

# Modeloptimalisatie voor chemische subcomponenten van het BelEUROS-model



Studie uitgevoerd in opdracht van  
MIRA, Milieurapport Vlaanderen

Onderzoeksrapport

MIRA/2013/02, maart 2013  
VITO/2013/RMA/R/49



# Modeloptimalisatie voor chemische subcomponenten van het BeIEUROS-model

Felix Deutsch, Jean Vankerkom, Unit Ruimtelijke Milieuaspecten, VITO  
Jordy Vercauteren, Dienst Lucht, VMM  
Myriam Bossuyt, MIRA, VMM  
Frans Fierens, IRCEL

**Studie uitgevoerd in opdracht van MIRA,  
Milieurapport Vlaanderen**

MIRA/2013/02  
VITO/2013/RMA/R/49

Maart 2013

Vlaamse overheid



## **Documentbeschrijving**

### **Titel eindverslag**

Modeloptimalisatie voor chemische subcomponenten van het BelEUROS-model

Dit rapport verschijnt in de reeks MIRA Ondersteunend Onderzoek van de Vlaamse Milieumaatschappij. Deze reeks bevat resultaten van onderzoek gericht op de wetenschappelijke onderbouwing van het Milieurapport Vlaanderen. Dit rapport is ook beschikbaar via [www.milieurapport.be](http://www.milieurapport.be).

### **Samenstellers**

Felix Deutsch, Jean Vankerkom, Unit Ruimtelijke Milieuaspecten, VITO

Jordy Vercauteren, Dienst Lucht, VMM

Myriam Bossuyt, MIRA, VMM

Frans Fierens, IRCEL

### **Wijze van refereren**

Deutsch, F., Vankerkom, J., Vercauteren, J., Bossuyt, M., Fierens, F. (2013), Modeloptimalisatie voor chemische subcomponenten van het BelEUROS-model, studie uitgevoerd in opdracht van de Vlaamse Milieumaatschappij, MIRA, MIRA/2013/02, VITO/2013/RMA/R/49, VMM, VITO.

### **Vragen in verband met dit rapport**

Vlaamse Milieumaatschappij

Milieurapportering (MIRA)

Van Benedenlaan 34

2800 Mechelen

tel. 015 45 14 61

[mira@vmm.be](mailto:mira@vmm.be)

D/2013/6871/005

ISBN 9789491385179

NUR 973/943

## Woord vooraf

Dit eindverslag voor de studie “Modeloptimalisatie voor chemische subcomponenten van het BeEUROS-model” beschrijft de resultaten m.b.t. de grondige herziening en verbetering van de capaciteit van het BeEUROS-model om de chemische samenstelling van  $PM_{10}$  te berekenen. Het is immers zeer belangrijk onze kennis m.b.t. de primaire en secundaire chemische subcomponenten van  $PM_{10}$  en  $PM_{2,5}$  verder uit te breiden. Dit zal bijdragen tot een betere kennis van de fijnstofproblematiek zowel naar (ontbrekende) bronnen en vormingsmechanismen toe alsook naar bijdragen van de verschillende componenten aan de overschrijdingen van de Europese  $PM_{10}$ -dagnorm.

Deze studie ligt volledig in de lijn van de doelstellingen en aandachtspunten van het vierde MINA-plan (periode 2011-2015), waarin vermeld wordt: “Rond het meten en modeleren van de luchtkwaliteit gaat de aandacht naar de chemische karakterisatie en het bronnenonderzoek van fijn stof in gebieden met verhoogde concentraties en de optimalisatie van de bestaande luchtkwaliteits-, interpolatie- en voorspellingsmodellen.”

## Inhoudstafel

Woord vooraf.....	3
Inhoudstafel.....	4
Overzicht van tabellen.....	6
Overzicht van figuren .....	7
Samenvatting.....	9
Summary .....	13
Inleiding.....	17
<b>1 Modeloptimalisatie en modelvalidatie voor de chemische subcomponenten van PM<sub>10</sub> .</b>	<b>19</b>
1.1 Inleiding .....	19
1.2 Updates van de BelEUROS-modelinvoer .....	20
1.2.1 Overstap naar E-MAP versie 2.0 (incl. gegevens EIL-datawarehouse) ..	20
1.2.2 Actualisatie van de NOx-split voor het wegverkeer .....	22
1.2.3 Actualisatie van het emissietijdsprofiel voor SNAP sector 10 (landbouw).....	22
1.2.4 Correctie fout in emissietijdsprofiel voor SNAP-sector 4 (industriële productieprocessen).....	28
1.2.5 Actualisatie van de ozon randvoorwaarden o.b.v. meetwaarden Mace Head.....	29
1.3 Overzicht van de meetcampagnes en de gevalideerde componenten.....	29
1.3.1 De Chemkar II- en Chemkar III-meetcampagnes.....	29
1.4 Vergelijking van de gemodelleerde en gemeten chemische componenten voor Chemkar II en Chemkar III - Modelvalidatie .....	30
1.4.1 PM <sub>10</sub> .....	30
1.4.2 Elementair koolstof (EC) .....	33
1.4.3 Primair Organisch koolstof (POC) en Primaire Organische Massa (POM).....	36
1.4.4 Primaire anorganische componenten (Mineraal stof) .....	39
1.4.5 Ammonium .....	41
1.4.6 Nitraat.....	43
1.4.7 Sulfaat .....	45
1.4.8 Secundaire anorganische componenten (ammonium+nitraat+sulfaat)47	
1.4.9 Primaire componenten (EC+OC+Mineralen) versus secundaire componenten (ammonium+ nitraat+sulfaat).....	48
1.4.10 Zeezout (1,45 Na + Cl).....	50
1.4.11 Som van alle gemeten en gemodelleerde componenten .....	52
1.4.12 "Rest" .....	55
1.5 Conclusies .....	57
<b>2 Modelkalibratie en bepaling van de modelonzekerheid voor de chemische subcomponenten van PM<sub>10</sub> .....</b>	<b>57</b>
2.1 Modelkalibratie .....	57
2.1.1 Inleiding .....	57
2.1.2 Modelkalibratie voor de primaire fijnstofcomponenten .....	58

2.2 Bepaling van de modelonzekerheid .....	64
<b>3 Berekening van de bijdragen van de chemische subcomponenten van PM<sub>10</sub>.....</b>	<b>66</b>
3.1 Inleiding .....	66
3.2 Berekening van de chemische subcomponenten van PM <sub>10</sub> voor de periode 25/10/2008 – 2/11/2009.....	66
<b>4 Analyse van de oorzaken van de PM<sub>10</sub>-overschrijdingen voor de periode 25/10/2008- 2/11/2009.....</b>	<b>70</b>
4.1 Inleiding .....	70
4.2 Vlaamse bijdragen van de verschillende chemische componenten aan de PM <sub>10</sub> - concentraties in Vlaanderen .....	72
<b>5 Conclusies .....</b>	<b>77</b>
<b>Referenties .....</b>	<b>78</b>
<b>Lijst van afkortingen.....</b>	<b>78</b>

## Overzicht van tabellen

Tabel 1: Aannames gemaakt bij het opstellen van de temperatuursafhankelijkheid van het tijdsprofiel voor de ammoniak stalemmissies .....	27
Tabel 2: Overzicht van de tijdsfactoren (verdeling over de maanden van het jaar) voor de sector landbouw.....	28
Tabel 3: Vergelijking van de fracties EC in de PM <sub>2,5</sub> -emissies volgens CEPMEIP (Schaap et al., 2004) en de ATMOSYS EC-emissie-inventaris .....	33
Tabel 4: Berekening van de modelonzekerheid op basis van daggemiddelde concentraties voor de verschillende chemische componenten.....	64
Tabel 5: Analyse van de bijdrage (%) per chemische component aan de gemodelleerde PM <sub>10</sub> *-concentraties voor 9 meetlocaties voor de periode 25/10/2008 – 2/11/2009: Aantal dagen met daggemiddelde gemeten PM <sub>10</sub> -concentratie groter dan 50 µg/m <sup>3</sup> (“overschrijdingsdagen”); gem: gemiddelde bijdrage over de hele periode; o.d.: gemiddelde bijdrage van de respectievelijke component op de overschrijdingsdagen in deze periode; resultaten voor het gekalibreerde model .	68
Tabel 6: Analyse van de bijdrage (%) per chemische component aan de gemodelleerde PM <sub>10</sub> *-concentraties voor 9 meetlocaties voor de periode 25/10/2008 – 2/11/2009: Aantal dagen met daggemiddelde gemeten PM <sub>10</sub> -concentratie groter dan 50 µg/m <sup>3</sup> (“overschrijdingsdagen”); gem: gemiddelde bijdrage over de hele periode; o.d.: gemiddelde bijdrage van de respectievelijke component op de overschrijdingsdagen in deze periode; resultaten voor het niet-gekalibreerde model.....	69
Tabel 7: Analyse van de Vlaamse bijdrage (%) per chemische component voor 9 meetlocaties voor de periode 25/10/2008 – 2/11/2009: Aantal dagen met daggemiddelde gemeten PM <sub>10</sub> -concentratie groter dan 50 µg/m <sup>3</sup> (“overschrijdingsdagen”); gem: gemiddelde Vlaamse bijdrage over de hele periode; o.d.: gemiddelde Vlaamse bijdrage op de overschrijdingsdagen in deze periode; delta: relatief verschil in Vlaamse bijdrage op overschrijdingsdagen t.o.v. niet-overschrijdingsdagen .....	73



## Overzicht van figuren

Figuur 1: PM10-puntbronnen in Europa: E-PRTR databank.....	21
Figuur 2: PM10-puntbronnen in Vlaanderen: VMM - EIL- datawarehouse .....	21
Figuur 3: Percentage NO <sub>2</sub> in de NO <sub>x</sub> -emissies van het wegverkeer in Vlaanderen in functie van het jaar.....	22
Figuur 4: Huidig emissietijdsprofiel voor de landbouwsector: Relatieve verdeling van het jaartotaal over de maanden van het jaar .....	23
Figuur 5: Nieuw emissietijdsprofiel voor het uitrijden van dierlijke mest en toedienen van kunstmest: Profiel per week (boven) en profiel geaggregeerd per maand (beneden) .....	24
Figuur 6: Nieuw emissietijdsprofiel voor ammoniakemissies door beweiding: Profiel per week (boven) en profiel geaggregeerd per maand (beneden) .....	25
Figuur 7: Tijdsprofiel van de stalemissies vóór introductie van een temperatuursafhankelijkheid .....	26
Figuur 8: Tijdsprofiel voor de stalemissies na introductie van een temperatuursafhankelijkheid.....	26
Figuur 9: Aandeel van de verschillende activiteiten aan de totale ammoniakemissies van de landbouwsector (VMM, 2012) .....	27
Figuur 10: Nieuw emissietijdsprofiel geconstrueerd uit de tijdsprofielen voor het mestuitrijden, beweiding en stalemissies (temperatuursafhankelijk) .....	28
Figuur 11: Scatterplot voor PM <sub>10</sub> – Chemkar II .....	31
Figuur 12: Scatterplot PM <sub>10</sub> – Chemkar III.....	32
Figuur 13: PM <sub>10</sub> in Aarschot en Retie – Chemkar II .....	32
Figuur 14: Scatterplot EC bij gebruik van de CEPMEIP EC-split (Chemkar II) .....	34
Figuur 15: Scatterplot EC bij gebruik van de ATMOSYS EC-split (Chemkar II).....	35
Figuur 16: Scatterplot EC bij gebruik van de CEPMEIP EC-split (Chemkar III) .....	36
Figuur 17: Scatterplot voor de primaire organische componenten (POC, Chemkar II) .....	37
Figuur 18: Scatterplot voor de primaire organische componenten (POC, Chemkar III) .....	38
Figuur 19: Scatterplot voor POM (= 1,4*OC) voor de Chemkar II-campagne .....	38
Figuur 20: Scatterplot voor de primaire anorganische componenten (Mineraal stof) – Chemkar II....	39
Figuur 21: Scatterplot voor de primaire antropogene componenten (EC + OM + Mineraal stof) – Chemkar II .....	40
Figuur 22: Scatterplot voor ammonium – Chemkar II.....	41
Figuur 23: Scatterplot voor ammonium – Chemkar III.....	42
Figuur 24: Scatterplot ammonium bij een verlaging van de ammonium randvoorwaarden met 90 % (Chemkar II) .....	43
Figuur 25: Scatterplot voor nitraat – Chemkar II.....	44
Figuur 26: Scatterplot voor nitraat – Chemkar III.....	45
Figuur 27: Scatterplot voor sulfaat – Chemkar II .....	46
Figuur 28: Scatterplot voor sulfaat – Chemkar III .....	47
Figuur 29: Scatterplot voor de secundaire anorganische componenten – Chemkar II.....	48

Figuur 30: Scatterplots primaire (boven) versus secundaire (beneden) componenten – Chemkar II..	49
Figuur 31: Scatterplot voor zeezout (1,45 Na + Cl) – Chemkar II .....	51
Figuur 32: Scatterplot voor zeezout bij aggregatie van de concentraties tot een gemiddelde waarde over de hele campagne .....	52
Figuur 33: Scatterplot voor de som van alle gemodelleerde componenten – Chemkar II .....	53
Figuur 34: Scatterplot voor PM <sub>10</sub> (Chemkar II) met hogere washoutraties voor de fijnstof-componenten .....	54
Figuur 35: “Rest” in de metingen (PM <sub>10</sub> -som van alle chemische componenten) – Chemkar II .....	55
Figuur 36: Gemodelleerde concentratie “water” (gedeeld door 2) in functie van de gemeten “rest” fractie .....	56
Figuur 37: Kalibratie van PPM <sub>10</sub> via de regressielijnen ( $x=(y-b)/a$ ).....	58
Figuur 38: Primair PM <sub>10</sub> (PPM <sub>10</sub> ): Bias (verschil tussen metingen en model) in functie van de gemeten PPM <sub>10</sub> -concentraties .....	59
Figuur 39: Gekalibreerd PPM <sub>10</sub> via een biascorrectie op basis van PPM <sub>10</sub> metingen .....	60
Figuur 40: Correlatie tussen de gemeten PPM <sub>10</sub> -concentraties in functie van de gemeten PM <sub>10</sub> -concentraties.....	61
Figuur 41: Kalibratie van PPM <sub>10</sub> : Biascorrectie op basis van de gemeten PM <sub>10</sub> -concentraties: aparte kalibratie voor elk station.....	62
Figuur 42: Kalibratie van PPM <sub>10</sub> : Biascorrectie op basis van de gemeten PM <sub>10</sub> -concentraties: één functie voor alle meetstations behalve Borgerhout .....	62
Figuur 43: Kalibratie van PM <sub>10</sub> : Som van ammonium, nitraat en sulfaat (niet gekalibreerd) en de PPM <sub>10</sub> -componenten (gekalibreerd); gebruik van een aparte kalibratiefunctie voor Borgerhout.....	63
Figuur 44: Inschatting van PPM <sub>10</sub> op basis van de PM <sub>10</sub> -metingen en de correlatie tussen de PPM <sub>10</sub> - en PM <sub>10</sub> -metingen .....	64
Figuur 45: Gemiddelde concentraties voor de meetdagen van Chemkar II per meetlocatie voor PPM <sub>10</sub> , nitraat, ammonium en sulfaat telkens voor het niet-gekalibreerde model, voor het gekalibreerde model en op basis van de metingen .....	67
Figuur 46: Gemiddelde gemodelleerde concentraties van PPM <sub>10</sub> , ammonium, nitraat en sulfaat voor de 9 meetlocaties voor de volledige periode oktober 2008 t.e.m. november 2009 .....	67
Figuur 47: Vlaamse bijdrage (%) aan de concentraties van EC, sulfaat, nitraat en PM10 voor de meetlocaties Roeselare en Aarschot in functie van de gemeten PM10-concentratie .....	76

## Samenvatting

In het kader van de voorliggende studie werd het BeEUROS-model geoptimaliseerd m.b.t. zijn capaciteit om de chemische samenstelling van  $PM_{10}$  (chemische subcomponenten van fijn stof) te berekenen. Deze optimalisatie werd uitgevoerd door de modelresultaten te vergelijken met de metingen uitgevoerd i.k.v. de Chemkar II- en Chemkar III-meetcampagnes van VMM. De geoptimaliseerde modelversie werd vervolgens gevalideerd aan de hand van deze metingen.

De belangrijkste resultaten van deze validatieoefening zijn dat BeEUROS enerzijds erin slaagt de secundaire anorganische componenten (ammonium, nitraat en sulfaat) vrij correct te berekenen, zeker de jaargemiddelde concentraties, en dat de verkregen resultaten als voldoende betrouwbaar mogen beschouwd worden om ze in studies te gebruiken. Anderzijds is het momenteel niet mogelijk de concentraties van de primaire fijnstofcomponenten (elementair koolstof (EC), organisch koolstof (OC) en mineraal stof) op een voldoende betrouwbare manier te berekenen. Voor EC vinden we, afhankelijk van de locatie en de periode, min of meer significante overschattingen van de gemeten EC-concentraties en voor OC en mineraal stof onderschat BeEUROS in het algemeen de gemeten concentraties duidelijk. Voor de som van de primaire fijnstofcomponenten ( $PPM_{10}$ ) worden meestal de lage gemeten concentraties overschat door het model en de hoge gemeten concentraties onderschat. De validatieoefening toont ook aan dat er verschillen zijn in modelprestatie tussen de Chemkar II- en de Chemkar III-campagne. De correlatiecoëfficiënten voor de meeste componenten zijn hoger voor de periode van de Chemkar II-campagne.

Er werden vervolgens meerdere opties getest om het model voor de som van de primaire fijnstofcomponenten ( $PPM_{10}$ ) te kalibreren. Een kalibratie op basis van de verkregen correlatie tussen gemeten en gemodelleerde  $PPM_{10}$ -concentraties leverde geen bevredigend resultaat op omdat het model de variatie in gemeten  $PPM_{10}$ -concentraties sterk onderschat waardoor bij deze kalibratiemethode een veel te grote spreiding in berekende  $PPM_{10}$ -concentraties ontstaat, met o.a. een aantal negatieve daggemiddelde concentraties. Deze kalibratiemethode is mogelijks geschikt voor de berekening van een jaargemiddelde concentratie maar niet voor de berekening van daggemiddelde concentraties, zoals nodig in deze studie.

Een mogelijke alternatieve kalibratiemethode die getest werd, is gebaseerd op het optellen van de concentratieafhankelijke bias tussen gemodelleerde en gemeten  $PPM_{10}$ -concentratie. Deze methode zou in veel sterkere mate gebruik maken van de  $PPM_{10}$ - of  $PM_{10}$ -metingen van de beschouwde locatie en de beschouwde dag zelf. Deze methode levert in principe goede resultaten op m.b.t. de vergelijking van meet- en modelwaarden. Er duiken echter twee belangrijke vragen hierbij op: Ten eerste, biedt het model bij deze kalibratietechniek eigenlijk nog een meerwaarde t.o.v. het gebruik van een inschatting van  $PPM_{10}$  puur op basis van de  $PM_{10}$ -metingen (of  $PM_{10}$ -concentraties uit RIO)? Ten tweede, ontstaat er mogelijk een artefact bij deze kalibratiemethode doordat er op dagen met hoge  $PM_{10}$ -concentratie een veel grotere bias (een veel grotere  $PPM_{10}$ -concentratie) opgeteld wordt dan op dagen met lage  $PM_{10}$ -concentraties? Dit zou een invloed kunnen hebben op de berekende  $PPM_{10}$ -concentraties op overschrijdingsdagen van de  $PM_{10}$ -dagnorm t.o.v. de jaargemiddelde  $PPM_{10}$ -concentratie. De voor- en nadelen van de verschillende kalibratiemethodes werden onderzocht.

De conclusies van deze oefening kunnen zoals volgt samengevat worden:

De resultaten uit de modelvalidatie geven aan dat de modellering van individuele primaire fijnstofcomponenten nog onvoldoende correct is om hieruit sluitende conclusies te trekken over bronnen en oorzaken van de overschrijdingsdagen. Er zijn in principe 4 opties om met het model te rekenen:

1. zonder kalibratie;
2. met een eenvoudige algemene  $y=ax+b$  kalibratie;
3. met een bias-kalibratie voor  $PPM_{10}$  op dagbasis a.d.h.v. metingen, en tenslotte;
4. met een schrappen van gemodelleerd  $PPM_{10}$  en vervanging door een schatting op basis van de  $PM_{10}$ -metingen (of  $PM_{10}$ -concentraties uit RIO).

De voor- en nadelen van deze 4 opties worden samengevat in volgende tabel:

Optie	Voordeel	Nadeel
1	Geen artefact mogelijk door de bias-correctie door het sterker corrigeren op overschrijdingsdagen dan op niet-overschrijdingsdagen.	$PPM_{10}$ wordt duidelijk onderschat, zoals aangetoond in de modelvalidatie. Met deze optie worden geen realistische $PPM_{10}$ -concentraties berekend.
2	Geen artefact mogelijk door de bias-correctie; de gemiddelde $PPM_{10}$ -concentratie komt overeen met deze van de metingen	Zeer hoge spreiding op de berekende resultaten, waaronder vele negatieve concentraties; deze methode lijkt niet geschikt voor toepassing op daggemiddelde concentraties.
3	Goede overeenkomst tussen model en metingen, ook bij hoge $PPM_{10}$ -concentraties.	Gevaar bestaat dat er door de concentratieafhankelijke biascorrectie een artefact ontstaat omdat er op overschrijdingsdagen veel sterker gecorrigeerd wordt dan op niet-overschrijdingsdagen.
4	Gebruik van ( $PM_{10}$ -)meetwaarden met een gekende onzekerheid.	Omwille van weinig metingen op overschrijdingsdagen in Chemkar II is de correlatie tussen gemeten $PPM_{10}$ en $PM_{10}$ mogelijks niet representatief voor overschrijdingsdagen; overdragen van de resultaten naar andere locaties en tijdstippen is moeilijk.

Het fundamentele probleem i.v.m. optie 2, die normaalgezien de voorkeur geniet bij de kalibratie van modellen, is dat de spreiding van de verkregen resultaten zeer hoog is. Dit komt erop neer dat het model voor de berekening van  $PPM_{10}$  op dagbasis nog niet bruikbaar is. De oorzaak van dit laatste ligt waarschijnlijk voor een (groot) stuk bij het ontbreken en/of onderschatten van bepaalde, waarschijnlijk vooral Vlaamse, emissiedata. Het gaat hierbij waarschijnlijk vooral om (diffuse) primaire stofemissies afkomstig van o.a. residentiële houtverbranding, opwaaiend stof door het wegverkeer en stofemissies van op- en overslag van bulkgoederen.

De meest realistische resultaten bekomen we met opties 3 en 4. Deze lijken dan ook de beste manier om het vraagstuk van de samenstelling op overschrijdingsdagen op te lossen. In essentie komen 3 en 4 erop neer dat  $PPM_{10}$  juister ingeschat wordt door het gebruik van metingen. De opties 1 en 2 zijn dus gebaseerd op het model (al dan niet gekalibreerd op de klassieke manier), de opties 3 en 4 zijn een combinatie van model en metingen.

Kort samengevat bevestigt het model min of meer de metingen van secundair anorganisch  $PM_{10}$  maar is momenteel nog niet bruikbaar voor  $PPM_{10}$  en we moeten het dus stellen met de informatie die we uit de metingen kunnen halen, zeker voor wat betreft de bijdrage van  $PPM_{10}$  op overschrijdingsdagen.

Bij dit laatste stelt zich echter ook een probleem in die zin dat er tijdens de Chemkar II meetcampagne op te weinig overschrijdingsdagen metingen van de chemische samenstelling uitgevoerd werden om op basis van deze metingen een uitspraak te kunnen doen over de chemische samenstelling van  $PM_{10}$  op overschrijdingsdagen t.o.v. de (jaar)gemiddelde chemische samenstelling. Zo werden er bijvoorbeeld in Aarschot maar op 2 van de 31 overschrijdingsdagen gedurende de Chemkar II campagne metingen van de chemische samenstelling uitgevoerd. Ook op de andere meetlocaties is dit percentage bijzonder laag. Om deze reden besluiten we dat we momenteel voor de Chemkar II campagne (die voor de modelkalibratie gebruikt werd) geen betrouwbare uitspraak kunnen doen m.b.t. de bijdrage van de chemische subcomponenten van  $PM_{10}$  op overschrijdingsdagen t.o.v. de jaargemiddelde bijdragen, noch op basis van de modelresultaten noch op basis van de metingen.

In het laatste deel van de studie werd de Vlaamse bijdrage berekend per chemische subcomponent en ook hierbij werd getracht een onderscheid te maken tussen de jaargemiddelde Vlaamse bijdragen en de Vlaamse bijdragen op overschrijdingsdagen.

Ongeacht alle boven vermelde onzekerheden verbonden aan de modelresultaten zijn er toch een aantal conclusies die met een voldoende grote betrouwbaarheid kunnen getrokken worden uit deze berekeningen. De berekeningen hebben aangetoond dat de Vlaamse bijdrage aan de concentraties van EC, OC en de minerale fractie significant hoger is dan de Vlaamse bijdrage aan de totale  $PM_{10}$ -fractie. Volgens huidige inzichten zijn de EC-concentraties in hoge mate bepalend voor de gezondheidsgevaaren van  $PM_{10}$  (o.a. Janssen et al., 2011). De Vlaamse bijdrage aan deze fractie kan oplopen tot 80 à 90 % van de totale EC-concentratie bv. in Borgerhout.

