piazzalunga A., Belis C., Bernardoni V., Cazzuli O., Fermo P., Valli G., Vecchi R. (2011). Estimates of wood burning contribution to PM by the macro-tracer method using tailored emission factors. *Atmospheric Environment*, 45, 6642 – 6649.
- Pietrogrande M. C., Bacco D., Ferrari S., Kaipainen J., Ricciardelli I., Riekkola M.-L., Trentini A., Visentin M. (2015). Characterization of atmospheric aerosols in the Po valley during the supersito campaigns - Part 3: Contribution of wood combustion to wintertime atmospheric aerosols in Emilia Romagna region (Northern Italy). *Atmospheric Environment*, 122, 291-305.
- Prince B., Milligan D. and McEwan M. (2010). Application of selected ion flow tube mass spectrometry to real-time atmospheric monitoring. *Rapid Communications in Mass Spectrometry*, 24, 1763 – 1769.
- Renders, N., De Weedt, Y., Gijssbers, M., Jespers, K., Van Esch, L., Wevers, M. (2011). Emissies door houtverbranding - Sectoren gebouwenverwarming en landbouw, 2011/TEM/R/158
- Sandradewi J., Prévôt ASH., Weingartner R., Schmidhauser R., Gysel M., Baltensperger U. (2008 a). A study of wood burning and traffic aerosols in an Alpine vally using a multi-wavelength Aethalometer. *Science direct, Atmospheric Environment* 42, 101-112.
- Sandradewi J., Prévôt A. S. H., Szidat S., Perron N., Alfarra M. R., Lanz V. A., Weingartner E., Baltensperger U. (2008 b), Using Aerosol Light Absorption Measurements for the Quantitative Determination of Wood Burning and Traffic Emission Contributions to Particulate Matter, *Environ. Sci. Technol.* 42, 3316–3323.
- Schmidl C., Marr I.L., Caseiro A., Kotianova´ P., Berner A., Bauer H., Kasper-Giebl, A., Puxbaum, H., (2008). Chemical characterisation of fine particle emissions from wood stove combustion of common woods growing in mid-European Alpine regions. *Atmospheric Environment* 42, 126–141.
- Sciare J., d’Argouges O., Sarda-Estève R., Gaimoz C., Dolgorouky C., et al. (2011). Large contribution of water-insoluble secondary organic aerosols in the region of Paris (France) during wintertime. *J. Geophys. Res.* 116, D22203.
- SINPHONIE – Schools Indoor Pollution and Health: Observatory Network in Europe (2009). QA/QC TRIAL FOR LABORATORIE, WP3.2: Physical Chemical assessment of indoor/outdoor schools



environments, Part 1. Sampling and analysis of formaldehyde following ISO 16000 part 4 (HPLC method).

Smith D., Spanel P. (2005). Selected ion flow tube mass spectrometry (SIFT-MS) for on-line trace gas analysis. *Mass Spectrometry Reviews* 24, 661-700.

Stranger M., Verbeke S., Täubel M., Laverge J. (2012). Clean Air, Low Energy – Schone Lucht, Lage Energie. Verkennend onderzoek naar de binnenmilieukwaliteit van duurzame gebouwen: invloed van buitenmilieu en ventilatie LNE/OL200900012/10034/M&G.

Studiedag houtstook 'Houtstook en gezondheid: problemen voorkomen', georganiseerd door VVM, 23/5/2014, Bildhoven Nederland.

Spada N., Fujii E., Cahill T. (2008). Diurnal Cycles of Acrolein and Other Small Aldehydes in Regions Impacted by Vehicle Emissions. *Environ. Sci. Technol.*, 48, 8507–8513.

Thatcher, T.L., Kirchstetter, T.W., Tan, S.H., Malejan, C.J., Ward, C.E. (2014). Near-Field Variability of Residential Woodsmoke Concentrations. *Atmospheric and Climate Sciences*, 4, 622-635. <http://dx.doi.org/10.4236/acs.2014.44055>

Tissari J., Nuutinen J., Hytönen K., Sippula O., Raunemaa T., Linna V., Oravainen H., Tuomi S., Jokiniemi J. (2004). Fine particle concentrations in small scale wood combustion. Proceedings of the 1<sup>st</sup> International Symposium on Incomplete Combustion, 9–11 November 2003, Kuopio, Finland. Kuopio University Publications C. Natural and Environmental Sciences 172, pp. 75–77.

Tissari J., Hytönen K., Lyyränen J., Jokiniemi J. (2007). A novel field measurement method for determining fine particle and gas emissions from residential wood combustion. *Atmospheric Environment*, 41, 8330–8344.

Verlhac S. (2013). Interlaboratory comparison organized for the European laboratories involved in the analysis of levoglucosan and its isomers. Final report – 2<sup>nd</sup> Draft, September 2013.

VMM (2011), Chemkar PM10, Chemische karakterisering van fijn stof in Vlaanderen – 2010

VMM (2013), Chemkar PM10, Chemische karakterisering van fijn stof in Vlaanderen, 2011-2012.

VMM (2014), Luchtkwaliteit in Vlaanderen: Polycyclische aromatische koolwaterstoffen – jaarrapport 2013

VMM (2016), Luchtkwaliteit in het Vlaamse Gewest. Jaarverslag Immissiemeetnetten – 2015.

Virkkula A., Mäkelä T., Hillamo R., Yli-Tuomi T., Hirsikko A., Hämer, K., and Koponen, I. K. (2007). A simple procedure for correcting loading effects of Aethalometer data. *J. Air Waste Management*, 57, 1214-1222.

Weingartner E., Saathoff H., Schnaiter M., Streit N., Bitnar B., Baltensperger U. (2003). Absorption of light by soot particles: determination of the absorption coefficient by means of Aethalometers. *J. Aerosol Sci.*, 34, 1445-1463.

Wevers (2002). Meetcampagnes dioxines en PAK: emissies door open vuren, open tonnetjes,

kachels en allesbranders en analyses van roetstalen uit schouwen. Onderzoek uitgevoerd in opdracht van AMINAL.

Yttri K. E., Schnelle-Kreis J., Maenhaut W., Abbaszade G., Alves C., et al. (2015). An intercomparison study of analytical methods used for quantification of levoglucosan in ambient aerosol filter samples. *Atmos. Meas. Tech.*, 8, 125-147.

Zhang X., Hecobian A., Zheng M., Frank N. H., Weber R. J. (2010). Biomass burning impact on PM<sub>2.5</sub> over the southeastern US during 2007: integrating chemically speciated FRM filter measurements, MODIS fire counts and PMF analysis. *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 6839-6853.

## BIJLAGE A: RESULTATEN BUURTENQUÊTE

### 7.1. DOEL EN OPZET VAN DE ENQUÊTE

#### 7.1.1. DOEL

In het studiegebied werd een enquête afgenomen naar het reële houtverbruik en/of ervaringen met hinder door houtstook. Het hoofddoel van de enquête was houtverbruik, manier van stoken en hinder door houtstook in kaart te brengen. Het is niet de bedoeling een representatief beeld te krijgen van Vlaanderen maar eerder **waarnemingen bij de omgevingsmetingen** voor deze specifieke buurt te kunnen verklaren. De enquête werd afgenomen in september vóór de aanvang van de meetcampagne.

Bij de voorlopige selectie van het studiegebied was er nog onvoldoende kennis over het gebruik van houtverbranding in het studiegebied en de mate waarin houtverbranding wordt waargenomen. De resultaten van de enquête dienden ook om het **geselecteerde studiegebied** te bevestigen. Hiervoor is geen strikte grenswaarde vooropgesteld voor minimum % van de woningen waar hout gestookt wordt en/of minimum aantal bewoners die houtverbranding waarnemen. In de meeste studies waar houtverbranding in een woongebied wordt onderzocht, wordt niet aangegeven (of is niet gekend) in hoeveel huizen op hout gestookt wordt.