Vergelijken we deze bijdrage met de berekende Vlaamse bijdrage aan de  $PM_{10}$ -concentraties van ongeveer 25 % gemiddeld over Vlaanderen zo toont zich voor EC (en de andere primaire componenten) een volledig ander beeld. Algemeen vinden we voor de  $PPM_{10}$ -componenten significant hogere Vlaamse bijdragen dan voor de secundaire  $PM_{10}$ -componenten. Nemen we hier nog bij dat er momenteel van uitgegaan wordt dat er grotere gezondheidsgevaaren verbonden zijn aan de primaire fijnstofcomponenten dan aan de secundaire fijnstofcomponenten zo nuanceert dit resultaat toch enigszins de indruk die zou kunnen ontstaan uit het cijfer van 25 % gemiddelde Vlaamse bijdrage aan de  $PM_{10}$ -concentraties.

De gezondheidsrelevante fracties (vooral EC en OC) van  $PM_{10}$  vertonen dus hoge Vlaamse bijdragen aan hun concentraties en kunnen dus aangepakt worden op het Vlaamse beleidsniveau. Maatregelen genomen in het buitenland specifiek voor deze pollutanten zullen maar een relatief klein effect hebben op de concentraties hiervan in Vlaanderen. Mogelijke lokale maatregelen om de EC-concentraties te doen dalen zijn bijvoorbeeld lage-emissie-zones, rekeningrijden en andere maatregelen om het verkeersvolume te doen dalen. Ook de retrofit voor bestaande diesels, waarvoor er een subsidiesysteem bestaat in Vlaanderen, kan een bijdrage leveren.

Verder is het duidelijk geworden dat de Vlaamse bijdrage aan de primaire  $PM_{10}$ -componenten en aan  $PM_{10}$  in zijn geheel significant hoger is in stedelijke gebieden dan gemiddeld over Vlaanderen. Dit resultaat is m.b.t. de herkomst van de emissies die bijdragen aan de blootstelling van grote delen van de bevolking van belang.

Naast de boven besproken onzekerheden die door het model zelf en een eventuele kalibratieprocedure ontstaan, zijn ook de onzekerheden verbonden aan de gebruikte emissies belangrijk. Er zijn momenteel heel wat aanwijzingen dat er een aantal lokale bijdragen, vooral van primaire fijnstofemissies (o.a. door houtverbranding en opwaaiend stof door wegverkeer), niet of maar deels zijn opgenomen in de emissie-inventaris. Hierdoor moeten we er van uitgaan dat de Vlaamse bijdrage aan  $PM_{10}$  waarschijnlijk onderschat wordt door het model omdat deze (ontbrekende) lokale fijnstofemissies voor een hogere bijdrage van lokale bronnen zouden zorgen. Hierbij is het belangrijk om op te merken dat BelEUROS (en vele andere gelijkaardige modellen ook) alleen de emissies van een aantal natuurlijke bronnen zelf in schatten, nl. de emissies van zeezout en deze van isopreen en terpenen door vegetatie. Door de modellen zelf worden echter geen antropogene emissies ingeschat of bijgeschat. Zijn deze emissies dus niet in de gebruikte emissie-inventaris vervat of zijn deze daarin onderschat zo zullen de modellen onvermijdelijk de bijdragen van deze bronnen missen/onderschatten.

Dit zou evenzo een effect kunnen hebben op de berekening van bijvoorbeeld de bijdragen van de verschillende socio-economische sectoren in Vlaanderen aan de  $PM_{10}$ -concentraties. Zijn bijvoorbeeld de primaire fijnstofemissies van één sector vrij correct ingeschat in de emissie-inventaris (omwille van het feit dat er al veel studiewerk hieromtrent uitgevoerd werd in Vlaanderen), deze van een ander sector echter onderschat, zo zou de berekening van sectorbijdragen een vertekend beeld geven zuiver omwille van de verschillende graad van volledigheid van de primaire stof emissie-inventaris voor de verschillende sectoren.

We kunnen dus als bijkomende conclusie stellen dat het momenteel prioritair moet zijn de emissie-inventaris voor (in de eerste plaats) primair fijn stof te vervolledigen. Eens deze emissies beter in kaart zijn gebracht zouden de modelprestaties hoogstwaarschijnlijk (automatisch) verbeteren. Dit lijkt op het moment zelfs belangrijker te zijn dan verdere verbeteringen van het model zelf. Wat het model betreft lijkt de zoektocht naar betere kalibratiemethodes vooral voor  $PPM_{10}$  van groot belang te zijn, gezien zich hier de grootste problemen voordoen. Hiervan zouden zowel retrospectieve berekeningen maar ook de  $PM_{10}$ -voorspellingen profiteren.

## Summary

The BeEUROS model has been optimized in the framework of this study with respect to its capacity to calculate the chemical composition of  $PM_{10}$ , i.e. the chemical subcomponents of fine particulate matter. This optimization has been carried out by a comparison of model results with the observations collected during the Chemkar II and Chemkar III field campaigns of VMM. The optimized model version has been validated subsequently.

The main results of this validation exercise are that BeEUROS on the one hand succeeds to calculate the secondary inorganic compounds (ammonium, nitrate and sulfate) quite correctly, especially the annual average concentrations, and the results obtained are sufficiently reliable to use them in studies. On the other hand, it is currently not possible to calculate the concentrations of the primary particulate components (elemental carbon (EC), organic carbon (OC) and mineral dust) in a sufficiently reliable way.

For EC, we find, depending on the location and the time period, more or less significant overestimates of the observed concentrations and for OC and mineral dust BeEUROS underestimates the observed concentrations clearly in general. For the sum of the primary particulate components ( $PPM_{10}$ ) typically the low concentrations are overestimated by the model and the high concentrations are underestimated. Also, differences in model performance have been detected between the Chemkar II- and the Chemkar III-field campaigns. Observed correlation coefficients are higher for the period of the Chemkar II-campaign for most components.

Several options have been tested to calibrate the model for the sum of the primary particulate components ( $PPM_{10}$ ). A calibration based on the obtained correlation between measured and modeled  $PPM_{10}$ -concentrations yielded no satisfactory result because the model underestimates the variation in measured  $PPM_{10}$ -concentrations strongly. Hence, this calibration method leads to a far too large variation in calculated  $PPM_{10}$ -concentrations, including some negative daily average concentrations. This calibration method is potentially suitable for the calculation of an annual average concentration, but not for the calculation of daily average concentrations, as required in this study.

A possible alternative calibration method, which was also tested, is based on the addition of the concentration-dependent bias between the modeled and observed  $PPM_{10}$ -concentration. This method would make much greater use of the  $PPM_{10}$ - or  $PM_{10}$ -measurements for the considered location and for the same day. This method gives basically good results regarding the comparison of measurement and model values. However, two important questions arise regarding this method: First, does the model actually offer an added value when using this calibration technique compared to the use of an estimate of  $PPM_{10}$  purely based on the  $PM_{10}$  observations (or  $PM_{10}$ -concentrations from the RIO-model)? Secondly, might there not be an artifact when using this calibration method because on days with high  $PM_{10}$ -concentrations a much larger bias (a much larger  $PPM_{10}$ -concentration) is added than on days with low  $PM_{10}$ -concentrations? This would have an impact on the calculated concentrations of  $PPM_{10}$  on exceedance days of the  $PM_{10}$  daily limit value compared to the annual average concentration of  $PPM_{10}$ . The advantages and disadvantages of the different calibration methods were investigated.

The conclusions of this exercise can be summarized as follows:

The results of the model validation indicate that the modeling of individual primary particle components is still insufficiently correct to draw sound conclusions about sources and causes of exceedance days. There are basically four options for the model to be operated:

1. without calibration;
2. with a simple calibration based on  $y = ax + b$ ;
3. with a bias correction for  $PPM_{10}$  based on daily measurements, and, finally;
4. with a replacement of the modeled  $PPM_{10}$  by an estimate based on the  $PM_{10}$  (or  $PM_{10}$  concentrations from RIO).

The advantages and disadvantages of these 4 options are summarized in the following table:

Optie	Advantage	Disadvantage
1	No possible artifact by the bias-correction due to stronger correction on exceedance days than on non-exceedance days.	$PPM_{10}$ is clearly underestimated, as shown in the model validation. With this option, no realistic $PPM_{10}$ concentrations are calculated.
2	No possible artifact by the bias correction, the average $PPM_{10}$ -concentration corresponds to the one of the measurements.	Very high scatter on the calculated results, including many negative concentrations; this method does not seem suitable for use on daily average concentrations.
3	Good agreement between model and measurements, even at high concentrations of $PPM_{10}$ .	Danger exists that due to the concentration-dependent bias correction an artifact arises because much stronger correction is applied on exceedance days than on non-exceedance days.
4	Use of ( $PM_{10}$ ) measurements with known uncertainty.	Because of few measurements on exceedance days in Chemkar II the correlation between measured $PM_{10}$ and $PPM_{10}$ is possibly not representative for exceedance days; transfer of the results to other locations and times is difficult.

The fundamental problem regarding option 2, which is normally preferred for the calibration of models, is that the scatter of the obtained results is very large. This means that the model is not suitable for the calculation of  $PPM_{10}$  on a daily basis. The reason behind this is probably connected to a (large) part to the absence and/or underestimation of certain, probably mainly Flemish, emission data, especially (diffuse) primary particle emissions from e.g. residential wood combustion, resuspended dust from road traffic and dust emissions from storage and handling of bulk goods.

The most realistic results can be obtained with options 3 and 4. These seem to be the best way to address the issue of the composition on exceedance days. Essentially, options 3 and 4 mean that  $PPM_{10}$  is estimated more accurately by the use of measurements. Options 1 and 2 are based on the model (whether or not calibrated in the classical way), options 3 and 4 are a combination of model and measurements.



In brief, the model confirms more or less the measurements of secondary inorganic  $PM_{10}$  components but it is not yet suitable for  $PPM_{10}$  and we must therefore conclude with the information we get from the measurements, especially regarding the contribution of  $PPM_{10}$  on exceedance days.

The latter however is also problematic to some extent because during the Chemkar II measurement campaign too little exceedance days were included in the measurements of the chemical composition. Hence, no decision can be made about the chemical composition of  $PM_{10}$  on exceedance days compared to the (annual) average chemical composition. E.g., in Aarschot only 2 out of the 31 exceedance days during the Chemkar II measurements of the chemical composition were included. Also on other measurement locations this rate is very low. For this reason we have to conclude that we currently (for the Chemkar II campaign for which the model calibration was set up) cannot make a reliable statement about the contribution of the chemical subcomponents of  $PM_{10}$  on exceedance days compared to the annual average contributions, neither based on model results nor based on measurements.

In the last part of the study, the Flemish contribution has been calculated by chemical subcomponent and also here we tried to distinguish between the annual average Flemish contribution and the Flemish contribution on exceedance days.

Regardless of all the above mentioned uncertainties associated with the modeling results there are a number of conclusions that can be drawn from these calculations with a sufficient reliability. The calculations have shown that the Flemish contribution to the concentrations of EC, OC and the mineral fraction is significantly higher than the Flemish contribution to the total  $PM_{10}$ -fraction. With values of up to 80 or 90 % Flemish contribution to the EC-concentrations in Borgerhout it is very clear that this chemical component is for a very large part derived from Flemish sources. Additionally, currently the adverse health effects associated with  $PM_{10}$  are to a large part allocated to EC (e.g. Janssen et al., 2011). If we compare this value with the calculated contribution of Flemish emissions to  $PM_{10}$ -concentrations of about 25 % on average over Flanders a completely different picture for EC (and other primary components) is seen. Generally, we find significantly higher contributions for the  $PPM_{10}$ -components from Flemish sources than for the secondary  $PM_{10}$ -components. At that moment it is assumed that larger health hazards are associated with the primary particulate components than with the secondary particulate components, hence this result corrects somewhat the impression that might arise from the number of 25 % mean Flemish contribution to  $PM_{10}$ -concentrations.

The health relevant fractions (mainly EC and OC) of  $PM_{10}$  thus exhibit high Flemish contributions to their concentrations, and therefore need to be addressed on the Flemish policy level. Measures taken abroad will only have a relatively small effect on the concentrations of these pollutants in Flanders. Opportunities for a decrease of the EC-concentrations as a result of local measures include low-emission zones, road pricing and other measures to reduce the amount of traffic. The retrofit of existing diesel engines, for which a subsidy system exists in Flanders, may also contribute.

Furthermore, it is clear that the Flemish contribution to primary  $PM_{10}$  and to total  $PM_{10}$  is significantly higher in urban areas than on average in Flanders. This result is related to the origin of the emissions that contribute to the exposure of large parts of the population.

Concerning the uncertainties on these results, in addition to the above discussed uncertainties of the model itself and possible calibration uncertainties, additional important uncertainties are related to the used emissions. There are many indications that a number of local contributions, especially of primary particulate matter emissions (e.g. by wood combustion and resuspended road dust), are not or only partially included in the emission inventory. This means we have to assume that the Flemish contribution to  $PM_{10}$  is probably underestimated by the model because these (missing) local particulate emissions would lead to a higher contribution of local sources if included into the model. It is important to note that BeLEUROS (and many other similar models) only estimate the emissions of a number of natural sources itself, i.e. the emissions of sea salt and of isoprene and terpenes by vegetation. The models themselves do not estimate any anthropogenic emissions. If these emissions are not used in the emission inventory or are underestimated the model will inevitably miss or underestimate the contributions from these sources.

This would also have an effect on the calculation of e.g. the contributions of the various socio-economic sectors in Flanders to the  $PM_{10}$ -concentrations. For example, suppose the primary particulate emissions from one sector are quite correctly estimated in the emission inventory (due to the fact that there were already many studies conducted on this subject in Flanders), those of another sector are instead underestimated, this would result in a distorted picture when calculating sector contributions purely because of the different degree of completeness of the primary dust emission inventory for the different sectors.

We can thus conclude that the highest priority should currently be given to the completion of the emission inventory for primarily particulate matter. Once these emissions are better included, the model performance most likely will (automatically) improve. This seems at the moment even more important than further improvements of the model itself. As the model is concerned, the search for better calibration methods for  $PPM_{10}$  is especially important as this point is currently one of the main problems. From this both retrospective calculations but also the  $PM_{10}$ -predictions would benefit.

## Inleiding

Het BelEUROS-model werd recent uitgebreid gebruikt in het kader van de Milieuverkenning 2030 van VMM-MIRA. Drie emissieprojecties werden hierbij doorgerekend naar concentraties  $PM_{10}$ ,  $PM_{2,5}$  en ozon. Hieruit blijkt dat de problemen rond de overschrijding van de grenswaarden vastgelegd in de Europese richtlijn luchtkwaliteit ook de komende jaren in Vlaanderen nog niet kunnen opgelost worden. Vooral de Europese dagnorm voor  $PM_{10}$  zal nog een hele tijd voor problemen zorgen.

Een belangrijke lacune in onze kennis over fijn stof situeert zich rond de chemische samenstelling van  $PM_{10}$  en  $PM_{2,5}$  en, meer bepaald, in de ruimtelijke en temporele variatie ervan. We hebben ook nog geen duidelijk beeld van de bijdragen van de verschillende chemische subcomponenten van  $PM_{10}$  aan de overschrijdingen van de Europese  $PM_{10}$ -dagnorm. Ons beeld over fijn stof zal onvolledig blijven wanneer we hierop geen beter zicht hebben.

Belangrijke bronnen van informatie hierover zijn de Chemkar-meetcampagnes van VMM (o.a. VMM, 2010). Bij de Chemkar II-meetcampagne werd de chemische samenstelling van  $PM_{10}$  nauwgezet geanalyseerd op 9 locaties in Vlaanderen (6 Hotspot locaties en 3 achtergrondlocaties) en dit om de 6 dagen gedurende één volledig jaar. De hierbij opgestelde set van data vormt een unieke en zeer waardevolle bron van informatie. Deze gegevens zijn ideaal om te gebruiken voor modeloptimalisatie en modelvalidatie. Het nadeel van deze metingen is echter dat ze m.b.t. hun temporele en ruimtelijke representativiteit (en dus ook hun volledigheid) beperkt zijn. Omdat er “maar” om de zes dagen gemeten werd is het moeilijk (tot zelfs onmogelijk) om uit deze metingen de bijdragen van de componenten op alle overschrijdingsdagen van de meetperiode te construeren. Deze bijdragen zijn immers zeer afhankelijk van de meteosituation en wellicht ook van de tijd van het jaar. Het is nu net één van de voordelen van modellen om een hoge temporele en ruimtelijke resolutie aan te bieden en volledige datareeksen ter beschikking te stellen.

Het BelEUROS-model werd in het kader van de referentietask “Kenniscentrum Luchtkwaliteit-modellering” in 2011 verbeterd m.b.t. zijn capaciteit om jaargemiddelde zeezoutconcentraties in  $PM_{10}$  te berekenen. De onzekerheid bij deze component blijft echter bijzonder hoog.

In het kader van de referentietask 2012 en een TWO-project werden bijkomende taken uitgevoerd die tot een verdere verbetering van de modelperformantie moeten leiden. De belangrijkste deeltaak was hierbij de opname van de EIL-datawarehouse voor industriële emissies in E-MAP. Deze taak is van groot belang voor de modellering van  $PM_{10}$  gezien er tot nu toe een groot deel van de industriële  $PM_{10}$ -emissies niet kon toegewezen worden aan puntbronnen en dus collectief moest gespreid worden. Dit introduceerde echter een aanzienlijke bijkomende onzekerheid in de  $PM_{10}$ -emissies met alle gevolgen van dien. Hier komt nog bij dat de bronparameters voor deze collectief te spreiden emissies onzeker zijn, wat fouten in de verticale spreiding van de  $PM_{10}$ -emissies tot gevolg had. Dit laatste heeft een grote impact op de  $PM_{10}$ -concentraties in de grondlaag van BelEUROS.

Inhoudelijk gezien werd binnen deze studie onderzoek uitgevoerd naar de chemische karakterisatie van  $PM_{10}$  in Vlaanderen. De jaren 2008, 2009 en 2010 (en in het bijzonder de periodes van de Chemkar II- en Chemkar III-meetcampagnes) werden hiervoor gebruikt. Alle hoofdcomponenten die in Chemkar II en Chemkar III gemeten werden (EC, OM, mineraal stof, ammonium, nitraat, sulfaat, zeezout en “andere componenten”) worden ook door het chemische mechanisme van BelEUROS

berekend. BeIEUROS berekent ook de massa water die aan  $PM_{10}$  verbonden is. Deze massa water is ook interessant omdat ze hoogstwaarschijnlijk deel uit maakt van de chemisch niet geïdentificeerde massa (andere componenten) in de metingen.

## 1 Modeloptimalisatie en modelvalidatie voor de chemische subcomponenten van PM<sub>10</sub>

### 1.1 Inleiding

De eerste doelstelling van dit project is om tot een verdere modeloptimalisatie te komen met betrekking tot de capaciteit van BelEUROS om de verschillende chemische subcomponenten van PM<sub>10</sub> zo correct mogelijk te berekenen en om meer inzicht te krijgen rond ontbrekende fracties, zoals opwaaiend stof door (weg)verkeer en industrie. Meer specifiek werden de volgende optimalisaties uitgevoerd.

Door de vergelijking van de gemeten en gemodelleerde concentraties elementair koolstof (EC), organisch materiaal (OM) en mineraal stof werd de gebruikte fijnstofsplitsing in het model geüpdatet. Deze splitsing bevat per SNAP-sector voor zowel PM<sub>2,5</sub> alsook PM<sub>coarse</sub> de verdeling van de primaire emissies op de componenten EC, primaire organische componenten (OC) en mineraal stof. Hierdoor is een verbetering van de modelresultaten voor EC, OC en mineraal stof te verwachten. Hierbij werd ook informatie gebruikt uit de Vlaamse EC-emissie-inventaris die recent opgesteld werd door VMM in kader van het LIFE+ project ATMOSYS. Een aandachtspunt bij de componenten EC en OC blijft de onzekerheid bij de inschatting van de fracties EC en OC van de PM<sub>2,5</sub>-emissies en de relatie tussen deze fracties en het gebruikte meetprotocol voor de EC/OC-metingen (cfr. NIOSH-protocol vs. EUSAAR-protocol). Afhankelijk van het toegepaste meetprotocol wordt de grens tussen EC en OC gedefinieerd en deze grens komt mogelijks niet overeen met de grens gebruikt bij het opstellen van de fracties EC en OC in de PM<sub>2,5</sub>-emissies. Dit zou onvermijdelijk tot een overschatting van de ene component (bv. EC) en een onderschatting van de andere component (bv. OC) door het model leiden.

Door deze vergelijking wordt ook duidelijk in hoeverre er belangrijke emissiebronnen van primair PM<sub>10</sub> in het model (en dus in de emissie-inventaris) ontbreken, bijvoorbeeld opwaaiend stof door verkeer (waarschijnlijk nu nog onderschat in de emissie-inventaris) of door industriële processen, waardoor verhoogde concentraties mineraal stof (bv. in Borgerhout (verkeer) en in Evergem (op- en overslag)) verwacht worden. Door de (waarschijnlijke) onderschatting van deze emissies in het model kan verwacht worden dat deze specifieke componenten dan ook op bepaalde locaties onderschat worden.

Met betrekking tot de secundaire fijnstofcomponenten werd door de vergelijking van de gemeten en gemodelleerde concentraties sulfaat de parametrisatie van de vorming van sulfaat in wolkendruppeltjes gevalideerd. Het andere belangrijke reactiepad waarbij sulfaat gevormd wordt, namelijk via OH-radicalen in de gasfase, zit immers al goed beschreven in het gebruikte CB-IV-gasfasemechanisme van BelEUROS zodat systematische afwijkingen ten opzichte van de meetwaarden overwegend zouden moeten gelinkt worden aan de sulfaatvorming in de vloeibare fase van de atmosfeer.

De vergelijking van de gemeten en gemodelleerde concentraties ammonium en in het bijzonder de mogelijke systematische verschillen in functie van de tijd van het jaar geeft waardevolle informatie in verband met het tijdsprofiel dat gebruikt wordt voor de verdeling van de jaarlijkse ammoniakemissie over de maanden van het jaar. Er is namelijk nog veel onzekerheid hoeveel van de jaarlijkse ammoniakemissie tijdens de hoofd-bemestingsperiode in maart/april geloosd wordt t.o.v. de eerder

constante emissies afkomstig vanuit stallen. De update van dit tijdsprofiel zal de capaciteit van het model in belangrijke mate verbeteren om  $PM_{10}$ -overschrijdingen gelinkt aan ammoniakemissies en verhoogde ammoniumnitraat- en ammoniumsulfaatconcentraties correct te berekenen. De informatie die in deze studie verkregen wordt zal ook nuttig zijn om fijn stof op korte termijn te voorspellen, (zie de procedure n.a.v. het smogalarm) met bv. het Chimere-model dat hiervoor gebruikt wordt op IRCEL.

Door de vergelijking van de gemeten en gemodelleerde concentraties nitraat werd onderzocht of de thermodynamische parameters gebruikt voor de evenwichtsberekeningen in BeEUROS mogelijk dienen verbeterd te worden.

Door de vergelijking van de gemeten en gemodelleerde concentraties zeezout is informatie beschikbaar om te beoordelen of de gebruikte emissiefuncties voor zeezout realistisch zijn en of de depositie van zeezout correct berekend wordt. De gebruikte formule om de massa zeezout te berekenen op basis van de concentraties Na en Cl werd recent herbekeken en geüpdate i.k.v. de referentietaak 2011.

De gemodelleerde concentraties water werden vergeleken met de niet-geïdentificeerde massa uit de Chemkar-metingen, waarvan verwacht wordt dat deze voor een belangrijk deel water is.

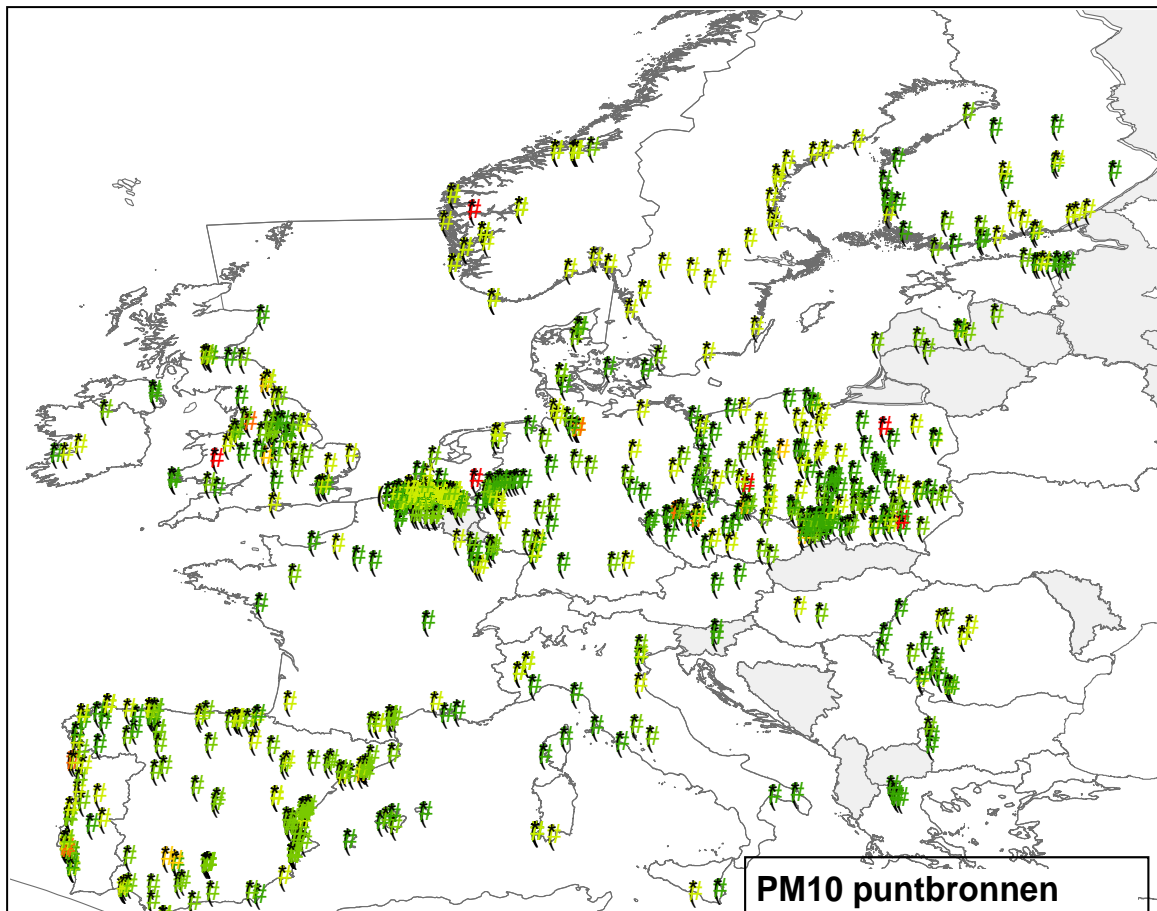
## **1.2 Updates van de BeEUROS-modelinvoer**

### ***1.2.1 Overstap naar E-MAP versie 2.0 (incl. gegevens EIL-datawarehouse)***

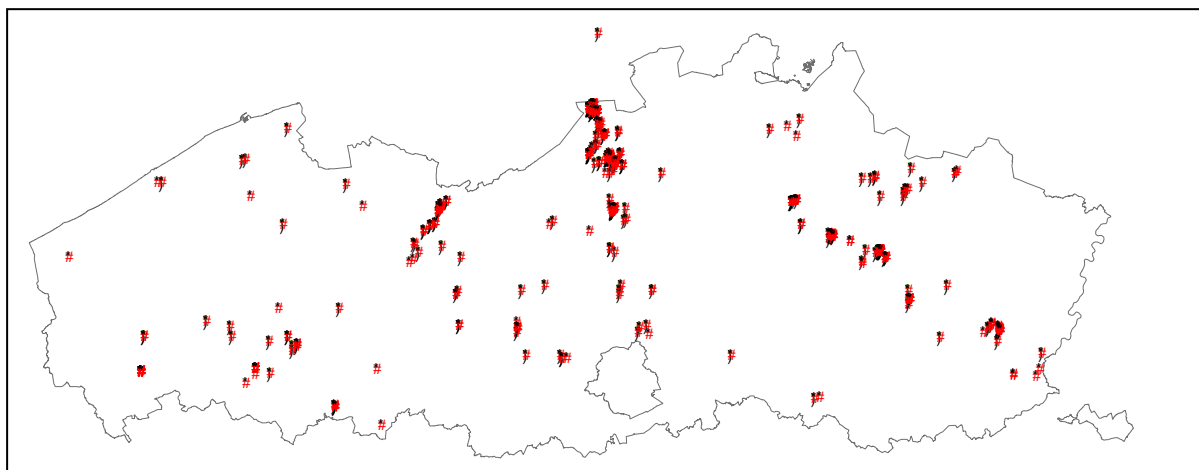
Recent kon de overstap naar E-MAP versie 2.0 voltooid worden. In deze nieuwe versie van E-MAP is de volledige datawarehouse van VMM-EIL voor industriële puntbronnen geïntegreerd. De industriële puntbronnen zijn in de datawarehouse aangegeven met hun exacte locatie, hoogte en warmte-inhoud. Er is dus geen grootschalige spreiding van “diffuse” industriële emissies over “de industriegebieden” meer nodig zonder kennis van de locatie, hoogte en warmte-inhoud van de bronnen in kwestie.

In het verleden was het ook zo dat door een gebrek aan waarden voor hoogte en warmte-inhoud van deze bronnen de emissies geloosd werden in de BeEUROS-grondlaag (de eerste 50 m van de atmosfeer), wat zeker niet altijd een realistische benadering was.

Figuur 1 en Figuur 2 tonen de  $PM_{10}$ -puntbronnen in Europa volgens de E-PRTR-databank en de  $PM_{10}$ -puntbronnen in Vlaanderen volgens de datawarehouse van VMM-EIL, zoals ze in E-MAP versie 2.0 en bijgevolg in deze studie gebruikt worden.



Figuur 1: PM10-puntbronnen in Europa: E-PRTR databank



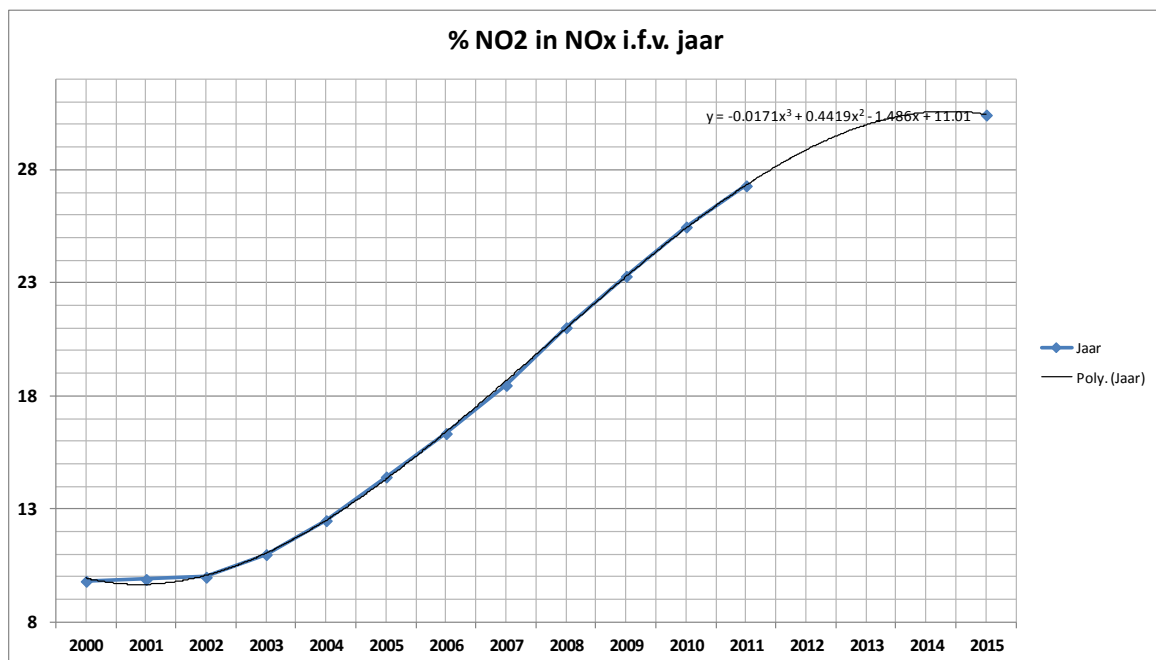
Figuur 2: PM10-puntbronnen in Vlaanderen: VMM - EIL- datawarehouse

Voor details i.v.m. de overstap naar de puntbronemissies van het datawarehouse van VMM-EIL verwijzen we naar het eindrapport van het project “Opname EIL datawarehouse in E-MAP” (Veldeman et al., 2012).

### 1.2.2 Actualisatie van de NOx-split voor het wegverkeer

In het kader van deze studie werd een actualisatie uitgevoerd van de NOx-split voor het wegverkeer. Hiervoor werden dezelfde gegevens gebruikt die ook in MIMOSA 4.2 gebruikt worden. Verschillende reeksen van gegevens staan voor verschillende jaren ter beschikking en deze reeksen werden met elkaar gecombineerd om voor zoveel mogelijk jaren over gegevens te beschikken.

Voor de jaren 2000, 2005 – 2008 werden data gebruikt van de reeks “New\_PODO\_BAS5”. Voor de jaren 2009, 2010 en 2011 werden gegevens gebruikt van de reeks “New\_FOD\_Historisch”. Voor de jaren 2001 t.e.m. 2004 werden de gegevens geïnterpoleerd. Deze oefening levert de volgende percentages NO<sub>2</sub> op van de NOx-emissies van het wegverkeer. Figuur 3 toont het verloop voor de jaren 2000 t.e.m. 2011. Het verloop van de curve voor de periode na 2011 is momenteel nog onzeker (en ook niet relevant voor deze studie). Het verloop zal vooral afhangen van de tijdstip van “invoering” van de Euro 6 standaard en de “real world emissies” die Euro 6–standaard voertuigen zullen vertonen. Het fitten van een polynoom door de punten werd hier uitgevoerd puur ter illustratie van het verloop van de curve en heeft geen achterliggende wetenschappelijke betekenis.

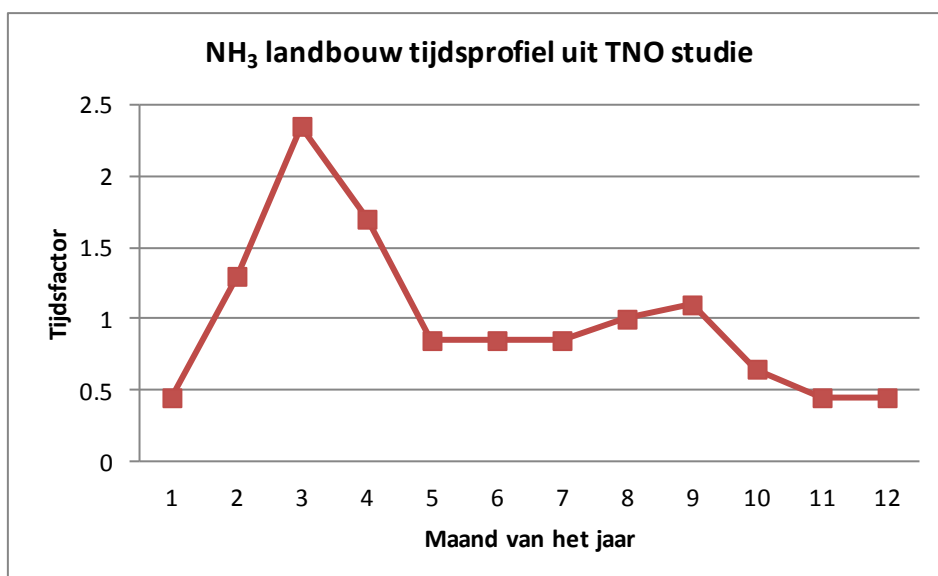


Figuur 3: Percentage NO<sub>2</sub> in de NOx-emissies van het wegverkeer in Vlaanderen in functie van het jaar

### 1.2.3 Actualisatie van het emissietijdsprofiel voor SNAP sector 10 (landbouw)

Figuur 4 toont het emissietijdsprofiel voor de verdeling van de emissies van SNAP-sector 10 (landbouw) over de maanden van het jaar zoals het tot nu toe in BelEUROS gebruikt wordt. Dit tijdsprofiel is afkomstig van een studie uitgevoerd door TNO (Bultjes et al., 2003). Dit tijdsprofiel is bijzonder belangrijk voor de tijdsafhankelijkheid van de ammoniakemissies van de sector landbouw. Het opmerkelijke aan dit tijdsprofiel is dat het de hoogste ammoniakemissies aangeeft voor de maand maart, alhoewel eigen observaties aantonen dat de hoofdbemestingsperiode en dus de hoogste ammoniakemissies eerder in de maand april vallen. Dit was dan ook de reden om een poging te ondernemen een (voor Vlaanderen) realistischer emissietijdsprofiel op te stellen.



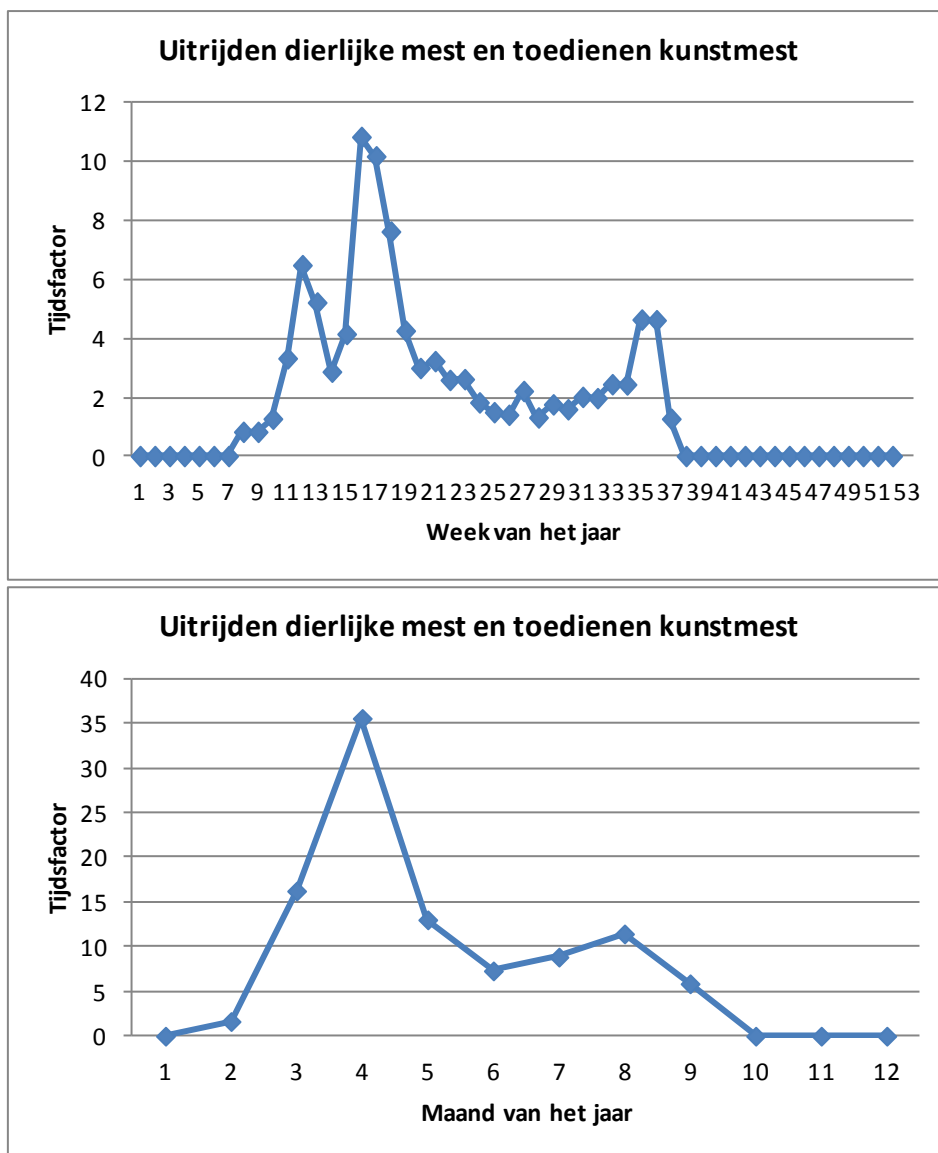


Figuur 4: Huidig emissietijdsprofiel voor de landbouwsector: Relatieve verdeling van het jaartotaal over de maanden van het jaar

In het vervolg wordt beschreven hoe de update van het tijdsprofiel voor de spreiding van de NH<sub>3</sub> emissies voorgenomen werd. In eerste instantie kijken we naar het tijdsprofiel voor emissies uit dierlijke mest en kunstmest (uitrijden van mest). Deze update werd uitgevoerd o.b.v. gegevens van Stijn Overloop (VMM-MIRA) en Annick Goossens (Mestbank), met name o.b.v. cijfers m.b.t. de transporten dierlijke mest tussen landbouwers per week voor de jaren 2009 en 2010.

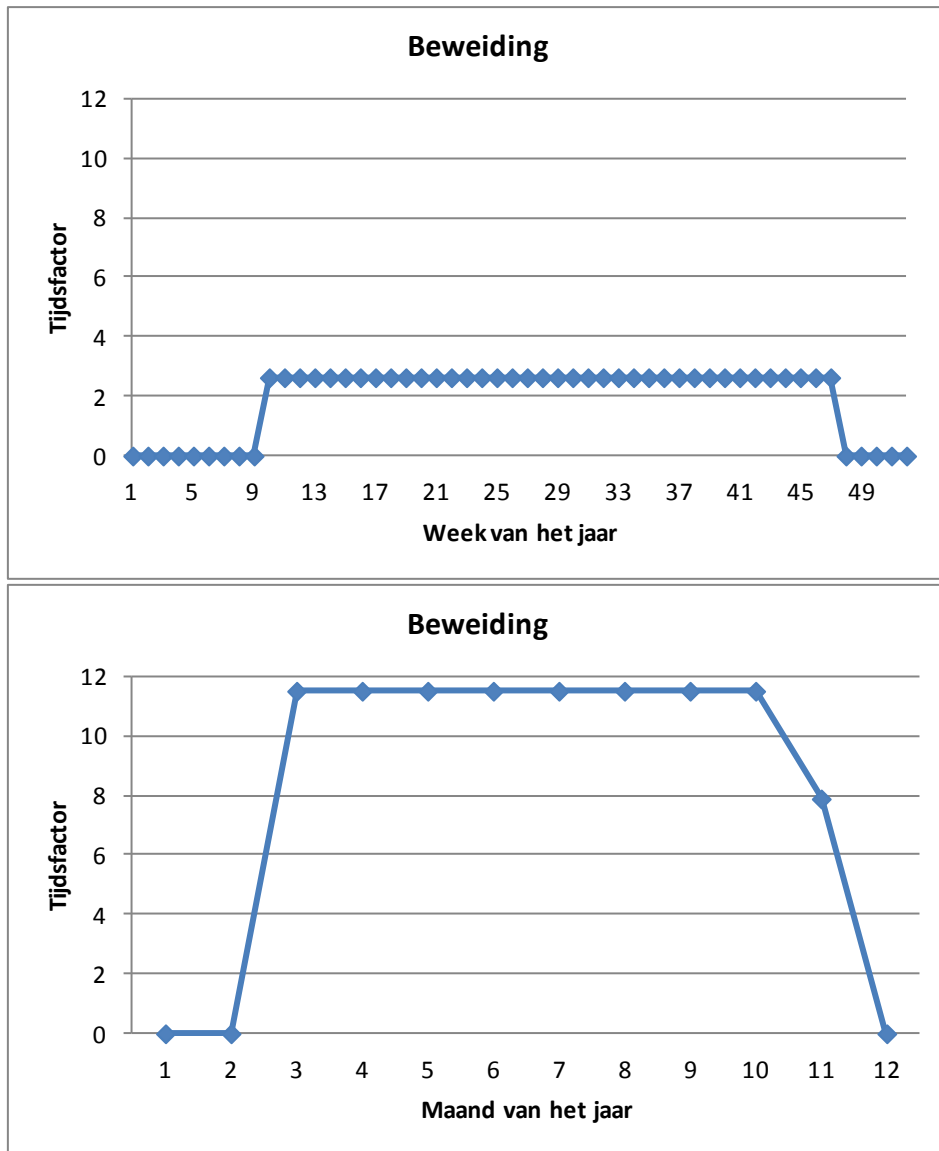
De aanname die we maken is dat voor het uitrijden van dierlijke mest en kunstmest de emissie analoog verloopt met de mesttransporten dierlijke mest tussen landbouwers. De pieken in maart en in april zijn verbonden aan de grasteelt en de maïsteelt.

Voor het gebruik in BeLEUROS dienen deze profielen echter omgerekend te worden van een profiel per week naar een profiel per maand omdat BeLEUROS alleen met een profiel per maand kan rekenen. Een aanpassing van het model in de toekomst zodanig dat ook een weekprofiel kan gebruikt worden lijkt wenselijk, zeker voor de sector landbouw. Langs de andere kant is het echter ook zo dat het "echte" emissietijdsprofiel afhangt van de meteo van het jaar en dus op weekbasis verschillend kan zijn van jaar tot jaar. Figuur 5 toont het geconstrueerde tijdsprofiel o.b.v. de wekelijkse gegevens van de mesttransporten (boven) en het geaggregeerde tijdsprofiel op maandbasis (beneden).



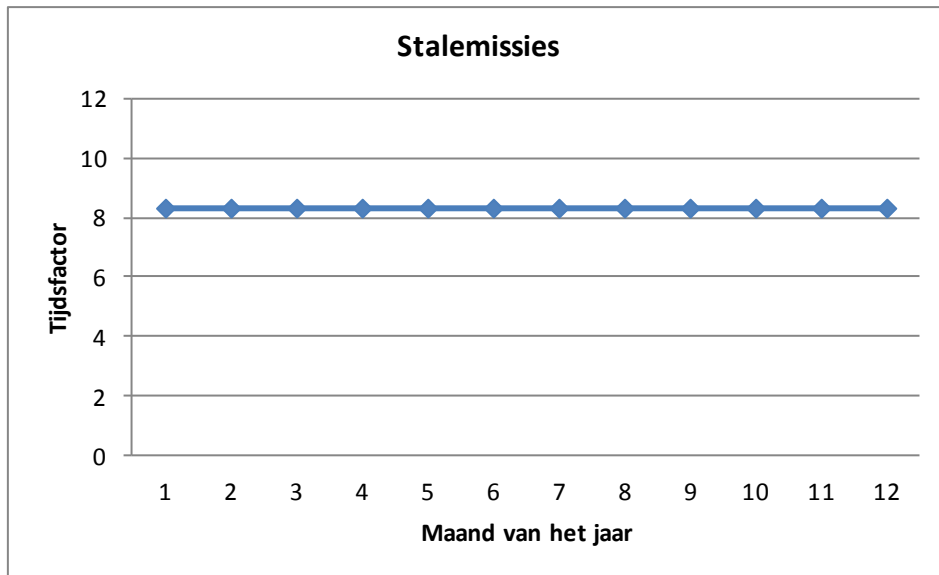
Figuur 5: Nieuw emissietijdsprofiel voor het uitrijden van dierlijke mest en toedienen van kunstmest: Profiel per week (boven) en profiel geaggregeerd per maand (beneden)

Verder nemen we aan dat de  $\text{NH}_3$ -emissies door beweiding voor 100 % optreden in de periode 1 maart tot en met 15 november. Binnen deze periode treedt de ammoniakemissie gelijkmatig op. Figuur 6 toont het emissietijdsprofiel per week (boven) en geaggregeerd per maand (beneden) voor de uitrijdemissies.



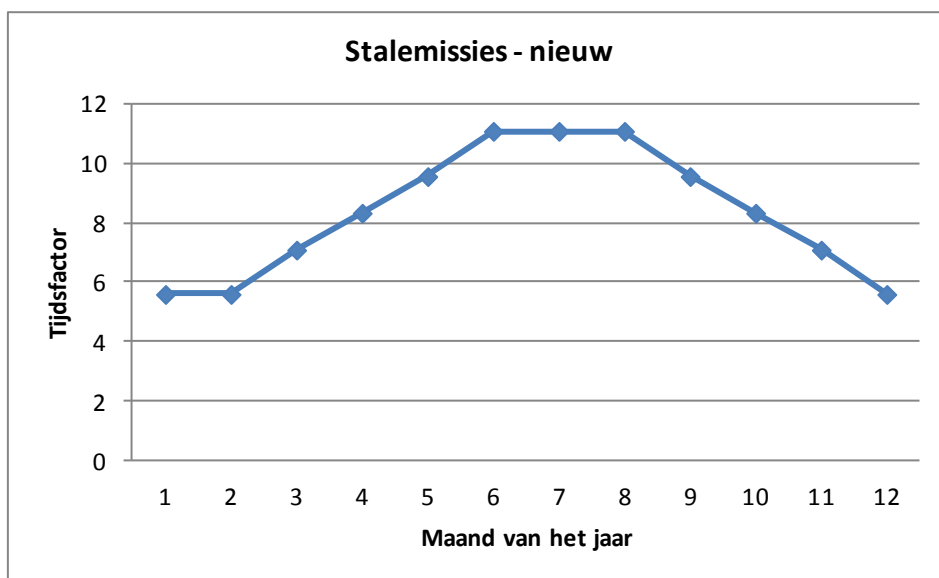
Figuur 6: Nieuw emissietijdsprofiel voor ammoniakemissies door beweiding: Profiel per week (boven) en profiel geaggregeerd per maand (beneden)

De derde belangrijke activiteit in de landbouwsector met ammoniakemissies zijn de stalemissies. Over de tijdsafhankelijkheid van de ammoniakemissies uit stallen is echter geen informatie beschikbaar. Navraag bij ILVO (via MIRA) heeft geen resultaat opgeleverd. In dit geval zou voor een gelijkmatige emissie heel het jaar door moeten geopteerd worden (Figuur 7).