#### 7.1.2. INHOUD ENQUÊTE

De enquête bestaat uit drie luiken:

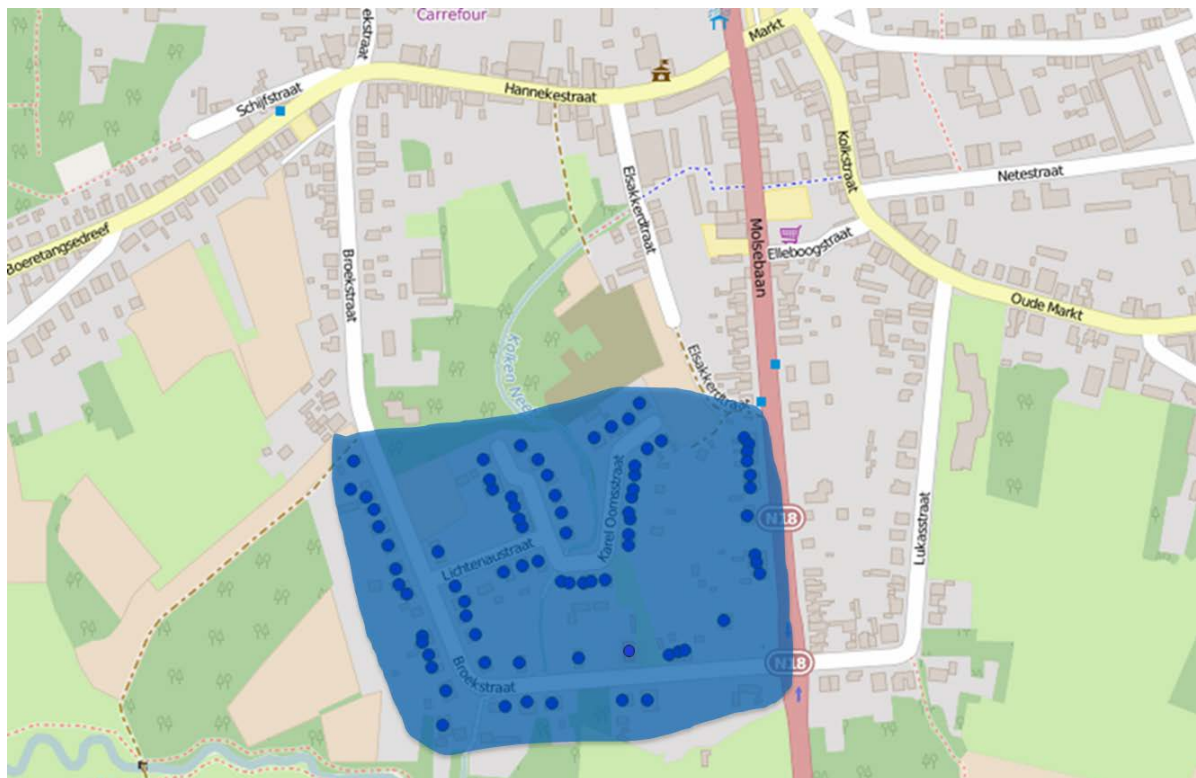
- Luik 1: aard van eigen houtverwarming: type houtkachel, tijdstip van stoken, kenmerken van het gebruikte hout
- Luik 2: bijkomende vragen soort bebouwing en type hoofdverwarming
- Luik 3: waarnemingen houtverwarming

De bevraging werd afgestemd op de WoET studie (vb. soorten kachel, houtsoort) zodat een vergelijking later mogelijk is. Hierbij dient opgemerkt te worden dat deze bevraging vooral tot doel had waarnemingen in het studiegebied te verklaren. Daarom is de bevraging niet te uitgebreid en werd o.a. luik 2 zeer beperkt gehouden teneinde een zo groot mogelijke respons te bekomen. De volledige enquête is weergegeven in 7.3.

Bij de mensen waar emissiemetingen op houtverwarmingsinstallaties zijn uitgevoerd, werden bijkomende vragen gesteld (type kachel, soort hout, grootte van blokken en vochtgehalte van het hout gebruikt tijdens de emissiemetingen).

#### 7.1.3. GESELECTEERD GEBIED EN RESPONS

In onderstaande figuur is aangeduid waar de enquête werd uitgevoerd. In totaal werden 78 brieven rondgedeeld en hebben we 52 enquêtes ingevuld ontvangen. Dit is een vrij hoge respons (**67%**). De brieven werden persoonlijk rondgebracht met een korte uitleg en eventueel ter plaatse al ingevuld. Bij afwezigheid werd de brief in de brievenbus gestoken. Dit verklaart mogelijk deels de vrij hoge respons. Anderzijds kan de hoge respons ook duiden op een bezorgdheid en interesse van de burgers. Om vertrouwelijkheidsredenen van de respondenten worden de resultaten verder niet op kaart getoond.