Figuur 7: Tijdsprofiel van de stalemissies vóór introductie van een temperatuursafhankelijkheid

Consensus lijkt er echter te bestaan over het feit dat de ammoniakstalemissie variëren in de tijd met de buitentemperatuur. Met toenemende buitentemperatuur zouden de stalemissies toenemen. Omdat er echter geen gegevens beschikbaar zijn werd i.k.v. deze studie een poging ondernomen zelf een inschatting te maken. Figuur 8 en Tabel 1 tonen de gebruikte gegevens. Bij een gelijkmatige verdeling zou de tijdsfactor per maand een waarde van 8,33 hebben. Er werd de veronderstelling gemaakt dat de tijdsfactoren variëren tussen 5,60 in de winter en 11,08 in de zomer, hetgeen overeenkomt met maximaal 30 % hogere en 30 % lagere ammoniakemissies t.o.v. de gemiddelde waarde.



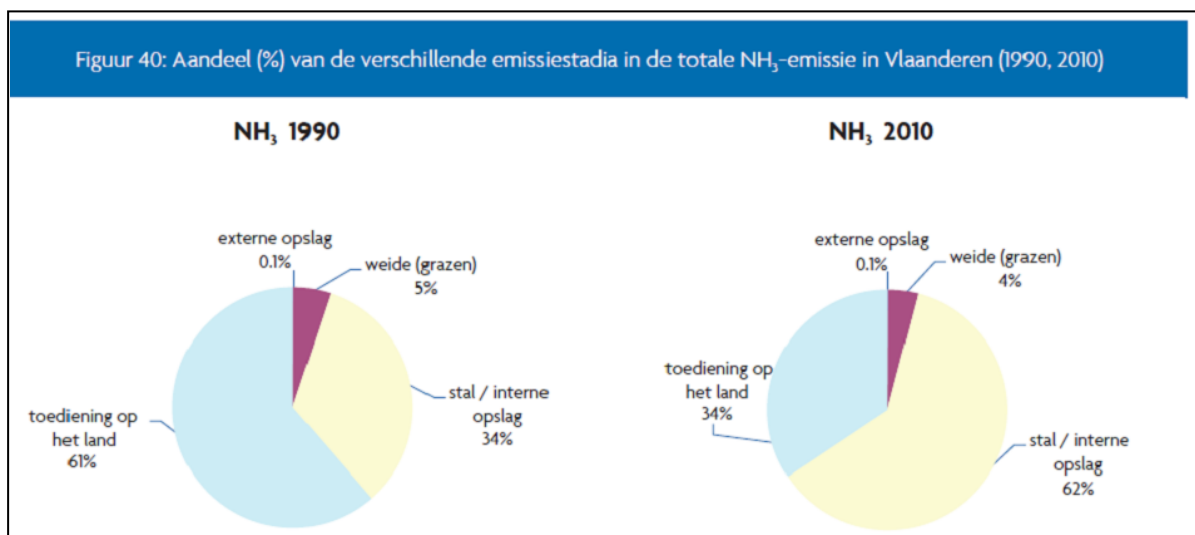
Figuur 8: Tijdsprofiel voor de stalemissies na introductie van een temperatuursafhankelijkheid

Tabel 1: Aannames gemaakt bij het opstellen van de temperatuursafhankelijkheid van het tijdsprofiel voor de ammoniak stalemissies

1	8.33	5.60	30% lager dan gemiddeld
2	8.33	5.60	30% lager dan gemiddeld
3	8.33	7.09	15 % lager dan gemiddeld
4	8.33	8.33	gemiddeld
5	8.33	9.56	15 % hoger dan gemiddeld
6	8.33	11.08	30% hoger dan gemiddeld
7	8.33	11.08	30% hoger dan gemiddeld
8	8.33	11.08	30% hoger dan gemiddeld
9	8.33	9.56	15% hoger dan gemiddeld
10	8.33	8.33	gemiddeld
11	8.33	7.09	15% lager dan gemiddeld
12	8.33	5.60	30% lager dan gemiddeld
Som	100	100	

Er werd bij de inschatting van het tijdsprofiel echter geen rekening gehouden met het feit dat het vee ofwel op stal staat ofwel op de weide. (In de emissies per activiteit werd hiermee echter wel rekening gehouden). Dit is een mogelijk aandachtspunt voor een volgende studie.

Om het totale tijdsprofiel voor de ammoniakemissies van de landbouwsector te construeren werden tenslotte de emissietijdsprofielen voor de drie aparte activiteiten (uitrijden van mest, beweiding en stallen) gewogen met hun bijdrage aan de totale emissies en de drie gewogen tijdsprofielen opgeteld. Figuur 9 toont de verdeling van de ammoniakemissies van de landbouwsector voor het jaar 2010 (VMM, 2012).

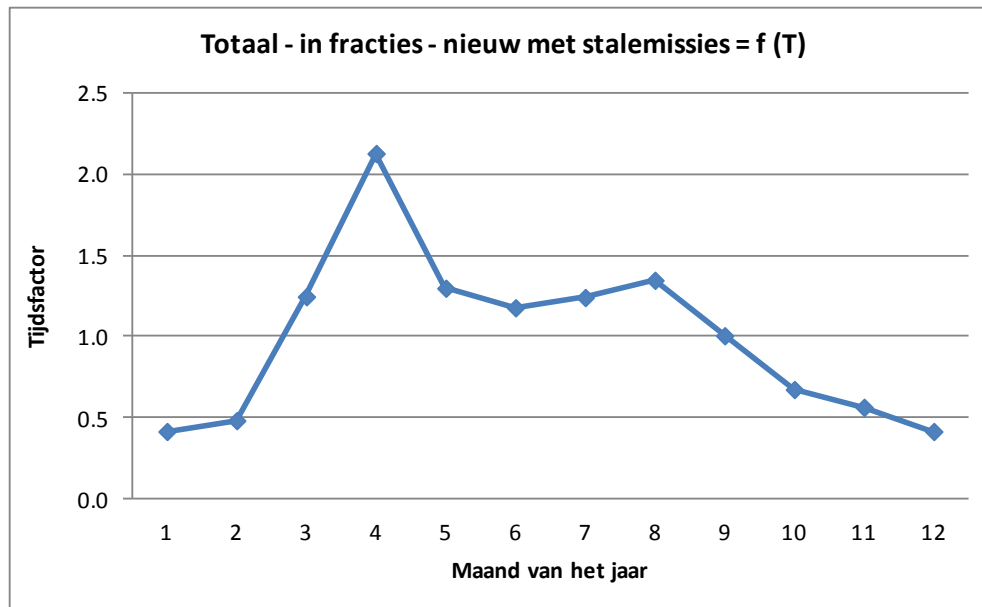


Figuur 9: Aandeel van de verschillende activiteiten aan de totale ammoniakemissies van de landbouwsector (VMM, 2012)

Het totaalprofiel werd geconstrueerd uit de drie aparte tijdsprofielen waarbij de volgende verdeling gebruikt werd:

- » Beweiding: 4 %
- » Uitrijden: 34 %
- » Stalemissies: 62 %

Figuur 10 toont het geconstrueerde tijdsprofiel met de aanname over de temperatuursafhankelijkheid van de stalemissies. Tabel 2 toont de emissietijdsfactoren van het nieuwe tijdsprofiel. Dit tijdsprofiel toont zoals verwacht de hoogste ammoniakemissie voor de maand april.



Figuur 10: Nieuw emissietijdsprofiel geconstrueerd uit de tijdsprofielen voor het mestuitrijden, beweiding en stalemissies (temperatuursafhankelijk)

Tabel 2: Overzicht van de tijdsfactoren (verdeling over de maanden van het jaar) voor de sector landbouw

Maand	Tijdsfactor
1	0.42
2	0.48
3	1.25
4	2.13
5	1.30
6	1.18
7	1.24
8	1.35
9	1.01
10	0.68
11	0.57
12	0.42

#### 1.2.4 Correctie fout in emissietijdsprofiel voor SNAP-sector 4 (industriële productieprocessen)

In het kader van de actualisatie van het emissietijdsprofiel voor de landbouwsector werd ook een klein foutje rechtgezet in het emissietijdsprofiel van SNAP-sector 4 (industriële productieprocessen). Dit tijdsprofiel werd in het kader van de uitbreiding van BelEUROS naar de 10 SNAP-sectoren overgenomen uit een studie van TNO (Bultjes et al., 2003) waarbij dit foutje niet opgemerkt werd. Het foutje bestond erin dat tot nu toe niet de volledige emissie toegewezen aan deze sector in het model ingebracht werd maar een kleine fractie (minder dan 1 %) niet verdeeld werd. De gemiddelde waarde van alle tijdsfactoren dient een waarde van 1 te hebben. Dit is nu rechtgezet.

### **1.2.5 Actualisatie van de ozon randvoorwaarden o.b.v. meetwaarden Mace Head**

Tijdens de berekeningen uitgevoerd voor de Milieuverkenning 2030 was er een discussie ontstaan m.b.t. de manier hoe de ozonconcentraties aan de randen van het BelEUROS-modelgrid voor een langere tijdsreeks (2007 t.e.m. 2030 in de Milieuverkenning) best voorgesteld moeten worden. Met name kon de vraag of de ozonconcentraties over deze periode al dan niet zullen toenemen niet definitief uitgeklaard worden. Een van de problemen was namelijk dat er in de meeste studies geen verschil gemaakt wordt tussen een “achtergrondconcentratie” in Europa en de ozonconcentratie boven het Atlantische Oceaan, hetgeen BelEUROS eigenlijk nodig heeft als randvoorwaarden. Uiteindelijk werd in de Milieuverkenning rekening gehouden met een toename van de “ozonachtergrondconcentratie” over deze periode. Aanvullend werden er echter ook berekeningen uitgevoerd zonder deze toename, dus met constante ozonrandvoorwaarden.

In het kader van deze studie werd de beschikbare literatuur met betrekking tot dit onderwerp geraadpleegd. In de studie van Derwent et al. (2007) worden ozonmetingen uitgevoerd in het meetstation van Mace Head aan de Ierse westkust. De auteurs hebben een analyse uitgevoerd van de ozonconcentraties in functie van de windrichting. In de periode 2000 – 2006 lag de gemiddelde ozonconcentratie bij aanvoer van Atlantische oceaanlucht vanuit het westen constant bij een waarde van  $81,4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Deze waarde wordt dan ook gebruikt als randvoorwaarde aan de westkant van het BelEUROS domein.

Omdat de ozonconcentratie (in BelEUROS) echter afhankelijk is van zowel de geografische breedtegraad alsook van de seizoenen van het jaar werd teruggerepen op de in BelEUROS aanwezige functie voor de ozonrandvoorwaarden. Bij een “maximale” boundary condition in BelEUROS van  $108 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , een jaargemiddelde factor voor de verdeling over de maanden voor 0,820 en een factor van 0,915 voor de breedtegraad van Mace Head (gelegen op  $53,3^\circ\text{N}$ ) komen we uiteindelijk voor de breedtegraad van Mace Head op een jaargemiddelde ozonconcentratie van  $81,0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , wat goed aansluit bij de waargenomen ozonconcentratie in Derwent et al. (2007).

Na de modeloptimalisatie van BelEUROS wordt dus geen toename meer veronderstelt van de ozon achtergrondconcentratie (in tegenstelling tot de Milieuverkenning 2030).

## **1.3 Overzicht van de meetcampagnes en de gevalideerde componenten**

### **1.3.1 De Chemkar II- en Chemkar III-meetcampagnes**

De Chemkar II-meetcampagne werd uitgevoerd tussen 25/10/2008 en 07/11/2009. Bemonsteringen vonden hierbij plaats op de volgende locaties: Moerkerke, Aarschot, Roeselare, Oostrozebeke, Zwevegem, Evergem, Zwijndrecht, Retie en Borgerhout.

Chemkar III vond plaats tussen 07/02/2010 en 06/02/2011. De bepaling van EC en OC werd uitgevoerd op de stations Hamme, Gent, Houtem, Mechelen, Lier en Borgerhout. Bijkomend werden “volledige” chemische analyses uitgevoerd van stalen genomen aan de stations in Retie, Berendrecht, Luchtbal en Borgerhout.

De volgende chemische componenten werden bepaald:

- Elementair koolstof (EC) en organisch koolstof (OC); de totale organische massa (OM) van  $PM_{10}$  (waarbij rekening gehouden wordt met de andere chemische elementen naast koolstof zoals zuurstof, stikstof) wordt bepaald via de formule  $OM = 1,4 * OC$ . Deze relatie is eigenlijk van toepassing voor fijn stof dicht bij de emissiebronnen. Naargelang het fijn stof langer in de atmosfeer verblijft worden de organische componenten meer en meer geoxideerd waardoor hun massa toeneemt. Verder weg van de bronnen worden relaties gevonden van  $OM = 1,6 * OC$  tot zelfs  $OM = 2 * OC$ . Hiermee dient in principe rekening gehouden te worden bij de modelvalidatie (zowel voor de "correctie" van de OC metingen alsook voor een correctie van de modelresultaten. Hoe deze factoren echter in de praktijk zou moeten toegepast worden op de meet- en modelresultaten is momenteel niet duidelijk. Hiermee werd dan ook geen rekening gehouden.
- Ammonium, Nitraat en Sulfaat.
- Primaire anorganische componenten of "mineraal stof" genoemd. De uitdrukking "bodemstof" is niet correct omdat in deze fractie ook niet-bodemstof zit, bijvoorbeeld aerosolen afkomstig van verbrandingsprocessen (vaak aluminium-, ijzer- en silicium-oxiden), slijtage van wegen ...

Het mineraal stof wordt bepaald uit de concentraties van verschillende anorganische elementen:  
 $Mineraal\ stof = 2.2 * Al + 2.49 * Si + 1.63 * Ca + 2.42 * Fe + 1.94 * Ti$ .

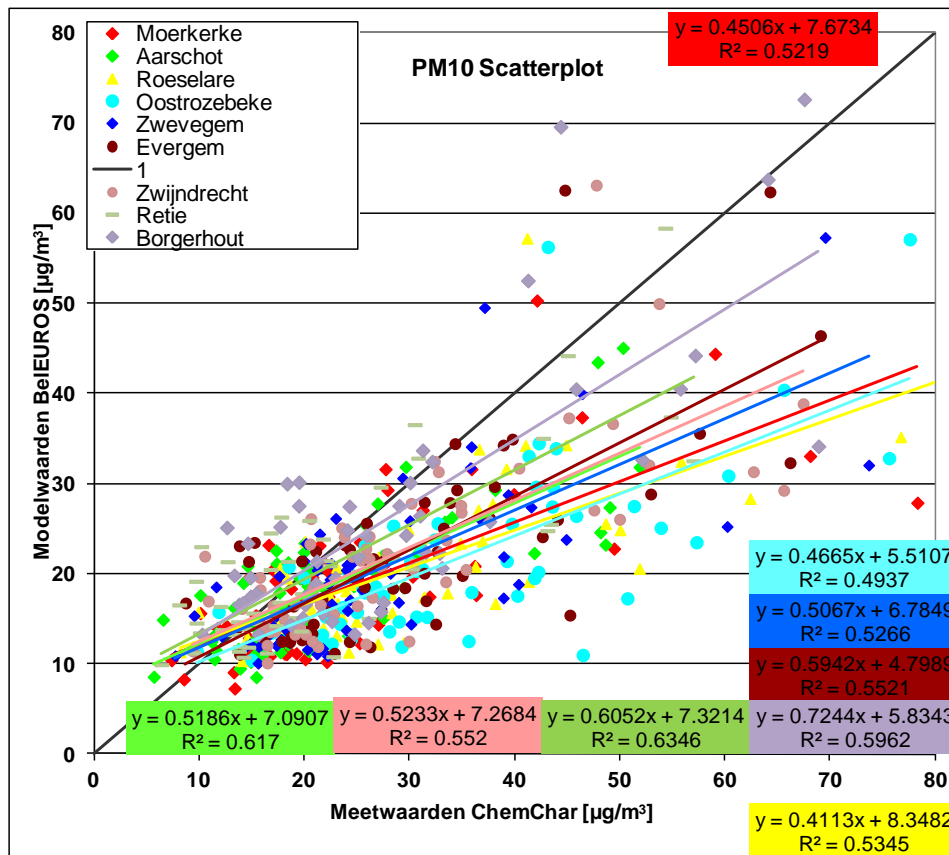
- Zeezout =  $1,45 * Na + Cl$
- "Rest" =  $PM_{10} - EC - 1,4 * OC - \text{mineraal stof} - \text{ammonium} - \text{nitraat} - \text{nssSO}_4 - \text{nssK} - \text{zeezout}$ . Niet-zeezout-sulfaat en niet-zeezout-kalium werden in de recente Chemkar campagne niet meer apart berekend en zitten dus ook bij de "restfractie".

## 1.4 Vergelijking van de gemodelleerde en gemeten chemische componenten voor Chemkar II en Chemkar III - Modelvalidatie

### 1.4.1 $PM_{10}$

Figuur 11 toont de scatterplot van de daggemiddelde  $PM_{10}$ -concentraties voor de 9 meetstations van de Chemkar II-campagne. Hier wordt de vergelijking gemaakt tussen de gemeten  $PM_{10}$ -concentraties en de som van de gemodelleerde chemische componenten. Het wordt duidelijk dat het model de metingen (zoals verwacht) onderschat. De onderschatting wordt in het algemeen groter met toenemende gemeten  $PM_{10}$ -concentratie. Voor de laagste gemeten  $PM_{10}$ -concentraties overschat het model echter zelfs de metingen. Het valt verder op dat de onderschatting het grootst is in de typische Hotspotlocaties zoals Roeselare en Oostrozebeke en dat deze veel kleiner is in Borgerhout en Retie. Het zou kunnen dat dit te maken heeft met de "volledigheid" van de fijn stof emissie-inventaris voor een bepaalde regio. Bijvoorbeeld wordt opwaaiend mineraal stof door wegverkeer hoogstwaarschijnlijk onderschat in de huidige fijn stof emissie-inventaris. Het kan aangenomen worden dat deze bijdrage in Borgerhout significant hoger zal zijn dan in alle andere bestudeerde locaties. Een tweede belangrijke aandachtspunt is de modelresolutie (7,5 km) ten opzichte van de representativiteit van de gemeten concentraties op een bepaalde locatie voor de ruimere omgeving van het meetstation. Het model berekent altijd een gemiddelde concentratie voor (in dit geval) een gridcel van 7,5 x 7,5 km oppervlakte. (In deze gridcel bevindt zich in feite een groot deel van Antwerpen.) De metingen worden uitgevoerd op een bepaalde locatie en de meetwaarde is strikt genomen alleen geldig voor het meetpunt zelf. Bij aanwezigheid van belangrijke lokale emissiebronnen moet er rekening gehouden worden met mogelijks belangrijke gradiënten in de pollutentconcentraties in de omgeving van de meetlocatie.

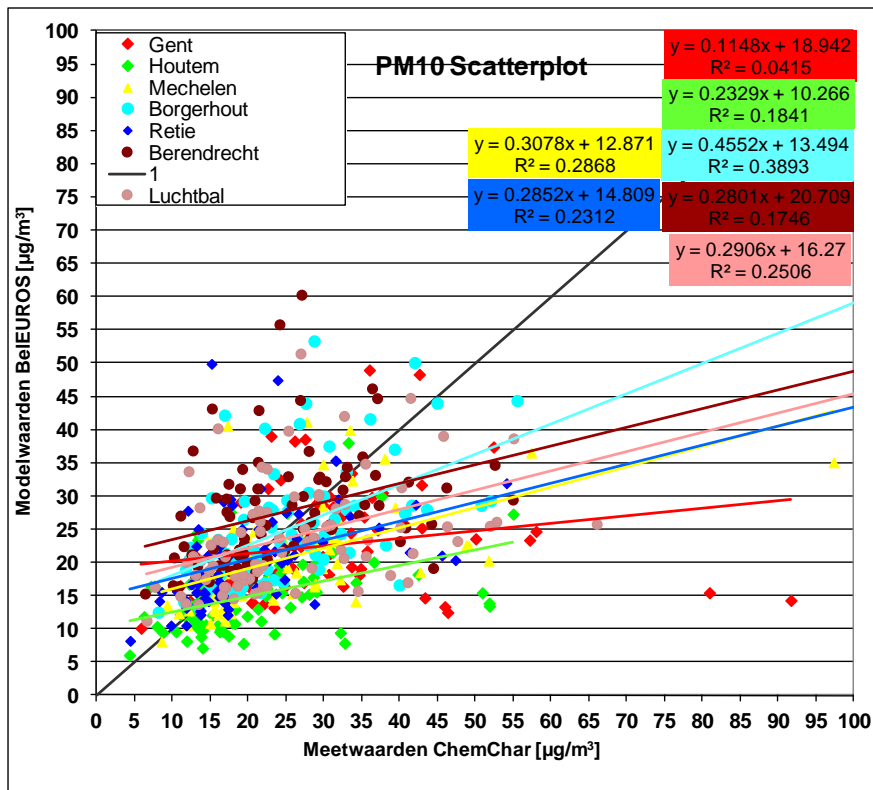




Figuur 11: Scatterplot voor PM<sub>10</sub> – Chemkar II

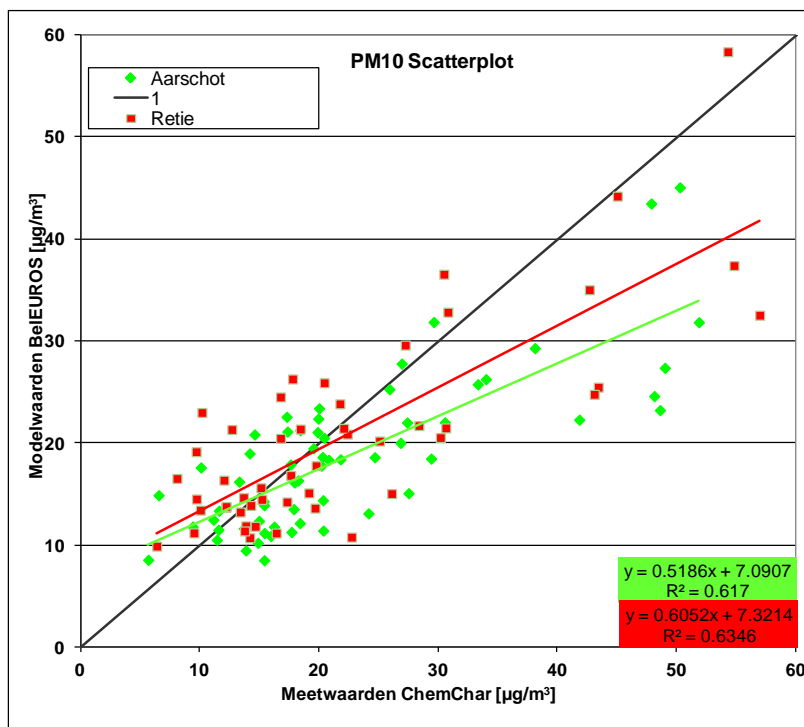
Figuur 12 toont de scatterplot voor de Chemkar III-meetcampagne. De verdeling van de gemeten PM<sub>10</sub>-concentraties over het hele concentratiebereik is verschillend voor Chemkar II en Chemkar III. In Chemkar II werd een relatief geleidelijk verloop van de concentraties vastgesteld met de meeste waarden gelegen tussen 20 en 80 µg/m<sup>3</sup>. In Chemkar III lagen de meeste waarnemingen bij waarden t.e.m. 55 µg/m<sup>3</sup> en er waren enkele bijkomende zeer hoge metingen met waarden van boven 100 µg/m<sup>3</sup>.

De modelwaarden vertonen een grotere spreiding dan bij de Chemkar II-campagne, maar er is al bij al veel minder sprake van een systematische onderschatting van de PM<sub>10</sub>-concentraties t.o.v. Chemkar II voor wat betreft de gemeten concentraties t.e.m. ongeveer 40 µg/m<sup>3</sup>. De hogere gemeten PM<sub>10</sub>-concentraties worden daarentegen ook bij Chemkar III in belangrijke mate onderschat door het model. Voor de twee meetlocaties die in beide meetcampagnes aan bod kwamen (Borgerhout en Retie) zijn de modelresultaten ongeveer vergelijkbaar.



Figuur 12: Scatterplot PM<sub>10</sub> – Chemkar III

Figuur 13 toont de scatterplot van de daggemiddelde PM<sub>10</sub>-concentraties van Chemkar II voor twee “achtergrondmeetstations”, namelijk voor Aarschot en Retie. Het model slaagt er toch in om de gemeten PM<sub>10</sub>-concentraties t.e.m. een concentratie van ongeveer 40 µg/m<sup>3</sup> goed te reproduceren. Alleen de hoge PM<sub>10</sub>-metingen worden systematisch onderschat.