Figuur 66: Studiegebied waar de enquête werd uitgevoerd

## 7.2. RESULTATEN

### 7.2.1. GEBRUIK VAN HOUTVERBRANDING

Van de 52 respondenten gebruikt **42% (22) hout als brandstof**. Gezien de respons van de enquête 67% bedroeg, ligt het werkelijke percentage hout als brandstof dus tussen 28 en 64%. Dit is een voldoende hoog % voor deze studie.

Twee van de 22 mensen die hout gebruiken als verwarmingsbron gaven aan dat hout de **primaire** verwarmingsbron is via decentrale verwarming. De meeste mensen (91%) gebruiken hout als **bijverwarming of voor de gezelligheid**. Niemand gebruikt hout via centrale verwarming.

Van de 22 mensen hebben 2 een open haard, 12 een cassette, 6 een kachel en 1 een speksteenkachel. Eén van de respondenten geeft aan dat er een kachel en cassette is. Cassette is in deze buurt het meest gebruikte **type van verwarmingstoestel** op hout. In onderstaande tabel wordt het % aandeel van de verschillende type kachels in het studiegebied vergeleken met deze uit de WoET-enquête. De meest gebruikte verwarmingsbronnen op hout zijn – in overeenstemming met de WoET-studie - cassette en kachel, met een lichte verschuiving in aantal naar cassette.

Op de vraag of er nog een tweede verwarmingsbron op hout is antwoordden drie mensen positief: met name 2 open haard en 1 kachel.

Tabel 31: % aandeel van type kachels in studiegebied en in de WoET-studie

| type kachel                 | aandeel WoET studie | aandeel in dit studiegebied |
|-----------------------------|---------------------|-----------------------------|
| open haard                  | 13%                 | 9%                          |
| cassette                    | 37%                 | 57%                         |
| kachel                      | 39%                 | 30%                         |
| speksteenkachel             | 8%                  | 5%                          |
| ketel (centrale verwarming) | 3%                  | 0%                          |

De opgegeven **leeftijd van de houtverbrandingstoestellen** is vergelijkbaar maar iets lager dan in de WoET-enquête. De gemiddelde leeftijd voor cassette en kachel samen in deze studie is 11 jaar. In de WoET-studie was deze respectievelijk 13 jaar en 15 jaar voor cassette en kachel.

De meeste mensen stoken **enkel 's avonds** (15), drie stoken de ganse dag, drie geven aan dat het varieert en één respondent stookt enkel overdag.

Wat **stookfrequentie** betreft antwoordde meer dan de helft dat ze dagelijks of bijna dagelijks stoken (12), een groot deel stookt regelmatig of vaak (9), één persoon stookt zelden (open haard).

De meeste mensen gebruiken **blokken hout** (19); ze gebruiken dit altijd (11) of meestal (8). Naast blokken gebruiken de mensen ook soms snoeihout, afvalhout, brikketten, pellets en behandeld hout. Twee gebruiken altijd pellets en één gebruikt altijd afvalhout.

De mensen die blokken hout stoken, gebruiken verschillende soorten hout; het meest vermeld zijn eik (14), den (9), berk (9), beuk (8), en telkens één persoon gebruikt ook accacia en fruitbomen. Dus zowel hard hout (eik, beuk, accacia) als zacht hout (den, berk) worden gebruikt in het studiegebied: één persoon gebruikt enkel zacht hout, drie enkel hard hout en de rest een combinatie van beide.. Vier respondenten die blokken gebruiken hebben niet opgegeven om welke houtsoort het gaat.

De meeste mensen die blokken hout gebruiken stoken dit **droog of kurkdroog** (14) , drie respondenten antwoordden dat ze soms vochtig hout stoken of dat ze meestal droog hout stoken. Twee respondenten hebben op deze vraag niet geantwoord.

Het hout is in de meeste gevallen **afkomstig van** particulieren (8), eigen bomen (6) of houthandel (5). Soms is het afkomstig van familie (4), het werk (2), gekocht in de winkel (2), zelf gesprokkeld (1) of via de gemeente (1). Een aantal respondenten gaven meerdere mogelijkheden op.

#### 7.2.2. MATE WAARIN HOUTVERBRANDING WORDT WAARGENOMEN IN HET STUDIEGEBIED

Van de respondenten zei respectievelijk 28% en 31% dat ze zelden of regelmatig geur van houtverbranding waarnemen. 33% neemt het nooit waar en 8% heeft deze vraag niet beantwoord. Slecht 8% (4 mensen) van de mensen die de vraag beantwoordden vindt de geur hinderlijk.

Waarnemingen van houtverbranding waren verspreid over het studiegebied. Er was niet specifiek een deel van het studiegebied waar het sterker of minder werd waargenomen.

### **7.3. VRAGENLIJST BUURTENQUÊTE**

Hieronder wordt de vragenlijst van de enquête die in de buurt werd afgenomen integraal weergegeven.

Aan de bewoner van dit huis

**Betreft: Vragenlijst studie houtverbranding**

Beste bewoner,

VITO voert in opdracht van de Vlaamse Milieumaatschappij (VMM) een onderzoek uit rond houtverbranding (studieopdracht VMM/LUC/2014/HOUT). In deze studie stellen we meetmethoden op punt om houtverbranding te meten en gaan we na welke kachels en houtsoorten gebruikt worden. Voor deze studie werd uw woonzone gekozen als studiegebied.

Om de gegevens van de studie optimaal te kunnen interpreteren, voeren we een enquête uit in uw woongebied. De enquête gaat over type houtkachels, houtverbruik, houtsoort en waarnemen van houtverbranding. De informatie die u daarover kan verstrekken is erg belangrijk voor het onderzoek. Het invullen van de enquête neemt minder dan 10 min in beslag.

Voor de interpretatie van de gegevens hebben we je adres nodig. Deze gegevens worden enkel gebruikt in deze studie en vertrouwelijk behandeld. Het is ook handig als je je contactgegevens kan doorgeven (tel. of e-mail), deze worden enkel gebruikt als bepaalde antwoorden niet duidelijk zijn.

Je kan deze enquête invullen en terugsturen met bijgevoegde gefrankeerde omslag.  
Voor meer info kan je terecht bij Martine Van Poppel (014/33.53.65) of Rob Brabers (014/33.53 61).

Alvast bedankt voor je medewerking.

Met vriendelijke groeten,

Martine Van Poppel  
Projecttrekker luchtkwaliteitsmetingen  
VITO  
Boeretang 200 – 2400 Mol  
Tel. 014335365  
E-mail: [martine.vanpoppel@vito.be](mailto:martine.vanpoppel@vito.be)

**Naam\*:** .....

**Adres\*:** .....

**Tel.\*\*:** .....

**e-mail.\*\*:** .....

**\* zeker invullen**

**\*\* graag ook een van deze invullen**

(Alle gegevens worden enkel gebruikt in deze studie en worden vertrouwelijk behandeld)

### *Deel 1: Aard van eigen houtverwarming*

1. Gebruikt u hout als brandstof in uw woning? (Dit kan zijn als verwarmingsbron voor uw woning of voor de gezelligheid.)

- Ja
- Neen (-> **ga naar vraag 13**)

#### **type kachel**

2. Gebruikt u hout als hoofdverwarming?

- Ja, via centrale verwarming (ketel op hout) (-> **vraag 3 overslaan**)
- Ja, via decentrale verwarming (vb. kachel of open haard op hout)
- Neen, enkel als bijverwarming /voor de gezelligheid

3. Welk type kachel heb je? Indien je meerdere kachels hebt die je regelmatig gebruikt, geef in 3a de kachel aan die je meest gebruikt en in 3b andere kachels die je ook gebruikt (plus aantal). Als je slechts één verwarmingsbron op hout hebt, moet je enkel 3a invullen.

3a. De kachel die ik het meest gebruik is:

- open haard
- (inbouw)cassette
- kachel (hout of pellets)
- speksteenkachel of accumulatiekachel

3b. Ik heb naast het type kachel dat in 3a vermeld is nog andere verwarmingsbronnen op hout, met name (ook aantal weergeven):

- open haard (aantal:.....)
- (inbouw)cassette (aantal:.....)
- kachel (hout of pellets) (aantal:.....)
- speksteenkachel of accumulatiekachel (aantal:.....)