Figuur 13: PM<sub>10</sub> in Aarschot en Retie – Chemkar II

### 1.4.2 Elementair koolstof (EC)

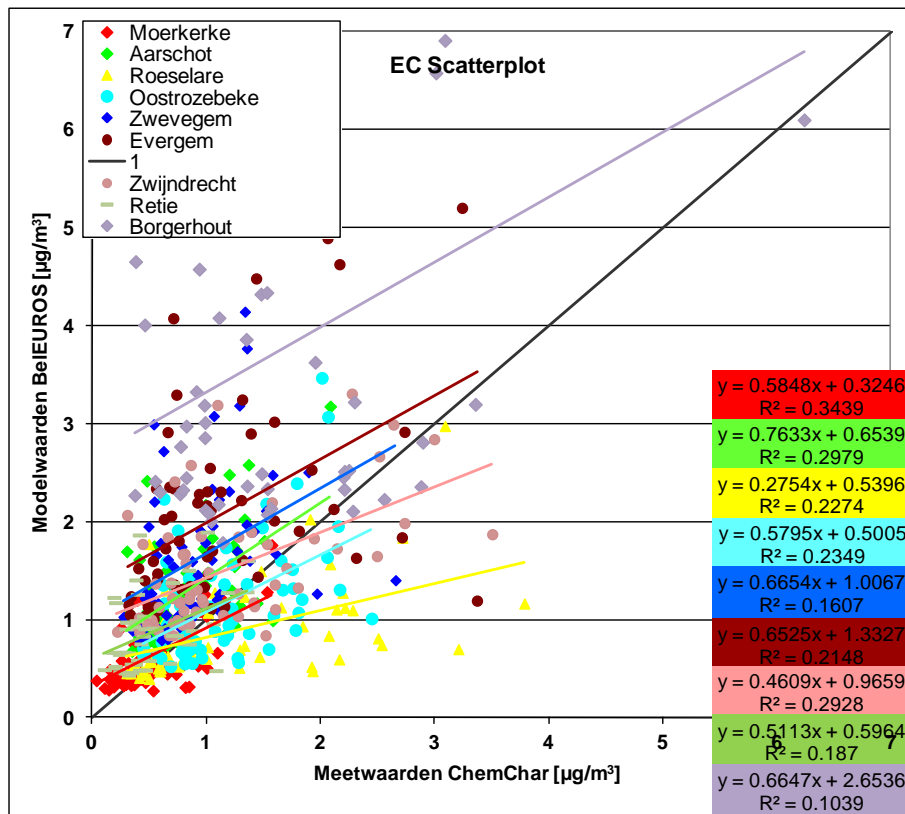
Figuur 14 toont de scatterplot van de daggemiddelde EC-metingen en modelwaarden van de Chemkar II-campagne. Het valt op dat de lage gemeten EC-concentraties voor alle meetstations sterk overschat worden door het model, voor de stations Borgerhout, Evergem en Zwevegem is dit zelfs het geval voor alle EC-metingen, ook de hoge waarden. Dezelfde trend tot overschattingen van de gemeten EC-concentraties werd ook in een vorige BeEUROS-validatiestudie (2009) teruggevonden, vooral voor Borgerhout is echter de overschatting in deze studie opmerkelijk hoog.

De gebruikte EC/OC-split speelt uiteraard een rol. De berekeningen getoond in Figuur 14 werden uitgevoerd op basis van de CEPMEIP-split (Schaap et al., 2004). In het kader van het LIFE+-project ATMOSYS werd recent een Vlaamse EC-emissie-inventaris opgemaakt met een fractie EC van de PM<sub>2,5</sub>-emissies per VLEM45-sector, zoals gebruikt in het VLOPS-model. Deze emissie-inventaris kan terug geaggregeerd worden naar een fractie EC per SNAP-sector, zoals gebruikt in BeEUROS.

De resulterende fractie EC aan de PM<sub>2,5</sub>-emissies werd gebruikt voor de berekening getoond in Figuur 15. Alleen kleine verschillen worden teruggevonden t.o.v. de berekening met de CEPMEIP-split, alhoewel in de fracties EC per SNAP-sector beide splits voor een aantal sectoren zeer verschillend zijn van elkaar (Tabel 3).

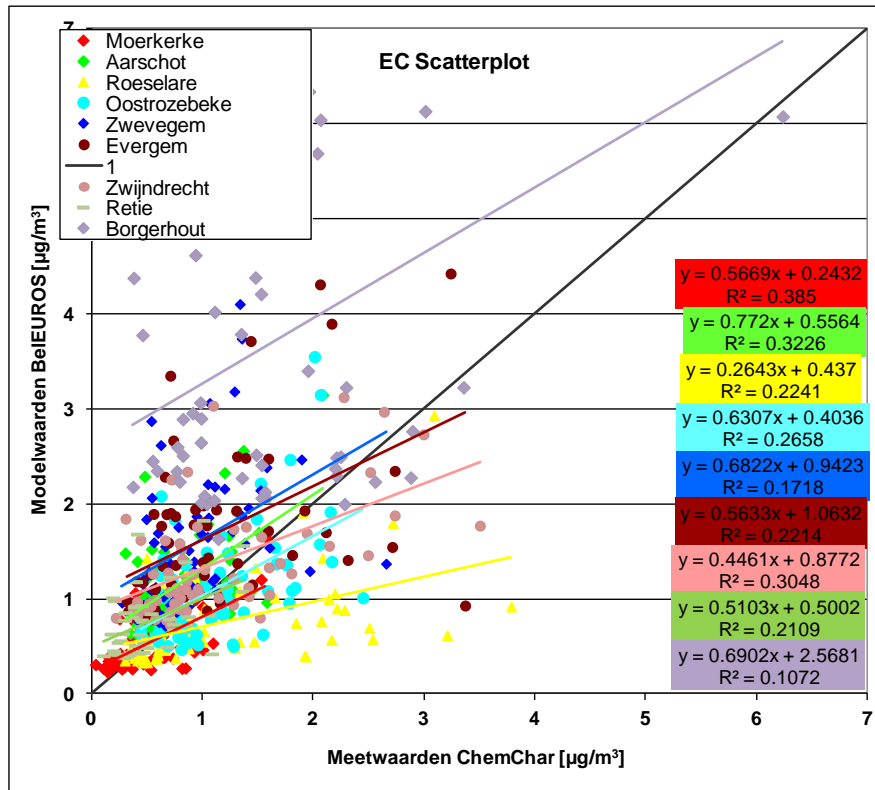
Tabel 3: Vergelijking van de fracties EC in de PM<sub>2,5</sub>-emissies volgens CEPMEIP (Schaap et al., 2004) en de ATMOSYS EC-emissie-inventaris

SNAP sector	Beschrijving	fractie EC - ATMOSYS split	fractie EC - CEPMEIP split
1	energieopwekking	0.12	0.11
2	huishoudens	0.29	0.21
3	verbrandingsprocessen in de industrie	0.13	0.25
4	productieprocessen in de industrie	0.12	0
5	extractie van fossiele brandstoffen	0.07	0.85
6	gebruik van solventen	0	0
7	wegverkeer	0.54	0.48
8	offroad transport	0.29	0.52
9	afvalverwerking	0.35	0.004
10	landbouw	0	0.17



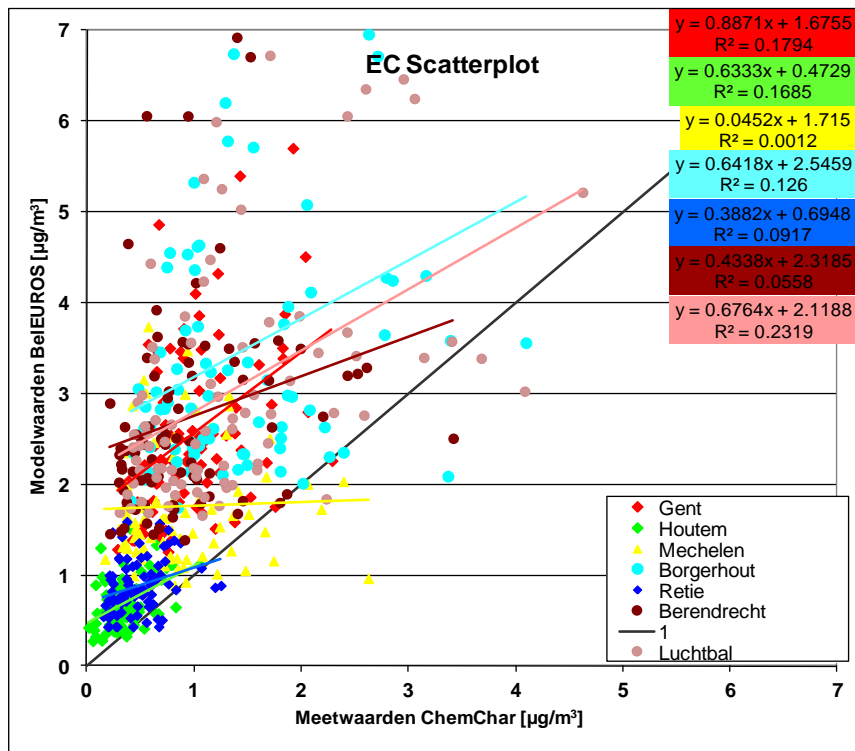
Figuur 14: Scatterplot EC bij gebruik van de CEPMEIP EC-split (Chemkar II)

Een aandachtspunt bij de componenten EC en OC blijft de onzekerheid bij de inschatting van de fracties EC en OC van de  $\text{PM}_{2,5}$ -emissies en de relatie tussen deze fracties en het gebruikte meetprotocol voor de EC/OC-metingen (cfr. NIOSH-protocol vs. EUSAAR-protocol). Afhankelijk van het toegepaste meetprotocol wordt de grens tussen EC en OC gedefinieerd en deze grens komt mogelijks niet overeen met de grens gebruikt bij het opstellen van de fracties EC en OC in de  $\text{PM}_{2,5}$ -emissies. Dit zou onvermijdelijk tot een overschatting van de ene component (bv. EC) en een onderschatting van de andere component (bv. OC) door het model leiden.



Figuur 15: Scatterplot EC bij gebruik van de ATMOSYS EC-split (Chemkar II)

Figuur 16 toont de EC-scatterplot voor de Chemkar III-campagne bij gebruik van de CEPMEIP-split. Het wordt duidelijk dat de overschatting van de waargenomen EC-concentraties door het model nog groter is voor de Chemkar III-campagne dan voor Chemkar II. Voor Chemkar III liggen bijna alle datapunten boven de ideale 1:1-lijn. Ook hier is de overschatting voor Borgerhout het grootst.



Figuur 16: Scatterplot EC bij gebruik van de CEPMEIP EC-split (Chemkar III)

Een verschil tussen de berekeningen uitgevoerd i.k.v. de BeEUROS validatiestudie in 2009 en de berekeningen uitgevoerd in deze studie ligt echter in de toegepaste modelresolutie. De BeEUROS-validatiestudie 2009 werd uitgevoerd gebruikmakend van de standaard-BeEUROS resolutie van 15 km, terwijl de berekeningen in deze studie met een resolutie van 7,5 km uitgevoerd werden. Het kan niet volledig uitgesloten worden dat zich er omwille van deze (voor BeEUROS) hoge resolutie nog problemen voordoen in het model, mogelijks bij het gebruik van de meteogegevens (mogelijks de menglaaghoogte) voor het tot op deze hoge resolutie verfijnd grid.

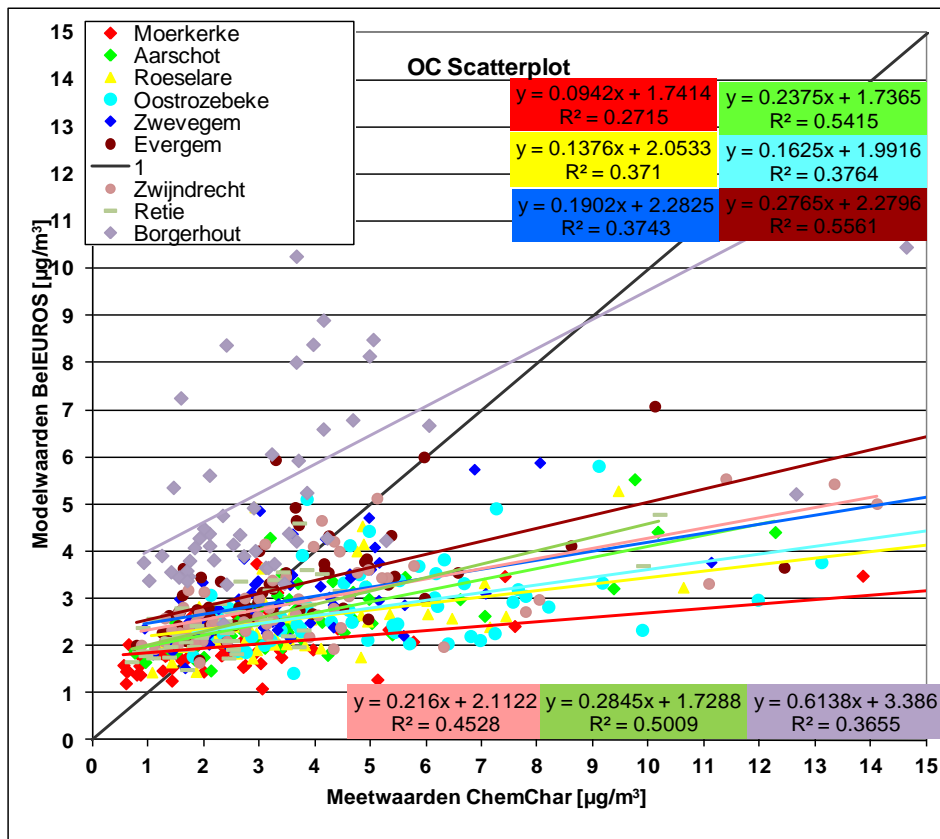
Om dit na te gaan werd een berekening uitgevoerd, gebruikmakend van dezelfde split, maar op een gridresolutie van 15 km i.p.v. 7,5 km. Een andere mogelijkheid is dat de randvoorwaarden voor EC zoals gebruikt in BeEUROS te hoog zijn. Deze bedragen  $0,1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ,  $0,4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ,  $0,6 \mu\text{g}/\text{m}^3$  en  $0,1 \mu\text{g}/\text{m}^3$  voor de noordelijke, oostelijke, zuidelijke en westelijke rand van het modeldomein. Deze waarden lijken niet overdreven hoog te zijn en kunnen dus niet rechtstreeks de oorzaak zijn van de vastgestelde overschattingen.

#### **1.4.3 Primair Organisch koolstof (POC) en Primaire Organische Massa (POM)**

Figuur 17 toont een scatterplot van de daggemiddelde gemeten en gemodelleerde concentraties van primair organisch koolstof. Meestal worden de waargenomen concentraties OC onderschat door het model, vooral de middelhoge en hogere concentraties. Algemeen is ook de helling van de trendlijn veel te laag met waarden tussen 0,1 en 0,3. Alleen het meetstation in Borgerhout springt ook hier terug uit met een helling van 0,6.

Een conclusie hiervan zou kunnen zijn dat ofwel de gebruikte EC/OC/Mineraal stof-split niet klopt of dat, ten minste wat het stuk EC/OC betreft, de manier hoe de split opgesteld is niet overeenkomt met de manier waarop de metingen uitgevoerd worden (cfr. de verschillende EC meetprotocollen zoals EUSAAR en NIOSH, waarin telkens de split tussen EC en OC iets anders ligt). In NIOSH komt het gemeten EC overeen met “zwarte koolstof” (hierbij wordt eerder een lage concentratie EC verkregen), terwijl met het EUSAAR-protocol eerder de som van “zwarte” en “bruine” koolstof bepaald wordt (en de EC-concentratie bijgevolg hoger ligt).

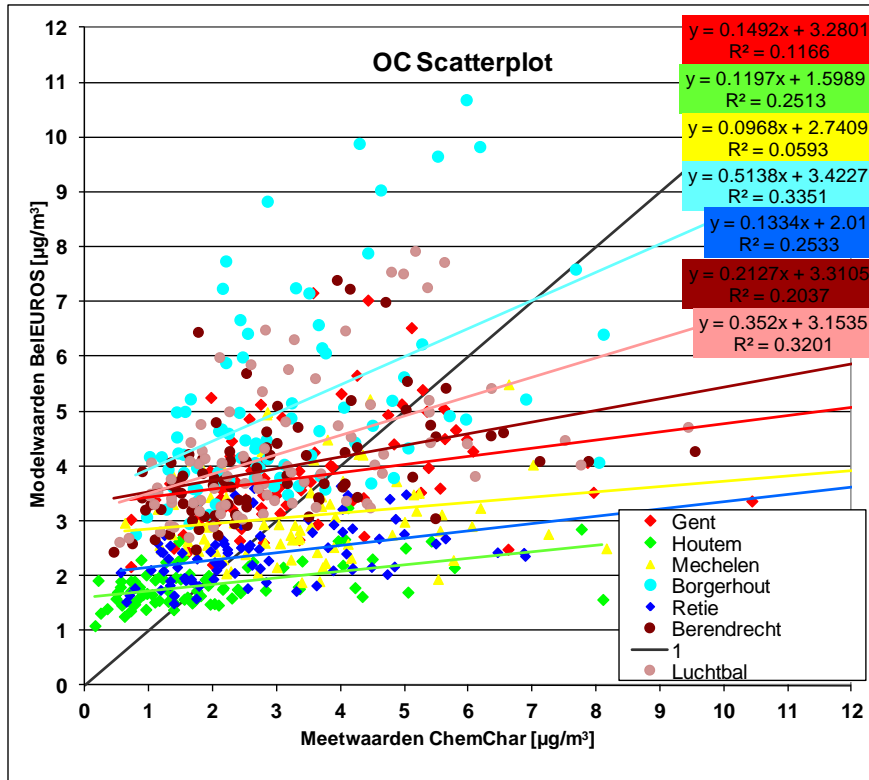
Eventueel zou een veel sterkere aanpassing van de EC/OC-split nodig zijn om een significant effect te zien op de gemodelleerde EC- en OC-concentraties. Het is echter momenteel onduidelijk op welke basis zo'n aanpassing van de EC/OC-split zou moeten uitgevoerd worden.



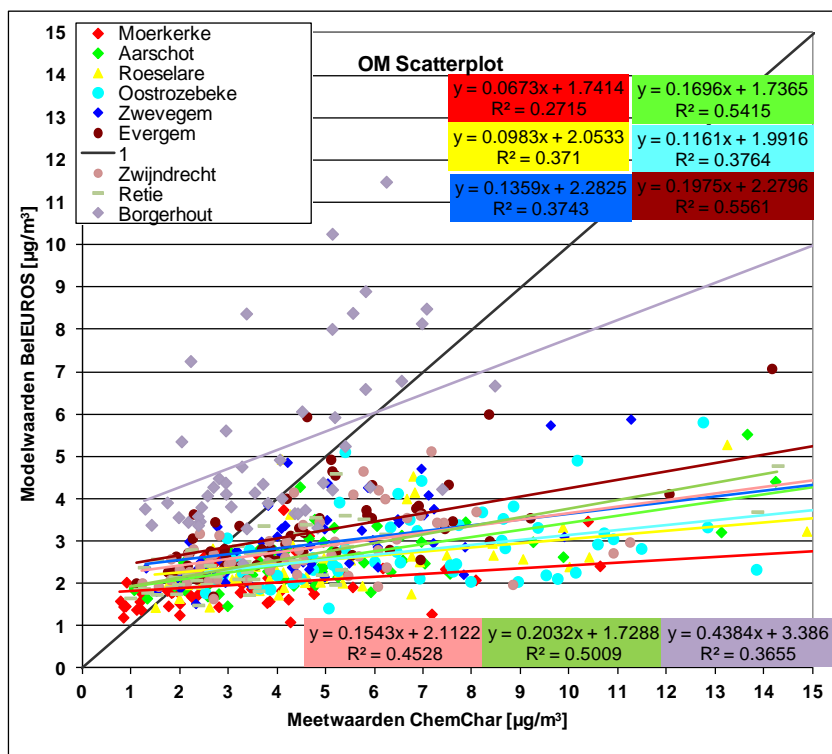
Figuur 17: Scatterplot voor de primaire organische componenten (POC, Chemkar II)

Figuur 18 toont de scatterplot voor OC voor de Chemkar III-campagne. Ook voor OC zien we terug een toch iets ander gedrag van het model t.o.v. de Chemkar II-campagne. In Chemkar III is het verschil tussen het station in Borgerhout en de andere meetlocaties niet zo groot en we kunnen ook niet van een algemene en systematische onderschatting door het model spreken. Eerder worden de dagen met lage OC-concentraties duidelijk overschat door het model en de dagen met hoge OC -concentraties worden eerder onderschat. Het is niet geheel duidelijk hoe deze systematische verschillen tussen de Chemkar II- en de Chemkar III-campagne verklaard moeten worden, wat niet alleen voor OC geldt maar ook voor andere componenten.

Figuur 19 toont de scatterplot voor OM (organisch materiaal), dus wanneer we ook rekening houden met het feit dat in de metingen alleen (organisch) koolstof gemeten wordt terwijl in het fijn stof ook andere elementen aanwezig zijn, bijvoorbeeld zuurstof en stikstof. Het is wel de bedoeling dat het model de volledige fractie organische componenten inschat, gezien anders de som van de chemische subcomponenten sowieso de totale PM<sub>10</sub>-concentratie onderschat. Houden we dus rekening met een factor van 1,4 tussen OC en OM zo worden de onderschattingen voor de Chemkar II-campagne uiteraard alleen maar nog groter. Alleen voor het meetstation te Borgerhout worden de OM-concentraties eerder overschat dan onderschat.



Figuur 18: Scatterplot voor de primaire organische componenten (POC, Chemkar III)



Figuur 19: Scatterplot voor POM (= 1,4\*OC) voor de Chemkar II-campagne



#### 1.4.4 Primaire anorganische componenten (Mineraal stof)

Figuur 20 toont de scatterplot voor Mineraal stof voor de Chemkar II-campagne. In tegenstelling tot de Chemkar I-campagne werd in Chemkar II en III geen silicium meer bepaald, waardoor de formule voor de berekening van de minerale fractie fijn stof niet meer rechtstreeks kan toegepast worden.

$$\text{Mineraal stof} = 2.2 * \text{Al} + 2.49 * \text{Si} + 1.63 * \text{Ca} + 2.42 * \text{Fe} + 1.94 * \text{Ti}$$

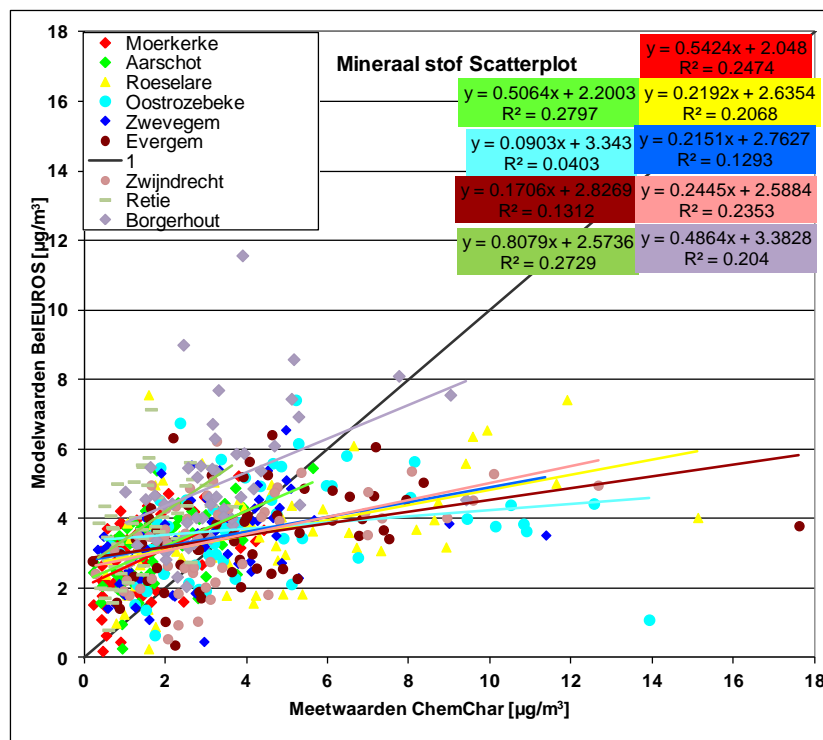
We weten echter uit metingen dat de gemiddelde ratio tussen Si en Al 3,42 bedraagt ( $\text{Si} = 3,42 * \text{Al}$ ). We kunnen dus de formule zodanig aanpassen dat we de concentratie silicium niet nodig hebben:

$$\text{Mineraal stof} = 2.2 * \text{Al} + 2.49 * 3.42 * \text{Al} + 1.63 * \text{Ca} + 2.42 * \text{Fe} + 1.94 * \text{Ti}$$

Deze formule werd gebruikt om de concentraties mineraal stof uit de gemeten concentraties van de elementen te berekenen.

De vergelijking van gemeten en gemodelleerde concentraties mineraal stof toont aan dat ook voor deze component de helling van de trendlijn te laag is. De lage gemeten concentraties worden overschat door het model en de hoge gemeten concentraties worden onderschat. M.a.w. de modelwaarden vertonen veel minder variatie dan de meetwaarden. Deze systematische afwijkingen zouden via een kalibratie kunnen gecorrigeerd worden.

Leggen we de resultaten voor de drie primaire componenten EC, OC en mineraal stof naast elkaar, zo zien we dat dus EC sterk overschat wordt, mineraal stof licht overschat wordt en OC/OM duidelijk onderschat wordt (in Chemkar II). De conclusie hieruit zou kunnen zijn dat EC en mineraal stof een te hoge fractie van de PM10-emissies toegewezen krijgen en OC/OM een te lage fractie toegewezen krijgen.

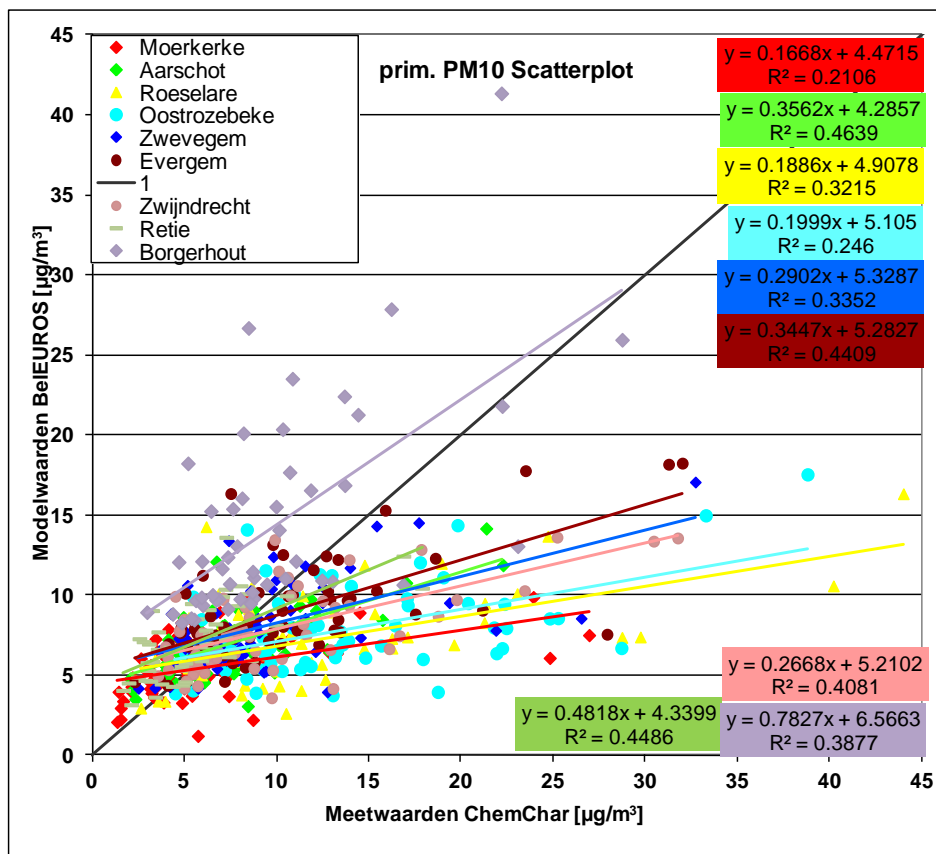


Figuur 20: Scatterplot voor de primaire anorganische componenten (Mineraal stof) – Chemkar II

Tellen we alle primaire componenten bij elkaar op (EC, OM en Mineraal stof) zo komen we aan de concentratie van primair (antropogeen) fijn stof. Deze oefening werd uitgevoerd met de gemeten concentraties, waarbij dus EC, OM (= 1,4 \* OC) en mineraal stof opgeteld werden. Voor de gemodelleerde concentraties werden de componenten EC, "OC" en Mineraal stof ("Min") opgeteld. Het resultaat is te zien in Figuur 21.

Voor de meeste meetstations (behalve Borgerhout) worden de middelhoge (t.e.m. 15 µg/m<sup>3</sup>) gemeten concentraties primair fijn stof goed ingeschat door het model, terwijl de hogere concentraties systematisch onderschat worden. In het algemeen is ook voor de primaire stofdeeltjes de helling van de trendlijn te laag. De lage gemeten concentraties worden overschat door het model en de hogere gemeten concentraties worden onderschat door het model, de variatie die we in de meetwaarden zien wordt niet voldoende weergegeven door het model. De uitzondering vormt ook hier het meetstation te Borgerhout, waarvoor bijna alle gemeten concentraties overschat worden door het model.

Door het sommeren van de concentraties EC, OM en Mineraal stof worden de over- en onderschattingen van de aparte componenten gedeeltelijk uitgemiddeld waardoor de overeenkomst tussen metingen en model beter is dan deze voor de aparte subcomponenten.



Figuur 21: Scatterplot voor de primaire antropogene componenten (EC + OM + Mineraal stof) – Chemkar II

### 1.4.5 Ammonium

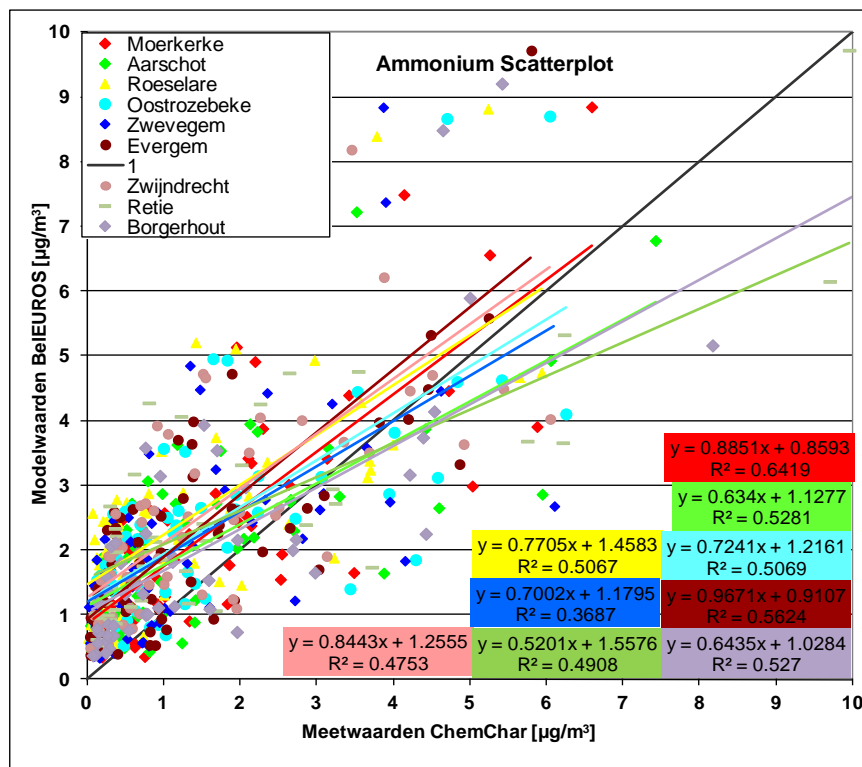
Figuur 22 toont de scatterplot voor de secundaire component ammonium (NH<sub>4</sub><sup>+</sup>). De figuur toont dat lage gemeten concentraties overschat worden door het model en dat de middelhoge en hoge gemeten concentraties gemiddeld correct ingeschat worden door het model. Er is niet echt sprake van een onderschatting van de hogere gemeten concentraties zoals dit bij de meeste andere componenten het geval is. De helling van de trendlijn ligt voor sommige meetstations redelijk dicht bij de waarde van 1.

Figuur 23 toont de scatterplot voor ammonium voor de Chemkar III-campagne. Ook voor het ammonium presteert het model beter voor de Chemkar II- dan voor de Chemkar III-campagne. Voor Chemkar III zien we ook een overschatting van de lage gemeten concentraties maar ook een onderschatting van de hoge gemeten concentraties.

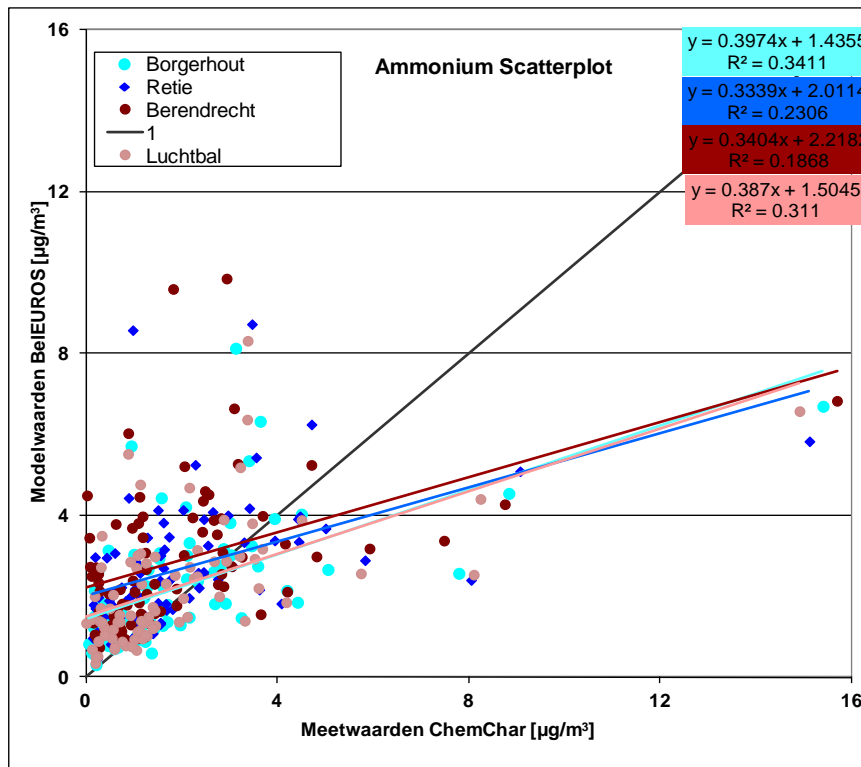
De overschatting van de lage gemeten ammoniumconcentraties zou door te hoge randvoorwaarden voor ammonium aan de randen van het modeldomein veroorzaakt kunnen worden. In het originele model worden de volgende randvoorwaarden gebruikt:

- voor ammonium in de PM<sub>2,5</sub>-fractie (in µg/m<sup>3</sup>): 0,1 (noord); 1,0 (oost), 0,25 (zuid), 0,75 (west)
- voor ammonium in de PM<sub>10-2,5</sub>-fractie (in µg/m<sup>3</sup>): 0,1 (noord); 1,0 (oost), 0,25 (zuid), 0,70 (west).

Met waarden van 2 µg/m<sup>3</sup> aan de oostkant en 1,45 µg/m<sup>3</sup> aan de westkant (in de totale PM<sub>10</sub>-fractie) zijn deze waarden inderdaad mogelijks wel aan de hoge kant, gezien er (zelfs) in Vlaanderen vaak ammoniumconcentraties duidelijk beneden van 1 µg/m<sup>3</sup> gemeten worden.

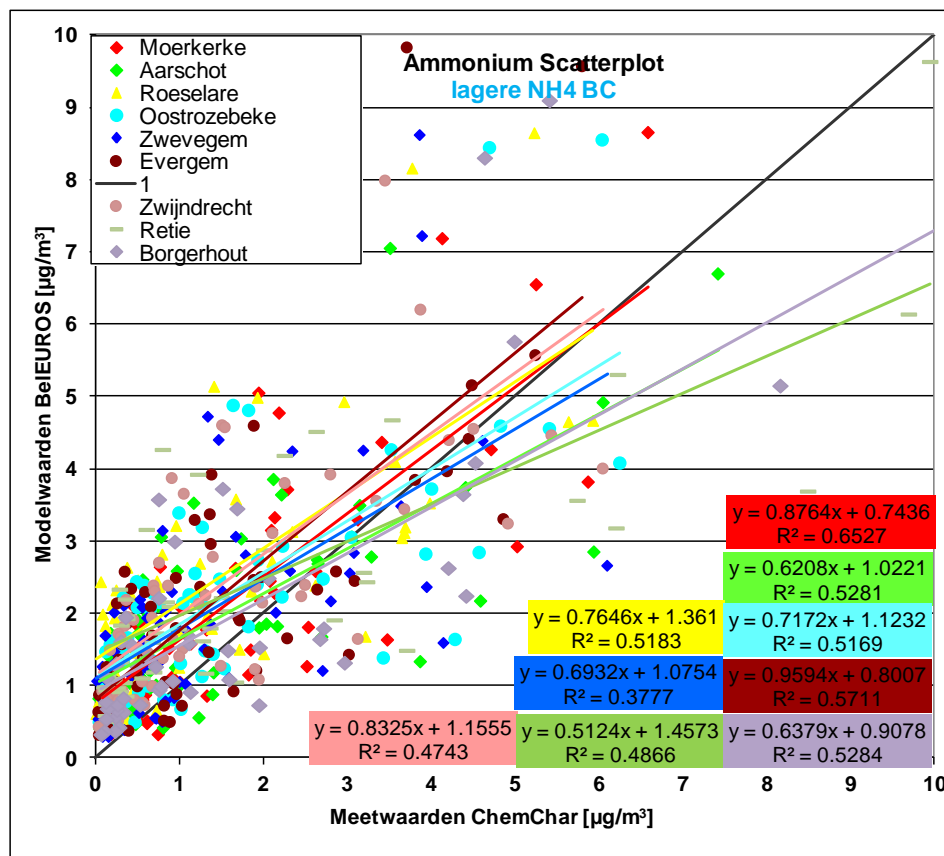


Figuur 22: Scatterplot voor ammonium – Chemkar II



Figuur 23: Scatterplot voor ammonium – Chemkar III

Om de invloed van de ammonium randvoorwaarden op de gemodelleerde ammoniumconcentraties na te gaan werd een aparte modelberekening uitgevoerd met aangepaste randvoorwaarden voor ammonium. De randvoorwaarden werden in deze berekening met een factor van 10 verlaagd, d.w.z. ze bedragen dan nog  $0,2 \mu\text{g}/\text{m}^3$  aan de oostrand en  $0,145 \mu\text{g}/\text{m}^3$  aan de westrand.



Figuur 24: Scatterplot ammonium bij een verlaging van de ammonium randvoorwaarden met 90 % (Chemkar II)

Zoals te zien in de figuur blijken echter de ammoniumrandvoorwaarden alleen een kleine invloed te hebben op de gemodelleerde ammoniumconcentraties in Vlaanderen. De overschatting zou dus eerder te wijten zijn aan de thermodynamische berekeningen en het feit dat er in het model altijd een toestand in evenwicht verondersteld wordt wat de concentraties van de precursoren in de gasfase en de fijnstofcomponenten in de aerosolfase betreft.

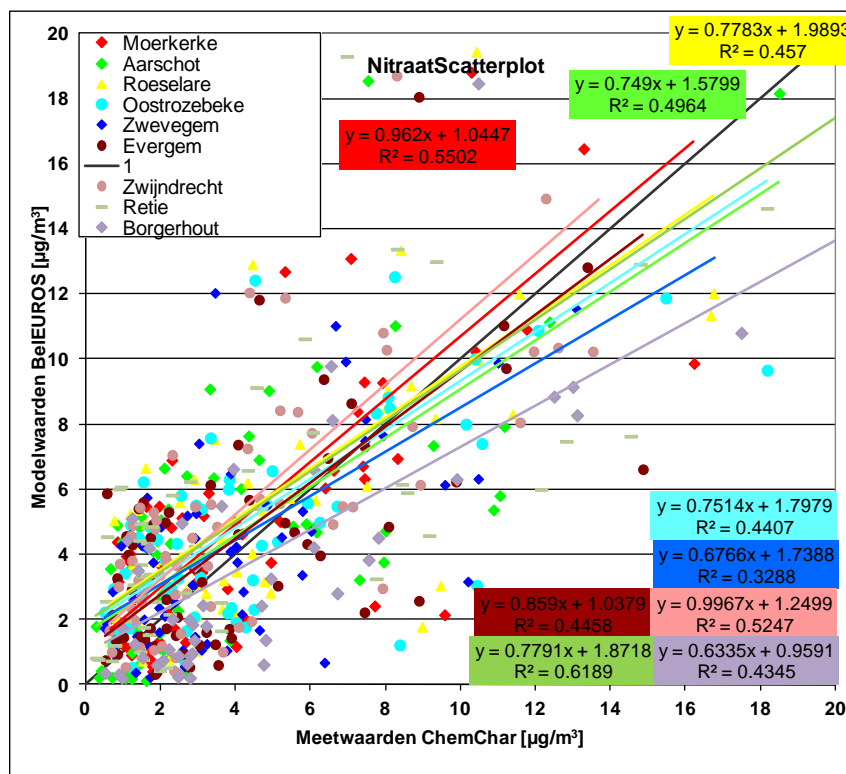
#### 1.4.6 Nitraat

Figuur 25 toont de scatterplot voor nitraat voor de Chemkar II-meetcampagne. De figuur verduidelijkt dat de modellering van nitraat voor de meetdagen van de Chemkar II-campagne goed verloopt. De berekende nitraatconcentraties liggen gelijkmatig verdeeld rond de ideale 1:1 lijn en er is geen sprake van een systematische over- of onderschatting van de gemeten concentraties, noch voor de meetdagen met lage concentraties, noch voor de dagen met hoge concentraties. De trendlijnen verlopen dan ook redelijk parallel met de 1:1 lijn. Nitraat is dus de component waarvoor het model het best de metingen kan reproduceren.

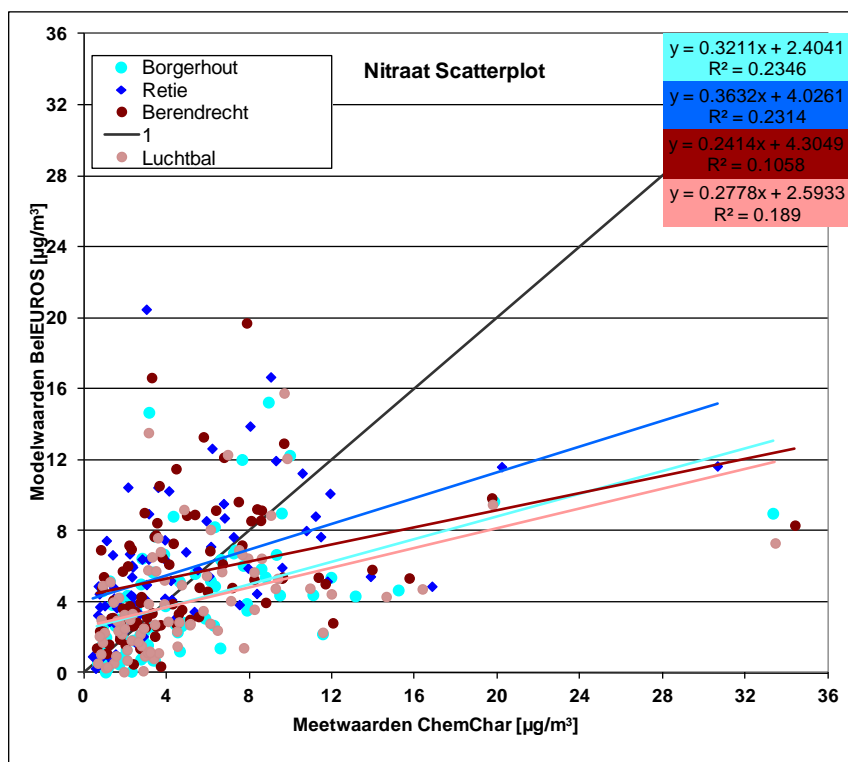
Figuur 26 toont de nitraat scatterplot voor de metingen van de Chemkar III-campagne. Ook voor het nitraat moeten we vaststellen dat het model iets slechter presteert voor Chemkar III dan voor Chemkar II. De vaststelling is gelijkaardig met deze voor de andere chemische componenten: Er zijn enkele zeer hoge metingen in de Chemkar III-campagne waarvoor het model niet goed in slaagt deze te reproduceren. Voor deze dagen onderschat BelEUROS de gemeten concentraties aanzienlijk. Wat

de reden hiervoor is is op dit moment niet duidelijk. Voor de lage en middelhoge gemeten nitraatconcentraties slaagt het model er ook in Chemkar III in deze goed te reproduceren.

Algemeen gesproken treedt voor nitraat niet het effect op dat bij de meeste andere chemische componenten zichtbaar wordt, namelijk dat bijna alle gemeten lage concentraties overschat en bijna alle gemeten hoge concentraties onderschat worden door het model. Mogelijks heeft dit dan wel met de dispersie van de pollutanten te maken, gezien dit ook voor de primaire (chemisch inerte) componenten zoals EC en mineraal stof optreedt. Een andere reden die de overschatting van de lage gemeten concentraties zou kunnen verklaren is dat het uitwassen van fijn stof door de regen onderschat wordt in het model. De laagste concentraties fijn stof worden in het algemeen gemeten op regendagen en het zou kunnen dat dit de oorzaak van dit effect is. (Als de oorzaak daarentegen te wijten zijn aan een onderschatting van de depositie in BeIEUROS dan zou dit een effect hebben op alle concentraties en niet enkel een effect op de lage waargenomen concentraties).



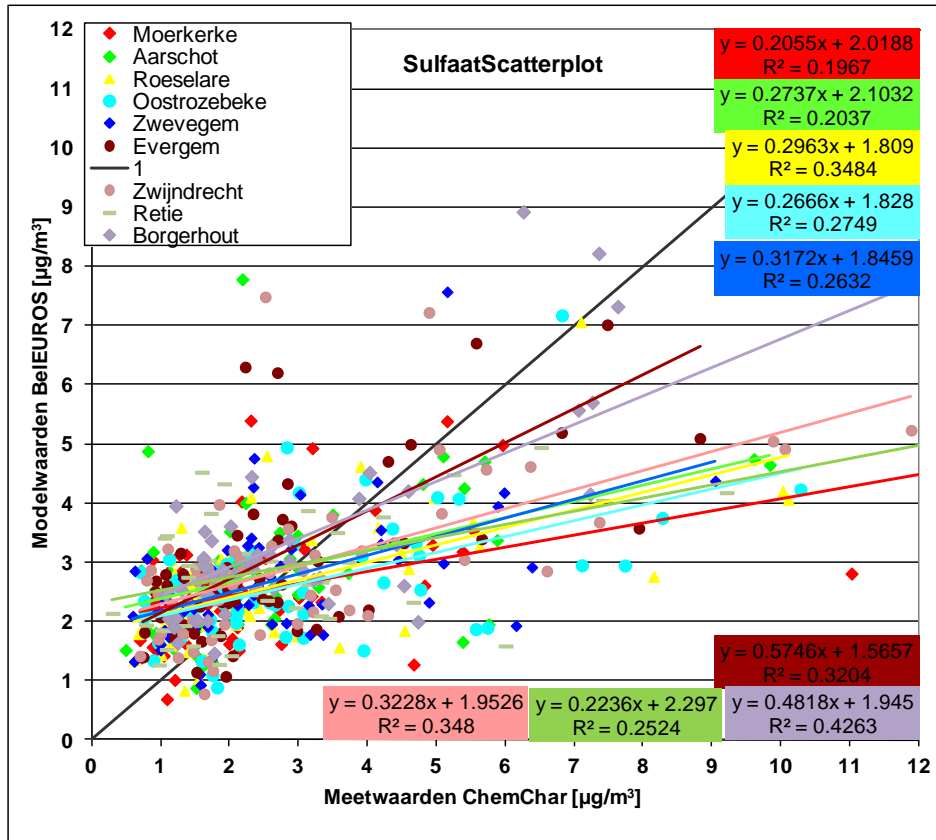
Figuur 25: Scatterplot voor nitraat – Chemkar II



Figuur 26: Scatterplot voor nitraat – Chemkar III

#### 1.4.7 Sulfaat

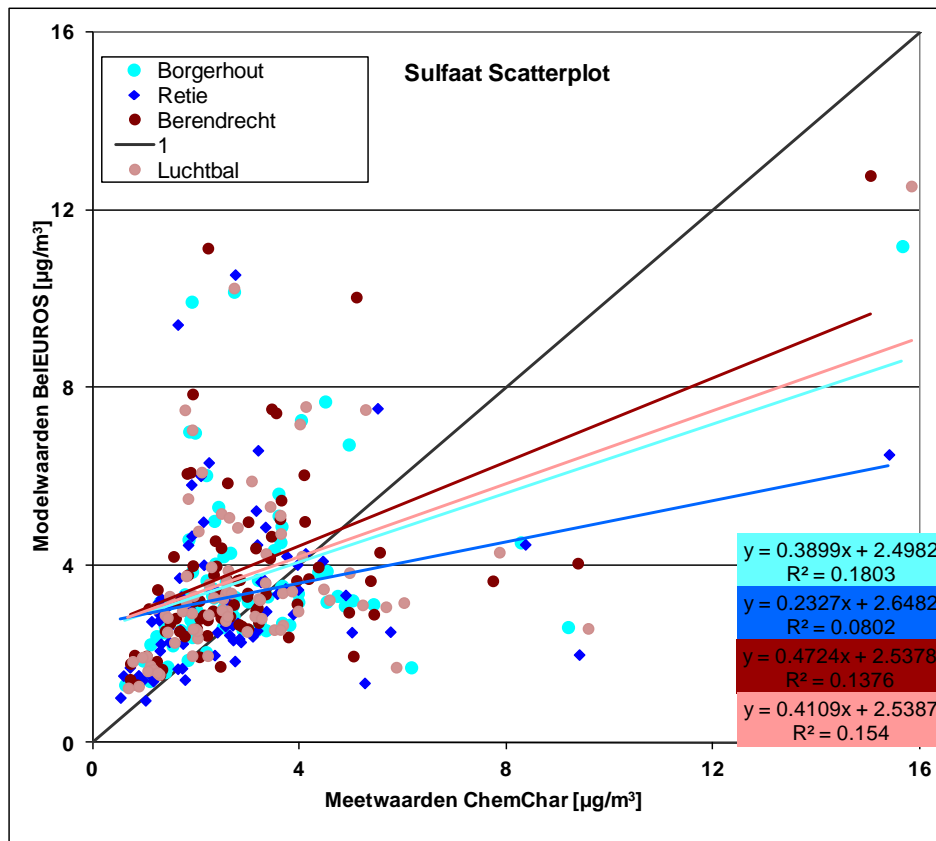
Figuur 27 toont de scatterplot voor sulfaat voor de Chemkar II-campagne. Voor sulfaat zien we een “typisch” gedrag van het model m.b.t. het reproduceren van de metingen. De lage gemeten concentraties worden systematisch overschat door het model en de hoge gemeten concentraties worden eerder onderschat door het model. Heel wat punten in de figuur reproduceert het model echter redelijk goed, zodat sulfaat (zoals nitraat) bij de componenten behoort waarvoor het model al bij al niet slecht presteert.