4. Hoe oud is je verwarmingsinstallatie (vermeld in 2 of 3a-?

- .....jaar
- weet het niet exact, installatie werd in gebruik genomen:
  - voor 1970
  - 1970 - 1979
  - 1980 – 1989
  - 1990 – 1999
  - 2000 – 2005



- o 2006 – 2010
- o na 2010
- o weet het niet

**tijdstip van stoken**

5. Hoe vaak stookt u hout in de wintermaanden (december – februari)?

- o dagelijks
- o bijna dagelijks (> 20 dagen per maand)
- o vaak (10 tot 20 dagen)
- o regelmatig (3 tot 10 dagen)
- o zelden (minder dan 3 dagen per maand)
- o enkel op bepaalde dagen (vb enkel in het weekend) : specificeer .....
- o .....

6. Wanneer stookt u hout in de wintermaanden (december – februari)?

- o enkel 's avonds (vanaf 18u)
- o enkel 'ochtends (voor 9u)
- o enkel 's avonds en 's ochtends
- o enkel overdag
- o ganse dag
- o het varieert

**kenmerken van het hout en hoeveelheid**

7. Welk soort en vorm van hout stookt u en met welke frequentie?

|  | altijd | vaak | soms | nooit |
|--|--------|------|------|-------|
| gestapelde houtblokken                                   |        |      |      |       |
| houtbriketten (haardblokken)                             |        |      |      |       |
| houtpellets  |        |      |      |       |
| onbehandeld afvalhout (bv. sloophout, hout van paletten) |        |      |      |       |
| geverfd of behandeld hout                                |        |      |      |       |
| Houtkrullen of houtchips                                 |        |      |      |       |
| Snoeihout, sprokkelhout                                  |        |      |      |       |
| Andere (vb. combinatie)<br>specificeer:.....             |        |      |      |       |

Kent u het soort hout (den, eik,...)? Specificeer:.....

8. Is het hout dat u meestal gebruikt grondig gedroogd of zit er soms ook vochtig hout bij?

|                               | altijd | vaak | soms | nooit |
|-------------------------------|--------|------|------|-------|
| Ik gebruik kurkdroog hout     |        |      |      |       |
| Ik gebruik gewoon droog hout  |        |      |      |       |
| Ik gebruik licht vochtig hout |        |      |      |       |
| Ik gebruik nat hout           |        |      |      |       |

9. Van waar komt het hout meestal?

- o gekocht bij supermarkt, tuin of hobbycentra
- o gekocht bij particulier
- o gekocht bij houtbedrijf of houthandel
- o gekregen via familie of vrienden

- gekregen via werk
- gekregen via houtbedrijf of houthandel
- zelf gesprokkeld
- van eigen bomen of struiken
- van ergens anders, namelijk: .....

10. Hoeveel hout verbruikt u ongeveer per maand (in de maanden december – februari)?

- ..... M<sup>3</sup> of .... Kg
- dat varieert zeer sterk .....
- ik weet het niet

### Deel 2: Bijkomende vragen

13. Met welke brandstof verwarmt u uw woning hoofdzakelijk:

- elektriciteit (accumulator of directe elektrische verwarming (elektrische vuurtjes))
- aardgas
- stookolie (mazout)
- steenkool
- butaan- of propaangas (in flessen of tank)
- hout (incl. pellets)
- zonne-energie
- warmtepomp
- andere energie-bron:.....

14. In welk soort woning woont u:

- alleenstaande woning (open bebouwing)
- half-open bebouwing
- rijwoning
- andere: .....

### Deel 3: Waarnemingen houtverbranding

15. Kan je in de winter houtverbranding (in de buitenlucht) waarnemen in de buurt van je huis?

- Ik neem het NOOIT waar (-> **einde enquête**)
- ik neem het slechts heel zelden waar (enkele keren per winter)
- ik neem het regelmatig waar (minimaal 1 keer per week)

Eventuele opmerkingen over periode wanneer het meest houtverbranding wordt waargenomen (bv. weersomstandigheden, seizoen):

.....

16. In welke mate heb je hinder van waarneming van houtverbranding

- Ik ruik het maar vind de geur niet storend
  - Ik vind de geur hinderlijk
  - Ik heb er gezondheidsklachten van : bv. prikkende ogen, ademhaling,...
- specifieer welke gezondheidsklachten:.....

17. Zijn er dagen in de week (weekdagen, weekends) of tijdstippen van de dag (ochtend, avond) waarop je houtverbranding het meest waarneemt?

.....

Bedankt alvast voor het invullen van de enquête. Voor deze studie zijn we nog op zoek naar meetlocaties voor het uitvoeren van omgevingsmetingen en voor het uitvoeren van schouwmetingen. Indien je bereid bent om hieraan mee te werken kan u dit via antwoord op onderstaande vragen kenbaar maken.

Ben je bereid luchtkwaliteitsmetingen in je tuin te laten uitvoeren?

o ja, voor verdere afspraken mag u me contacteren op het nr.....

o neen

Ben je bereid emissiemetingen aan je schouw te laten uitvoeren (enkel indien je zelf op hout stookt)

o ja

voor verdere afspraken mag u me contacteren op het nr.....

type kachel: .....

o neen

## BIJLAGE B: Selectie filters

Van de bemonsterde filters worden er 15 op elke locatie geselecteerd voor analyse. Omdat de voorkeur uit gaat naar dagen waarop PAK bemonsterd worden gebeurt de selectie in 2 stappen. Eerst worden 4 selectiecriteria toegepast voor PAK dagen (WR en WS, voldoende hoge concentratie aan PM<sub>10</sub>, BC(950) en BC(950)\_WB), vervolgens wordt de selectie verder verfijnd voor de niet-PAK-dagen. Vervolgens worden bijkomende selectiecriteria toegepast op dagen dat er door VMM geen PAK bemonsterd zijn. De selectiecriteria worden hieronder besproken.

### Selectiecriteria:

- **Dagen dat PAK bemonsterd worden door VMM in Vlaanderen**

Deze dagen hebben voorkeur omdat we op deze manier de hier gemeten PAK waarden kunnen vergelijken. Toch wordt ook voor deze dagen in zekere mate rekening gehouden met de andere criteria maar soms iets minder streng (zie verder).

- **WR en WS**

De locatie E op VITO-domein wordt beschouwd als achtergrondlocatie. Dit is het geval bij ZW wind. We nemen hier een vrij brede windsector (Z tot W: 180 – 270°). Dagen waarop de wind uit een andere richting kwam worden enkel geselecteerd als de WS ≤2m/s omdat we ervan uit gaan dat dan lokale emissies grote impact hebben. Dus WR: 180-270 OF WS≤2m/s.

- **Voldoende hoge PM concentraties**

Dagen waarop de PM<sub>10</sub>-concentratie niet hoger is dan 10 µg/m<sup>3</sup> (op locatie E) worden niet weerhouden. Mogelijk zijn dan de levoglucosan-concentraties ook lager en dit zorgt voor grotere onzekerheid bij de bepaling ervan. Verder is ook de relatieve fout op de massabepaling groter.

- **Voldoende hoge BC (950) concentratie**

Dagen waarop de BC concentratie >1µg/m<sup>3</sup>. Dit zijn realistische minimum waarden in de winter. Indien de waarden laag zijn, wordt de fout op de bepaling van aandeel BB ook groter. (voor dagen waarop PAK gemeten zijn laten we toe dat op 1 locatie de waarde lager ligt.)

- **Voldoende hoge BC(950)\_WB**

BC\_BB(950): mag niet te klein zijn want de bepaling (van de bijdrage houtverbranding aan BC) is dan mogelijk onnauwkeuriger.

Mediaan van gemiddelde (A-E)= 0,31 => **BC(950)\_WB > 0,3 (gemiddelde van de 4 locaties)**

Dit betekent niet noodzakelijk dat de alfawaarde laag of hoog is. De hoeveelheid BC afkomstig van houtverbranding wordt zowel bepaald door het relatieve aandeel als door absolute concentratie BC.

### Bijkomende criteria (niet-PAK-dagen):

- **'smogdagen'**

Meeteerks met hoge PM concentraties (smogdagen). Gedurende enkele dagen lagen de concentraties hoger. Deze dagen worden geselecteerd want normaal komen deze dagen meer voor in de winter.