Figuur 27: Scatterplot voor sulfaat – Chemkar II

Figuur 28 toont de scatterplot voor sulfaat voor de metingen van de Chemkar III-campagne. Algemeen gesproken zien we een gelijkaardig gedrag als voor de Chemkar II-campagne, alhoewel ook voor sulfaat de afwijking tussen meetwaarden en modelwaarden op sommige dagen zeer groot is en het model slechter presteert.



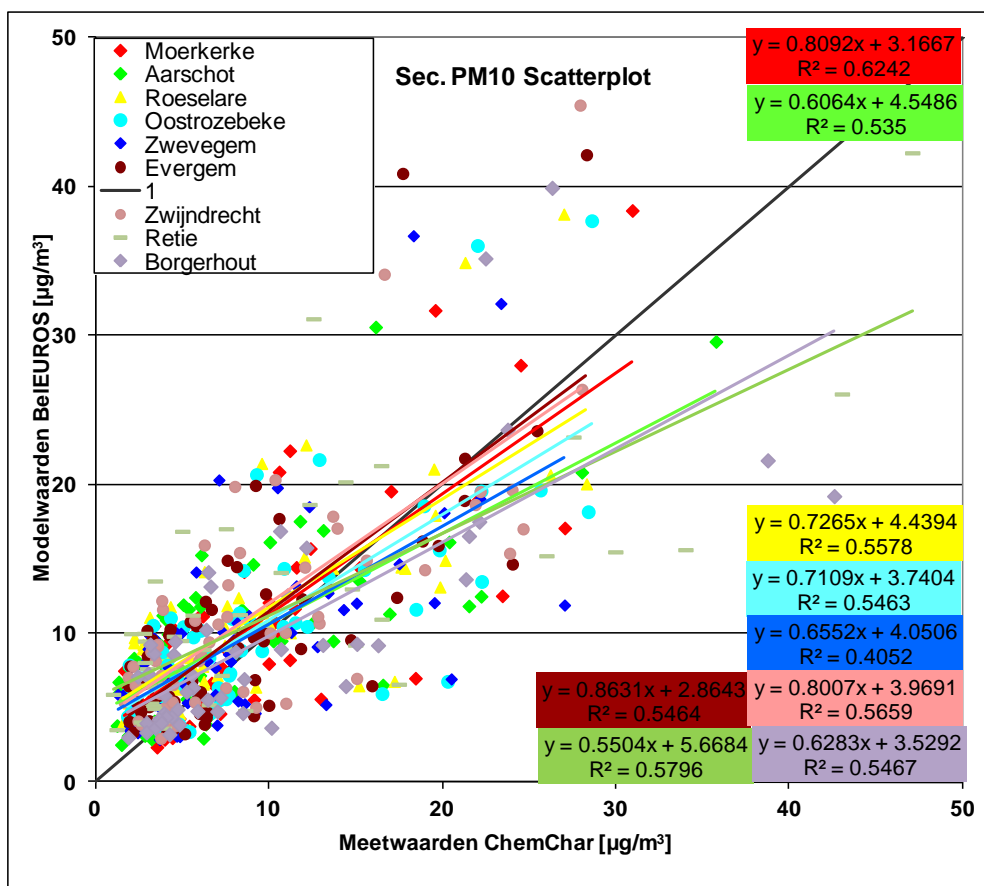


Figuur 28: Scatterplot voor sulfaat – Chemkar III

#### 1.4.8 Secundaire anorganische componenten (ammonium+nitraat+sulfaat)

Maken we telkens de som van de drie gemeten en gemodelleerde secundaire anorganische componenten (ammonium, nitraat en sulfaat) zo komen we tot een redelijk goede overeenkomst van gemeten en gemodelleerde concentraties (Figuur 29). Ook hier zien we terug een lichte tendens om de lage gemeten concentraties te overschatten en de hoge gemeten concentraties te onderschatten. Op basis van de metingen ligt de gemiddelde bijdrage van de secundaire componenten aan de totale  $PM_{10}$ -massa tussen 40 % in Oostrozebeke en 63 % in Retie. Gezien deze grote bijdrage aan de totale  $PM_{10}$ -massa is het dus wel belangrijk dat het model deze componenten zo correct mogelijk kan inschatten, wat dus op basis van Figuur 29 voor het grootste deel wel het geval lijkt te zijn.

Meestal gebruiken we BeIEUROS niet om naar de aparte chemische subcomponenten van  $PM_{10}$  te kijken en zijn we vooral geïnteresseerd in de totale  $PM_{10}$ - en  $PM_{2,5}$ -massa. Langs de andere kant is het wel zo dat het voor het doorrekenen van emissieprojecties belangrijk is dat het model emissieveranderingen per pollutant correct kan doorvertalen naar concentratieveranderingen. Hierbij treden echter bij sommige pollutanten sterke niet-lineaire effecten op, zodat het wel nodig is dat het model de verschillende chemische subcomponenten correct kan berekenen, zelfs wanneer er enkel interesse is voor de totale massa  $PM_{10}$  en  $PM_{2,5}$ .

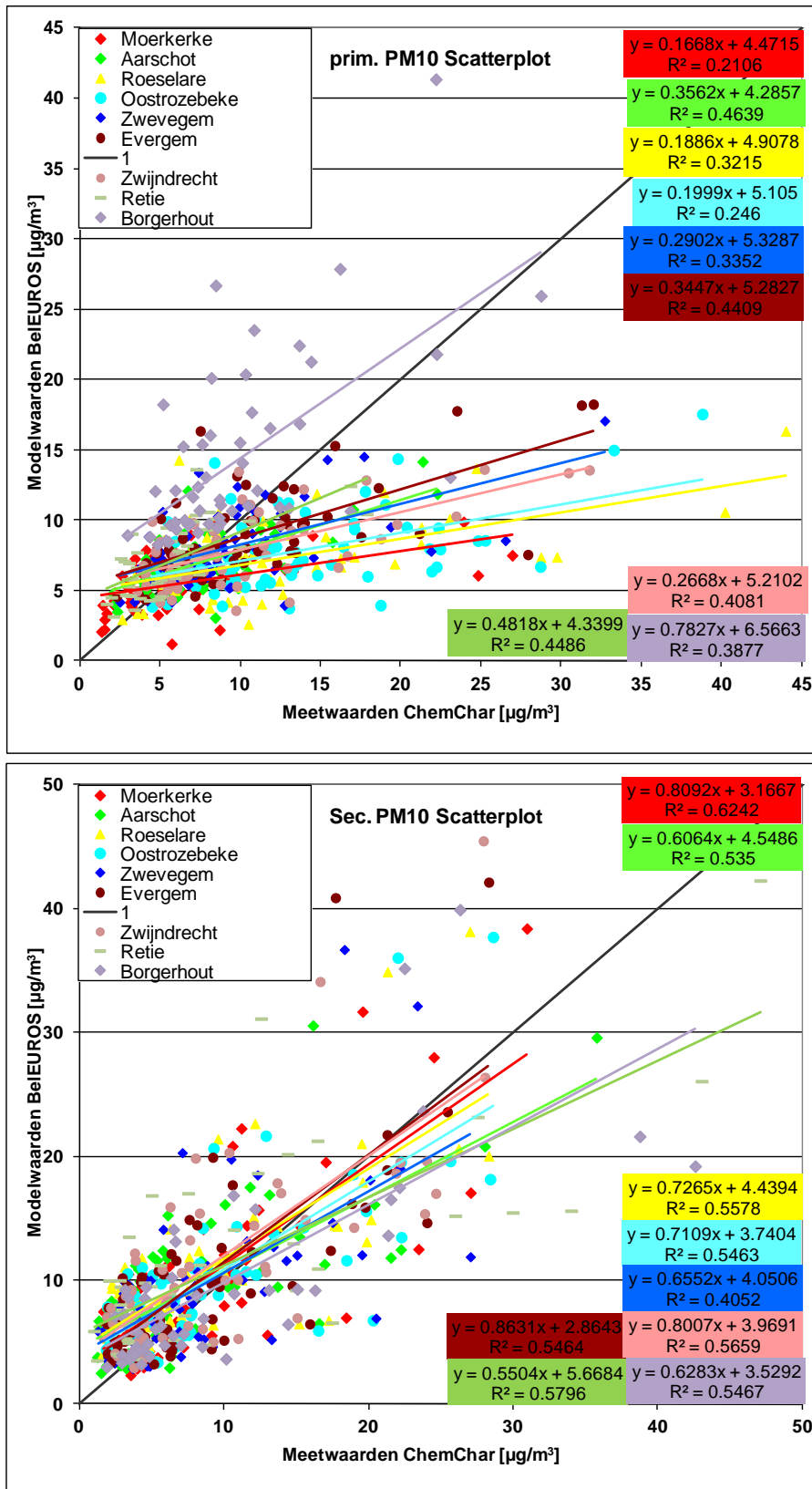


Figuur 29: Scatterplot voor de secundaire anorganische componenten – Chemkar II

#### 1.4.9 Primaire componenten (EC+OC+Mineralen) versus secundaire componenten (ammonium+nitraat+sulfaat)

In dit hoofdstuk leggen we de meet- en modelwaarden voor de primaire en de secundaire fijnstofcomponenten naast elkaar, om eventuele principiële verschillen in modelprestatie te ontdekken tussen deze twee types van componenten. Figuur 30 toont boven de scatterplot voor de primaire fijnstofcomponenten en beneden deze voor de secundaire componenten. We zien dat al bij al het model er beter in slaagt de secundaire componenten te berekenen dan de primaire componenten.

Op eerste zicht lijkt dit nogal eigenaardig. Een correcte berekening van de secundaire componenten vraagt immers een goede representatie van de chemische omzettingen van de precursoren in de atmosfeer waarbij het nitraat en sulfaat gevormd worden, wat op zich “moeilijker” is dan alleen de dispersie van de chemisch inerte primaire fijnstofcomponenten te berekenen. De reden voor het slechtere presteren van het model voor de primaire componenten kan gerelateerd zijn aan het feit dat de emissies van primair fijn stof minder goed in kaart zijn gebracht dan de emissies van de precursoren NO<sub>x</sub>, SO<sub>2</sub> en NH<sub>3</sub>. Ontbrekende of onderschatte emissies van primair fijn stof zouden de onderschatting van de modelwaarden op dagen met hoge gemeten concentraties (voor een deel) kunnen verklaren.



Figuur 30: Scatterplots primaire (boven) versus secundaire (beneden) componenten – Chemkar II

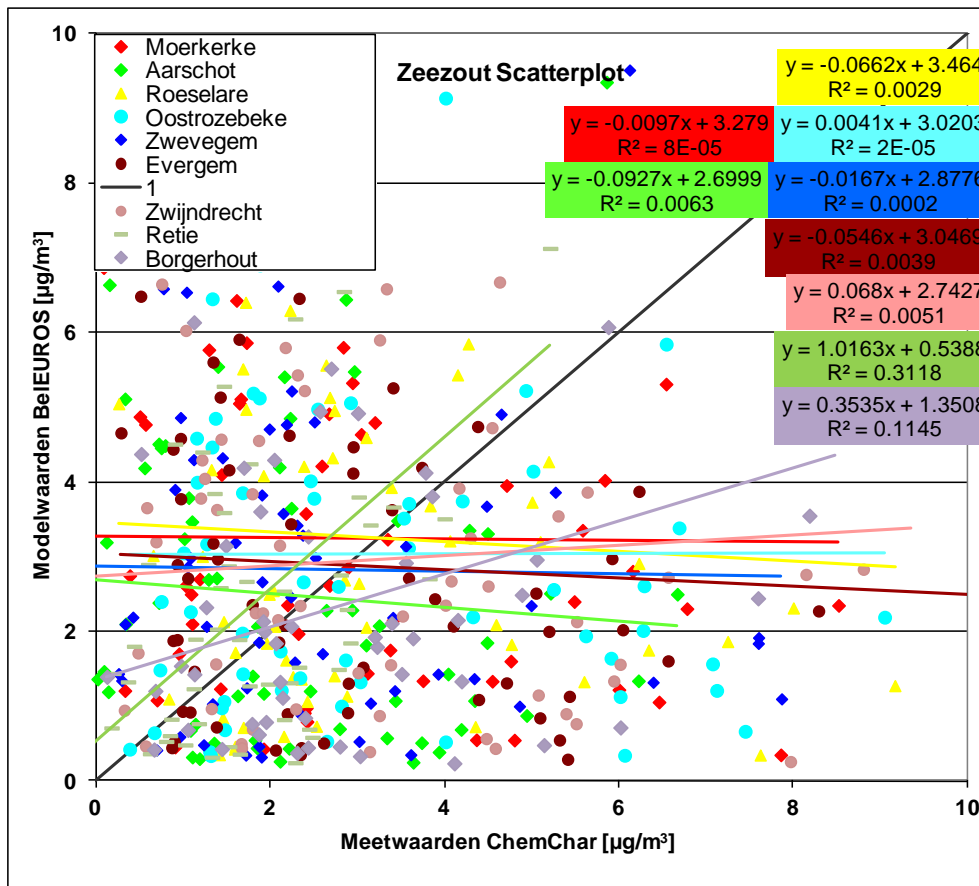
Een principieel probleem van het model met de dispersie van het fijn stof (algemeen en op dagen met hoge  $\text{PM}_{10}$ -concentraties in het bijzonder, zoals uitwisselarme weerstypes) lijkt minder waarschijnlijk te zijn maar kan ook niet uitgesloten worden. We kunnen aannemen dat een goede

representatie van de dispersie van fijn stof belangrijker is voor de correcte berekening van de primaire fijnstofcomponenten dan voor deze van de secundaire fijnstofcomponenten. Een reden hiervoor zou kunnen zijn dat voor de secundaire componenten er geen echte “bronnen” zijn maar er een geleidelijke vorming is. We hebben dus een diffuus patroon en voor de representatie ervan speelt een correcte dispersie een minder grote rol. Bij de primaire componenten daarentegen zijn er echte bronnen, dus sterkere gradiënten in de realiteit en is dus een correcte dispersie van deze componenten veel belangrijker om deze gradiënten te reproduceren met het model.

De sterk verschillende ruimtelijke patronen voor de primaire en secundaire componenten zouden ook één van de oorzaken zijn waarom zich het meetstation Borgerhout zo verschillend gedraagt voor de primaire fijnstofcomponenten terwijl er voor de secundaire componenten geen verschil is tussen Borgerhout en de andere meetstations. Kijkt men naar de helling van de trendlijnen zo valt ook op dat deze voor de verschillende meetplaatsen voor de primaire componenten redelijk verschillen van elkaar terwijl ze voor de secundaire componenten dicht bij elkaar liggen. Ook deze observatie heeft waarschijnlijk te maken met de ruimtelijke spreiding van de verschillende componenten. Ook uit de metingen blijkt duidelijk dat de concentratieverschillen in  $PM_{10}$  tussen verschillende locaties in Vlaanderen vooral te wijten zijn aan verschillen in de concentraties van de primaire componenten, terwijl de concentraties van de secundaire componenten niet erg veel verschillen van elkaar op de verschillende locaties.

#### **1.4.10 Zeezout ( $1,45 Na + Cl$ )**

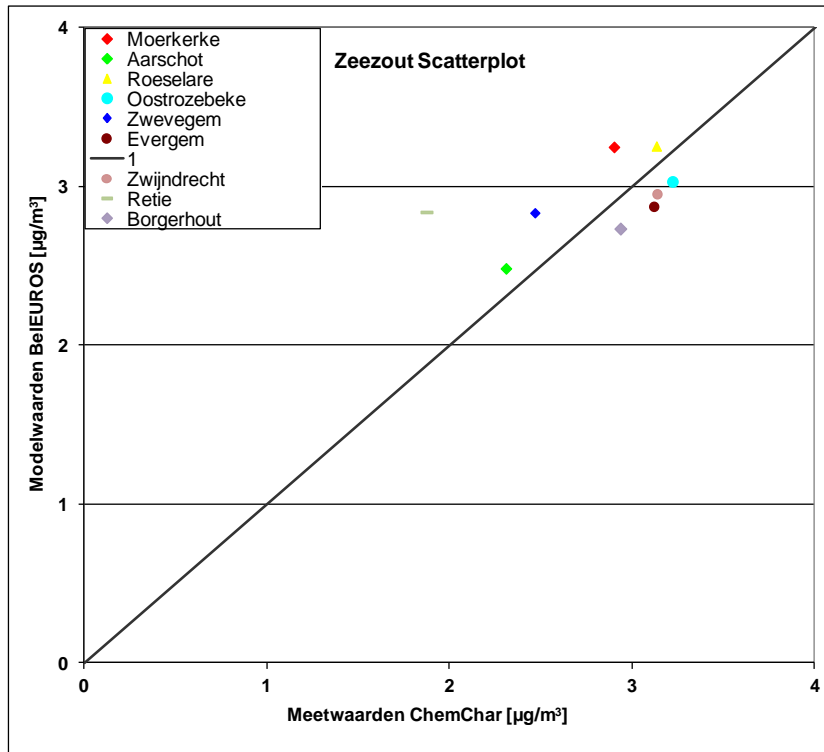
Figuur 31 toont de scatterplot van de gemeten en gemodelleerde zeezoutconcentraties, waarbij de concentratie zeezout berekend wordt op basis van de formule  $Zeezout = 1,45 * Na + Cl$ . De figuur toont dat er op basis van daggemiddelde waarden blijkbaar nauwelijks een verband teruggevonden wordt tussen gemeten en gemodelleerde zeezoutconcentraties.



Figuur 31: Scatterplot voor zeezout (1,45 Na + Cl) – Chemkar II

Het interessante is echter dat wanneer we de daggemiddelde meetwaarden en modelwaarden van zeezout aggregeren tot een gemiddelde waarde over de hele Chemkar II-meetcampagne (Figuur 32) het model er wel in slaagt om de verschillende (gemiddelde) gemeten concentraties goed te reproduceren (minder goed voor de meetplaats Retie).

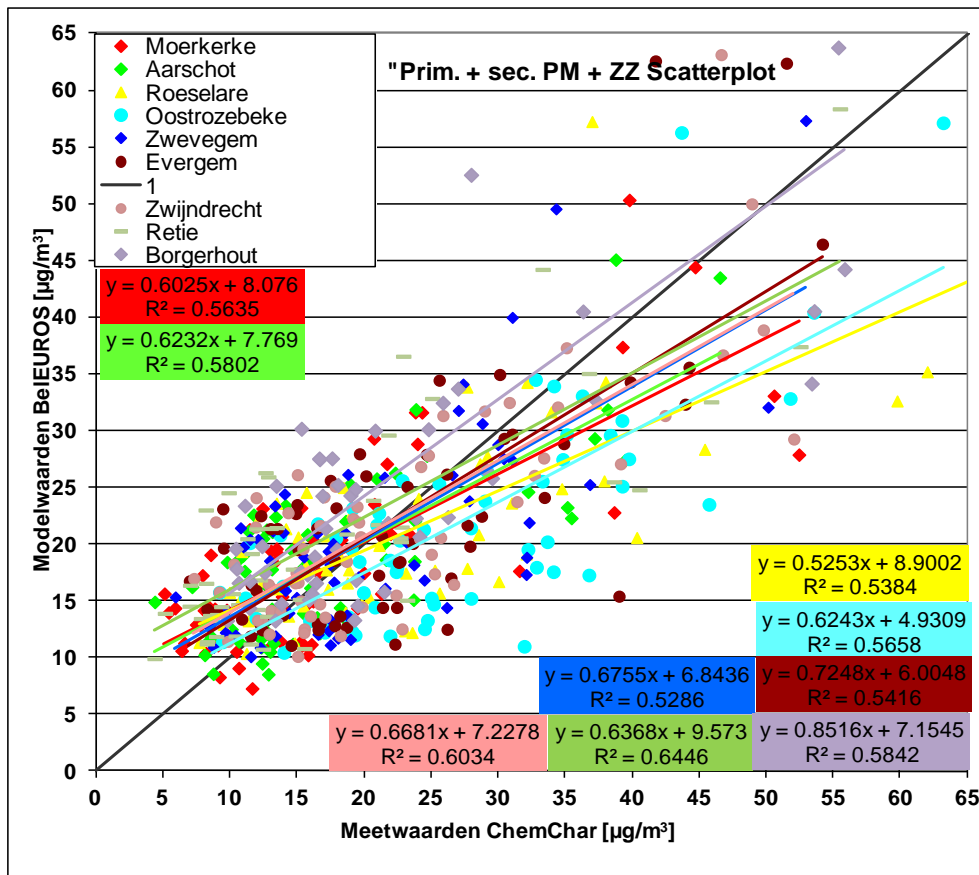
Dit toont aan, dat, ondanks de enorme spreiding van de modelwaarden op dagbasis, deze concentraties toch een informatie bevatten m.b.t. de west-oost gradiënt binnen Vlaanderen, met dalende zeezoutconcentraties met toenemende afstand van de kust. Deze gradiënt wordt, gemiddeld over een langere periode, wel gereproduceerd door het model. Deze gradiënt is het gevolg van zeezoutemissies op de Noordzee (onder de invloed van wind) en de geleidelijke depositie ervan met toenemende afstand van de kust. Voor een inschatting van de zeezoutconcentraties op dagbasis is de huidige berekeningswijze echter duidelijk nog niet voldoende betrouwbaar.



Figuur 32: Scatterplot voor zeezout bij aggregatie van de concentraties tot een gemiddelde waarde over de hele campagne

#### 1.4.11 Som van alle gemeten en gemodelleerde componenten

Figuur 33 toont de scatterplot voor de som van alle gemeten en gemodelleerde fijnstofcomponenten voor de Chemkar II-campagne. Dit komt overeen met de som van de componenten EC, OM, mineraal stof, zeezout, ammonium, nitraat en sulfaat. Voor de metingen komt dit ook overeen met de concentratie PM<sub>10</sub> minus de waargenomen "rest" fractie.



Figuur 33: Scatterplot voor de som van alle gemodelleerde componenten – Chemkar II

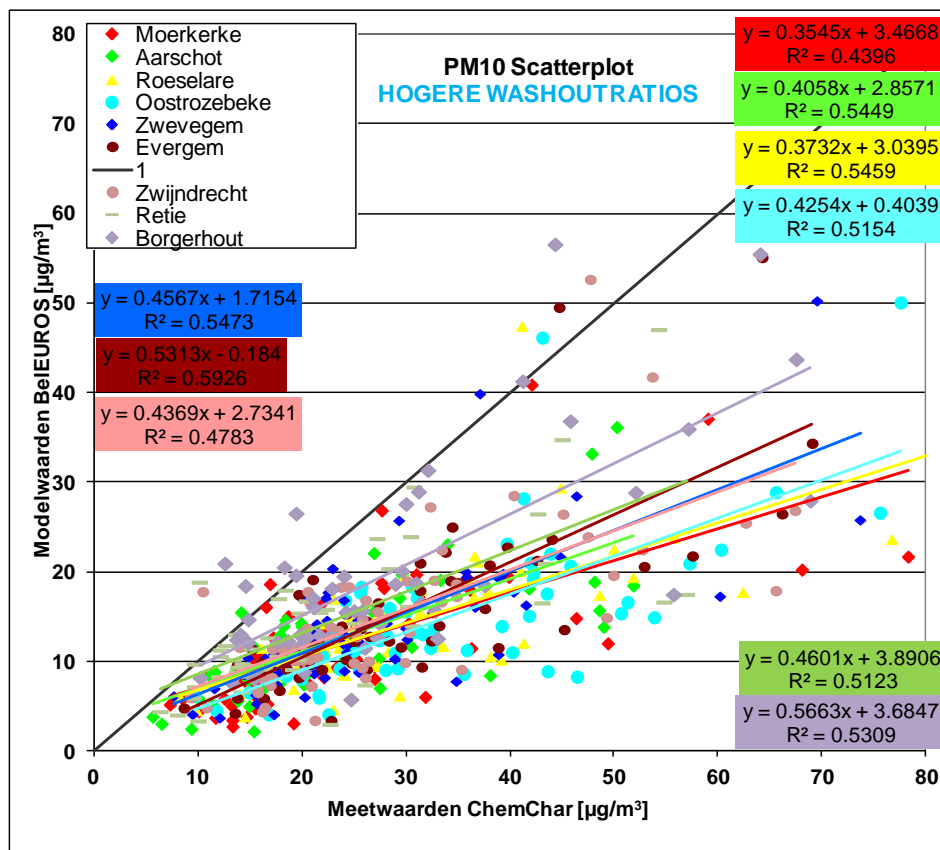
Ook voor de som van alle (gemeten en gemodelleerde) componenten zien we hetzelfde gedrag van het model: De middelhoge gemeten concentraties worden het best (en eigenlijk vrij correct) gereproduceerd door het model, de lage gemeten concentraties worden overschat en de hoge gemeten concentraties worden onderschat.