- **Groot verschil in PM**

Verskil in PM<sub>10</sub> massa tussen achtergrond E en andere locaties.

Dagen waarbij het maximaal verschil (van de drie locaties) met locatie E groot is

- **Alpha**

Voldoende variatie in alpha (lage en hoge waarden) zijn aangewezen om de methode te vergelijken met levoglucosan. We geven daarom de voorkeur aan dagen waarop de alpha hoog is (op een of meerdere locaties).

We houden ook rekening met de absolute waarde van BC(950)\_WB, deze is best niet te laag.

Wanneer we onderstaande selectiecriteria toepassen. Zijn er **10 PAK dagen** die voldoen en 17 dagen die geen PAK dagen zijn voor VMM.

- WR (180 – 270) of WS  $\leq$  2 m/s
- PM<sub>10</sub> >10
- BC\_BB(950) >0,3  $\mu\text{g}/\text{m}^3$
- BC >1  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  (met eventueel 1 van de vier locaties lager voor PAK dagen)

Van de 17 'niet PAK-dagen' die voldoen aan de selectiecriteria worden er nog 5 niet-PAK-dagen geselecteerd. De voorkeur gaat uit naar dagen met hoge PM<sub>10</sub>- concentratie, dagen waarop het verschil tussen E en de andere locaties groot is voor PM<sub>10</sub>, dagen met voldoende verschil in BC(950)\_WB, en hoge alpha-waarde. **De geselecteerde dagen zijn:**

**4/12, 7/12, 14/12, 16/12, 19/12, 28/12, 29/12, 6/1, 15/1, 18/1, 19/1, 20/1, 21/1, 22/1, 24/1.**

**BIJLAGE C: TEMPERATUURSPROTOCOL EC/OC-ANALYSE MET TOT**

Tabel 32 toont de details van het NIOSH870 en IMPROVE A protocol, welke in deze studie gebruikt werden voor de analyse van de filters van de immissiemetingen en emissiemetingen. In het geval van emissiefilters werd de analysetijd aangepast in functie van de belading.

*Tabel 32: Details van het NIOSH870 en IMPROVEA protocol gebruikt bij immissie- en emissiemetingen en ter vergelijking het EUSAAR2 protocol*

| Carrier gas           | NIOSH870          |     | EUSAAR2           |     | IMPROVE A  |     |
|-----------------------|-------------------|-----|-------------------|-----|--|-----|
|                       | Seconds           | °C  | Seconds           | °C  | Seconds  | °C  |
| He (Purge)            | 10                | -   | 10                | -   | 10   | -   |
| Helium                | 80                | 310 | 120               | 200 | variabel <sup>a</sup>                            | 140 |
| Helium                | 80                | 475 | 150               | 300 | variabel <sup>a</sup>                            | 280 |
| Helium                | 80                | 615 | 180               | 450 | variabel <sup>a</sup>                            | 480 |
| Helium                | 110               | 870 | 180               | 650 | variabel <sup>a</sup>                            | 580 |
| Helium (Oven cool)    | 45                | 550 | 30                | -   | -  | -   |
| Oxygen in Helium (2%) | 45                | 550 | 120               | 500 | variabel <sup>a</sup>                            | 580 |
| Oxygen in Helium (2%) | 45                | 625 | 120               | 550 | variabel <sup>a</sup>                            | 740 |
| Oxygen in Helium (2%) | 45                | 700 | 70                | 700 | variabel <sup>a</sup>                            | 840 |
| Oxygen in Helium (2%) | 45                | 775 | 80                | 850 | -  | -   |
| Oxygen in Helium (2%) | 45                | 850 | -                 | -   | -  | -   |
| Oxygen in Helium (2%) | 110               | 870 | -                 | -   | -  | -   |
| Calibration           | 120               | -   | 110               | -   | 110  | -   |
| Total analysis time   | 14 min and 20 sec |     | 19 min and 30 sec |     | Min: 19 min and 30 sec<br>Max: 69 min and 40 sec |     |

<sup>a</sup> Time of analysis varies related to concentration. Minimum step time 150 seconds, Maximum step 580 seconds.