Zouden er fysische redenen achter dit gedrag liggen? Mogelijkheden hiervoor zijn te hoge randvoorwaarden en/of een onderschatting van het uitwassen van fijn stof door de atmosferische neerslag. Het onderschatten van de hoge concentraties zou kunnen te wijten zijn aan ontbrekende/onderschatte emissies, hetgeen op dagen met slechte vermenging van de atmosfeer omwille van accumulatie-effecten een groter effect heeft dan op dagen met gemiddelde verspreidingscondities. Het zou ook kunnen dat de meteo die het model gebruikt de extreme weersituaties (slechte vermenging van de luchtlagen, inversiesituaties, periodes van windstilte) onvoldoende weergeeft wat tot de waargenomen onderschattingen zou kunnen leiden. Het model rekent immers maar met meteo-informatie die om de 6 uur beschikbaar is (ECMWF) en interpoleert tussen deze waarden. Het lijkt quasi onvermijdelijk dat hierdoor al heel wat variatie van de meteo uitgefilterd wordt. Dit zou bijvoorbeeld voor de windsnelheid en belangrijk effect kunnen hebben, zorgen de emissies bij windstilte toch voor redelijk snel verhoogde fijnstofconcentraties. Wat de neerslag betreft zo bevatten de ECMWF-meteobestanden de som van alle neerslag over een periode van 6 uur. De neerslag kent echter in de realiteit grote variaties in intensiteit, die in het model voor een groot deel verloren gaan, omdat de neerslag uit de ECMWF-bestanden gelijkmatig gespreid wordt over een periode van 6 uur. Dit zou voor een deel kunnen verklaren waarom het model voor

alle componenten de variatie van de meetwaarden aanzienlijk onderschat en een tendens vertoont vaak een “gemiddelde” waarde te berekenen.

Het zou echter ook kunnen dat er alleen “onrechtstreeks” fysische redenen achter dit gedrag zitten omdat modellen zoals BeIEUROS (waarschijnlijk) gemaakt zijn voor het berekenen van de toestand onder “normale” of “gemiddelde” situaties en dat het model quasi onvermijdelijk slechter presteert voor de “extreme” situaties zoals de lage en de hoge concentraties. In deze gevallen (en dat gebeurt ook in statistische modellen die niet expliciet gemaakt zijn om extreme waarden te voorspellen) wordt de distributie van de concentratieverdeling “samengeperst” en worden lage waarden altijd overschat en hoge waarden altijd onderschat. Een test van deze hypothese is echter niet voor de hand liggend.

Om dit na te gaan werd een bijkomende berekening uitgevoerd met aangepaste (factor van 10 hogere) washoutcoëfficiënten voor alle chemische fijnstofcomponenten, zowel de primaire alsook de secundaire fijnstofcomponenten. De wash-out coëfficiënten voor de gasvormige chemische componenten werden niet gewijzigd in het model bij deze berekening. Figuur 34 toont de PM<sub>10</sub>-concentraties van deze berekening.



Figuur 34: Scatterplot voor PM<sub>10</sub> (Chemkar II) met hogere washoutratio's voor de fijnstof-componenten

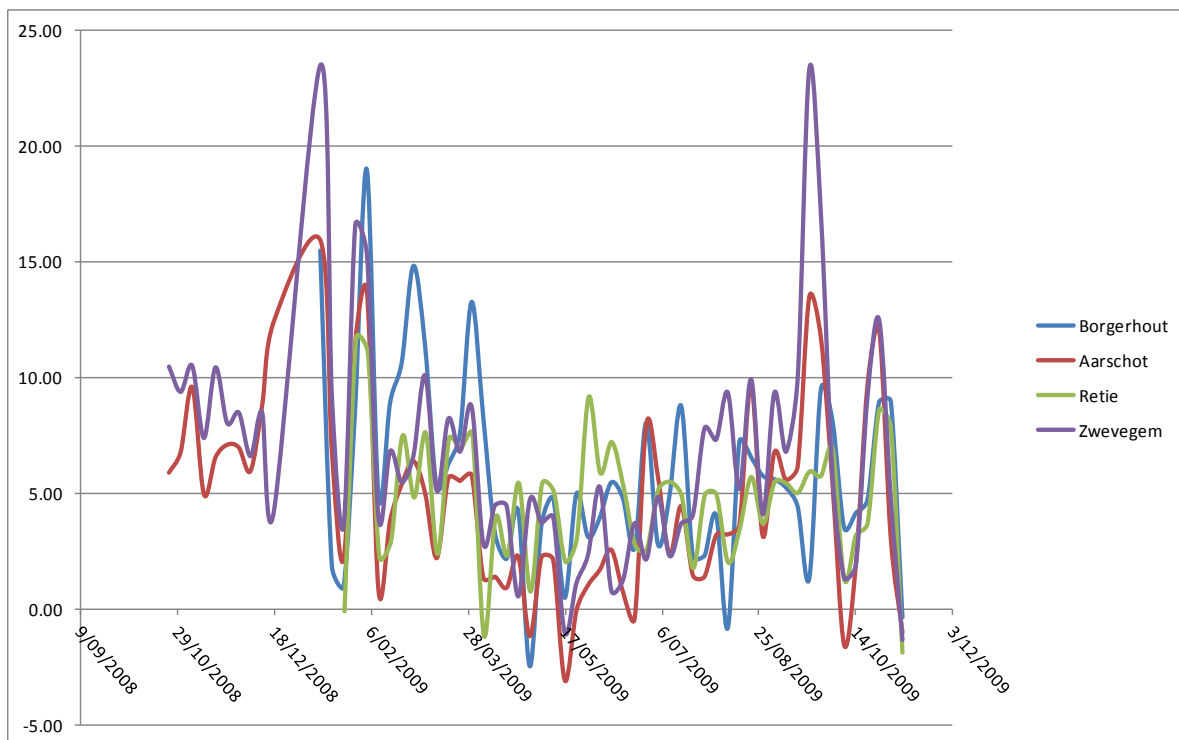
Vergelijken we de resultaten van de berekening met de verhoogde washoutcoëfficiënten met de resultaten van een berekening met de gewoonlijke coëfficiënten (Figuur 11) zo wordt duidelijk dat het model niet alleen voor de dagen met lage gemeten PM<sub>10</sub>-concentratie een lagere concentratie berekent maar dat het model nu voor de meeste dagen een lagere PM<sub>10</sub>-concentratie berekent. In



hoever dit realistisch(er) is valt moeilijk te beoordelen omdat de  $PM_{10}$ -concentraties sowieso, omwille van de andere boven vermelde redenen, dikwijls onderschat worden.

#### 1.4.12 "Rest"

Het verschil in de metingen tussen de (totale) massa  $PM_{10}$  en de som van alle bepaalde chemische fijnstofcomponenten wordt aangegeven als de "restfractie" (Figuur 35). De vraag stelt zich dus waaruit deze rest dan chemisch gezien bestaat? Kijken we naar de al bij al toch redelijk goede overeenkomst van model en metingen voor de som van alle gemeten en gemodelleerde componenten (Figuur 33) zo zou men kunnen concluderen dat deze restfractie blijkbaar noch gemeten noch gemodelleerd wordt.



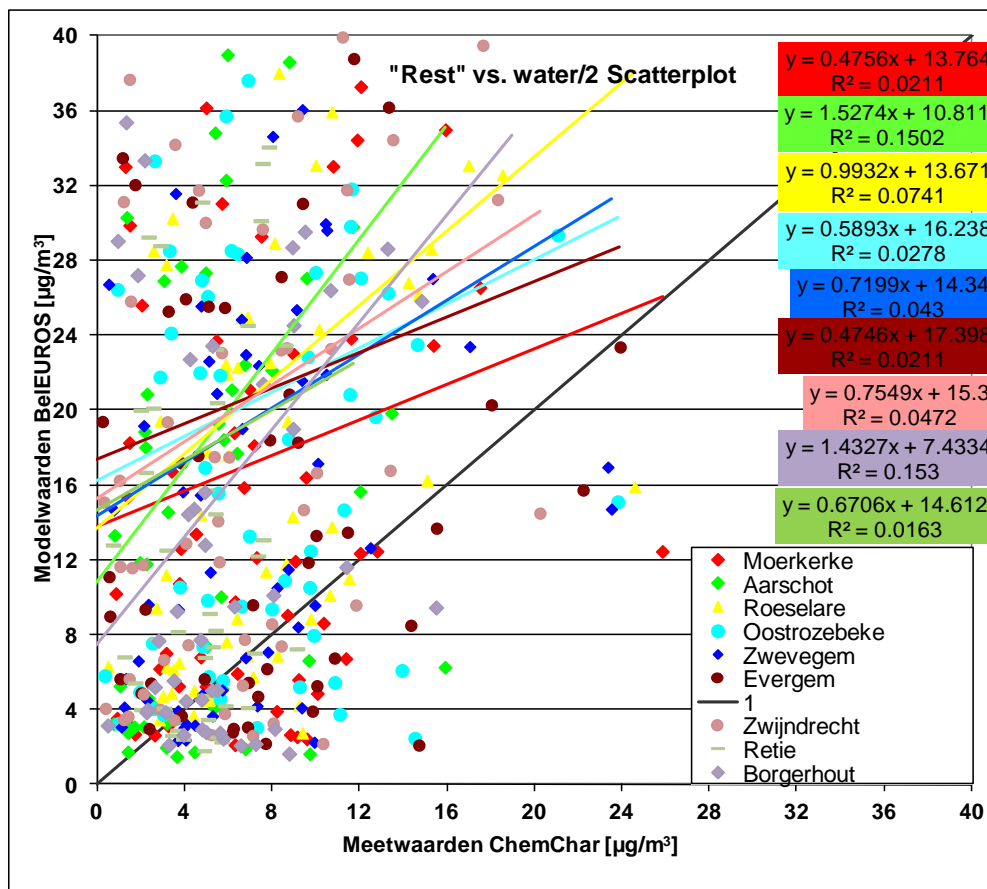
Figuur 35: "Rest" in de metingen ( $PM_{10}$ -som van alle chemische componenten) – Chemkar II

Een mogelijkheid zou kunnen zijn dat deze restfractie voor een belangrijk deel bestaat uit water, al dan niet chemisch gebonden in de kristalstructuur van nitraten en sulfaten. Bijkomend water zou kunnen geassocieerd zijn met het fijn stof omwille van het hygroscopische karakter van sommige fijnstofcomponenten.

Het BeEUROS-model beschikt over een module om "water" geassocieerd aan  $PM_{10}$  en  $PM_{2,5}$  te berekenen. Het blijkt echter dat de berekende concentraties vaak zeer hoog zijn, dikwijls in de grootteorde van de "droge"  $PM_{10}$ -concentraties. Figuur 36 toont een scatterplot van de gemodelleerde concentratie water (gedeeld door 2 omdat de lagere waarden ongeveer het dubbele zijn, maar daarnaast zijn er ook nog veel hogere waarden; alternatief zouden de meetwaarden kunnen vermenigvuldigd worden met 2, maar dit lijkt minder opportuun zijn de modelwaarden toch sowieso onzekerder) in functie van de gemeten concentratie van de restfractie. Het blijkt een grote spreiding te zitten op de gemodelleerde resultaten maar enige correlatie lijkt er wel te bestaan

tussen beide grootheden. In heel wat gevallen berekent het model inderdaad hogere concentraties water naargelang de restfractie in de metingen toeneemt.

Hierbij moeten we echter ermee rekening houden dat de filters waarop het PM<sub>10</sub> verzameld wordt geconditioneerd worden vóór de massa PM<sub>10</sub> bepaald wordt, d.w.z. de filters verblijven voor 24 h in een kamer met constante temperatuur (20 °C) en luchtvochtigheid (50 %), om artefacten bij de weging te voorkomen. Deze conditionering van de filters heeft echter wel als gevolg dat op de filters alleen maar de hoeveelheid water overblijft die in evenwicht is met de condities van de weegkamer. Deze massa water is in de metingen dus in vele gevallen waarschijnlijk te laag en geen goed maat voor de hoeveelheid water aanwezig op de stofdeeltjes onder de condities tijdens de staalname. In de buitenlucht is de luchtvochtigheid immers meestal hoger dan in de weegkamer.



Figuur 36: Gemodelleerde concentratie "water" (gedeeld door 2) in functie van de gemeten "rest" fractie

## 1.5 Conclusies

Op basis van de resultaten gepresenteerd in hoofdstuk 1 van dit rapport kunnen we de volgende conclusies trekken m.b.t. de capabiliteit van BelEUROS om de gemeten concentraties van de verschillende chemische componenten te reproduceren:

- De modellering van de totale massa  $PM_{10}$  verloopt redelijk goed, vooral wanneer we de som van alle gemeten en gemodelleerde componenten vergelijken ( $PM_{10}$  – restfractie in de metingen). Het model heeft de tendens de lage gemeten concentraties te overschatten en de hoge gemeten concentraties te onderschatten. Een kalibratie van de primaire  $PM_{10}$ -componenten o.b.v. de gemeten  $PM_{10}$ -concentraties zou de modelprestatie eventueel kunnen verbeteren. (Dit wordt verder onderzocht in het volgende hoofdstuk.)
- De modellering van de som van alle secundaire fijnstofcomponenten verloopt goed, zelfs significant beter dan de modellering van de som van alle primaire fijnstofcomponenten.
- De concentraties EC worden overschat door het model, waarbij het uitmaat van overschatting zeer afhankelijk is van de locatie. De concentraties OC of OM worden onderschat.
- Wat de concentraties van de secundaire fijnstofcomponenten betreft zo worden deze van ammonium licht overschat door het model, deze van nitraat goed ingeschat en voor sulfaat zien we een overschatting van de lage concentraties en een onderschatting van de hoge concentraties.

## 2 Modelkalibratie en bepaling van de modelonzekerheid voor de chemische subcomponenten van $PM_{10}$

### 2.1 Modelkalibratie

#### 2.1.1 Inleiding

De modelvalidatie heeft aangetoond dat de secundaire  $PM_{10}$ -componenten ammonium, nitraat en sulfaat op een “aanvaardbare manier” berekend worden door het model en er geen modelkalibratie vereist is. Voor deze componenten treedt in mindere mate een systematische afwijking op en de modelwaarden strooien rond de metingen. Voor de primaire  $PM_{10}$ -componenten treden daarentegen grotere en systematische afwijkingen op tussen metingen en model. Voor EC onderschat het model de metingen duidelijk (zelfs bij gebruik van de fracties EC van de  $PM_{2,5}$ -emissies zoals opgesteld i.k.v. ATMOSYS), voor OC en de minerale fractie treedt een duidelijke onderschatting op. Het lijkt alsof de EC-emissiefactoren/fracties EC van de  $PM_{2,5}$ -emissies niet afgestemd zijn op de gebruikte meetmethode voor EC en OC (cfr. NIOSH- vs. EUSAAR-meetprotocol). Omwille van de grotere afwijkingen bij de aparte primaire fijnstofcomponenten werd in samenspraak met de stuurgroep beslist alleen de som van de primaire componenten (EC, OC, mineralen) te gebruiken voor de verdere berekeningen.

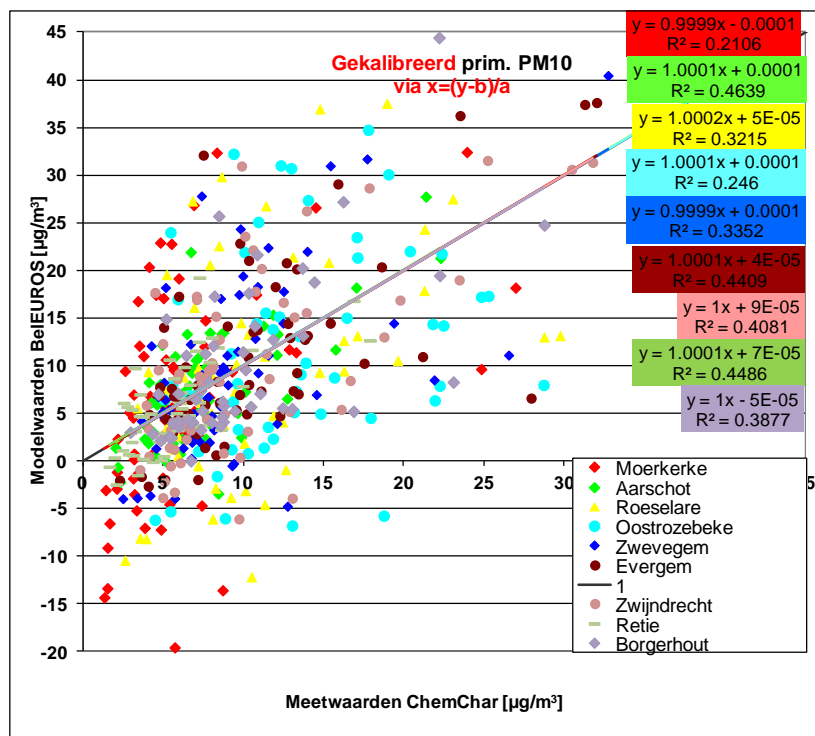
De modelvalidatie van de som van de primaire fijnstofcomponenten heeft aangetoond dat het model de meetwaarden op een systematische manier foutief inschat, nl. lage meetwaarden worden overschat door het model en hoge meetwaarden worden onderschat door het model. Deze effecten zouden voor een deel door een kalibratie van de modelwaarden verbeterd kunnen worden. Er werd dan ook beslist om diverse mogelijkheden van kalibratie van primaire componenten na te gaan en de secundaire componenten te gebruiken zoals berekend door het model. Dit kan gezien worden als een eerste stap van een dynamisch proces.

In het volgende hoofdstuk worden de verschillende mogelijkheden besproken om de primaire fijnstofcomponenten te kalibreren en wat de voor- en nadelen van de verschillende mogelijkheden zijn. Er wordt ook nagegaan of men voor bepaalde componenten niet beter metingen zou gebruiken i.p.v. modelwaarden.

### 2.1.2 Modelkalibratie voor de primaire fijnstofcomponenten

Uitgangspunt van de discussie rond een kalibratie van de primaire fijnstofcomponenten is de scatterplot voor de (niet gekalibreerde) concentraties van de primaire PM<sub>10</sub>-componenten, PPM<sub>10</sub> genoemd in het vervolg (Figuur 21).

De meest voor de hand liggende kalibratiemethode zou het gebruik van de formule voor de regressielijnen ( $y=ax+b$ ) zijn om de modelwaarden te kalibreren via de formule  $x=(y-b)/a$ . De toepassing ervan levert het volgende resultaat op (Figuur 37).



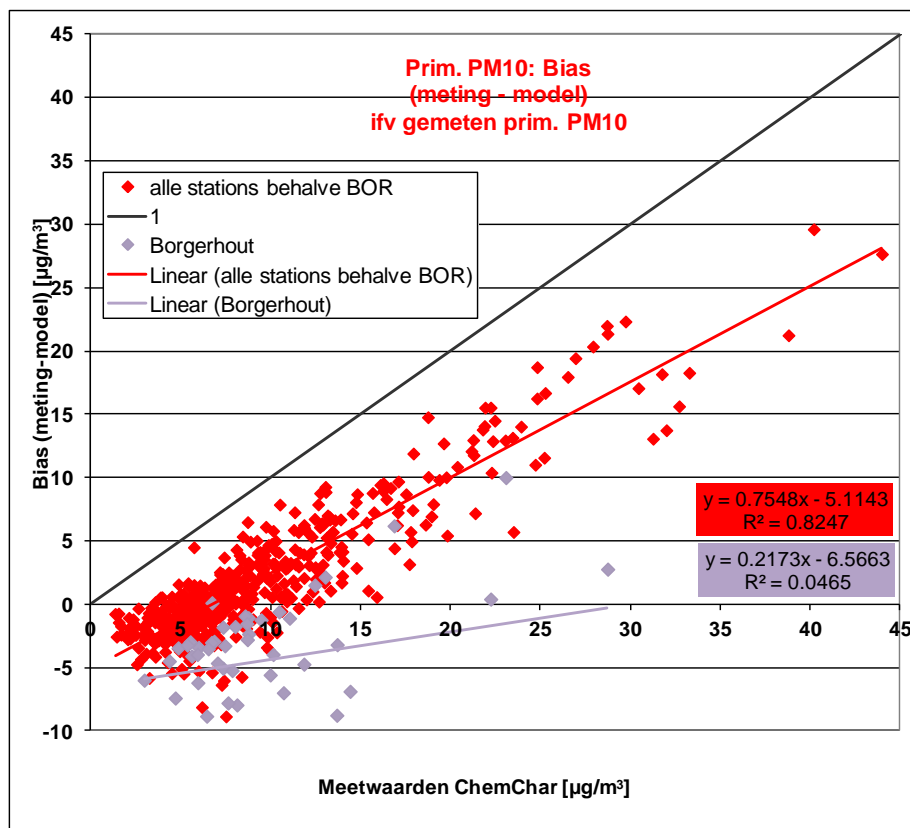
Figuur 37: Kalibratie van PPM<sub>10</sub> via de regressielijnen ( $x=(y-b)/a$ )

We krijgen een “perfecte” helling van de regressielijn voor alle locaties en de correlatiecoëfficiënten veranderen niet door deze stap t.o.v. deze voor de niet-gekalibreerde PPM<sub>10</sub> plot. Echter, de scatter is zeer groot en voor heel wat dagen worden negatieve concentraties berekend. Bijvoorbeeld voor het station van Moerkerke zijn 18 van de 61 berekende concentraties negatief.

Deze methode zou waarschijnlijk kunnen toegepast worden voor de berekening van jaargemiddelde concentraties PPM<sub>10</sub>, maar voor daggemiddelden lijkt deze methode (veel) slechtere resultaten op te leveren dan deze bij gebruik van de niet gekalibreerde waarden.

We moeten dus op zoek gaan naar een “betere” methode om een dergelijke kalibratie voor daggemiddelde waarden te kunnen doen.

Het volgende idee was om de bias tussen model en meting te gebruiken voor de kalibratie van PPM<sub>10</sub>. Deze bias (Figuur 38) is sterk afhankelijk van de gemeten PPM<sub>10</sub>-concentratie. De analyse van de afwijkingen van de gemodelleerde concentraties PPM<sub>10</sub> t.o.v. de waargenomen PPM<sub>10</sub>-concentraties heeft duidelijk aangetoond dat de bias (verschil tussen gemeten en gemodelleerde concentraties) in hoge mate gecorreleerd is (Figuur 38) met de gemeten concentratie van de PPM<sub>10</sub>-componenten. Hoe hoger de gemeten concentratie PPM<sub>10</sub> hoe groter de bias. Voor gemeten PPM<sub>10</sub>-concentraties kleiner dan ongeveer 7 µg/m<sup>3</sup> is de bias negatief, voor grotere concentraties is deze positief. Opvallend is dat er voor alle meetlocaties behalve Borgerhout ongeveer dezelfde correlatiefunctie gevonden wordt tussen de bias en de gemeten PPM<sub>10</sub>-concentratie. Deze kan dus in principe perfect gebruikt worden voor de kalibratie van het model. Voor Borgerhout wordt er een volledig andere correlatiefunctie gevonden (met een veel slechtere correlatie).



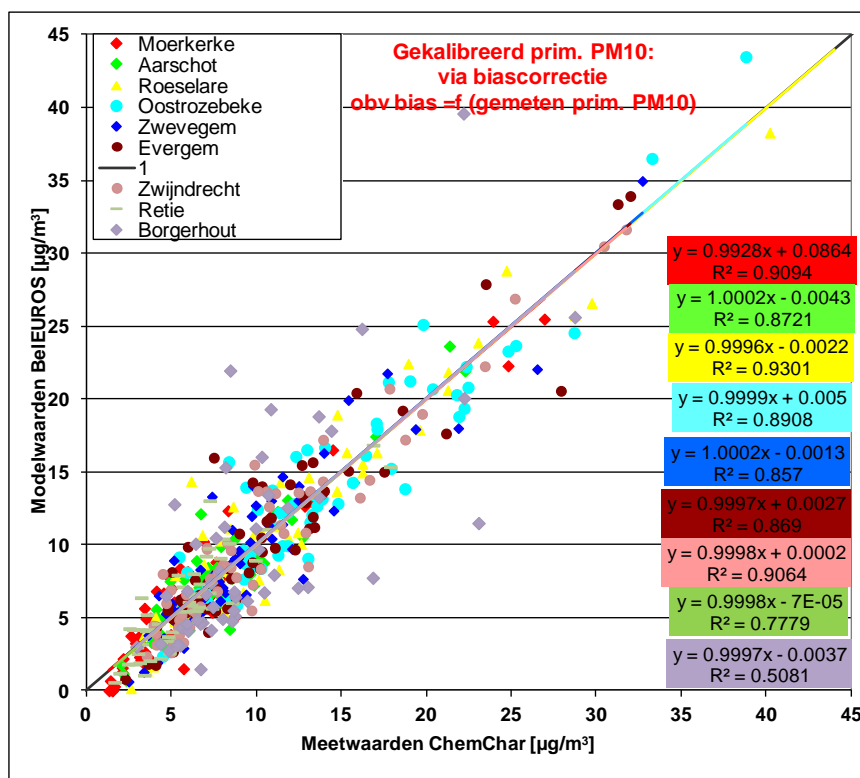
Figuur 38: Primair PM<sub>10</sub> (PPM<sub>10</sub>): Bias (verschil tussen metingen en model) in functie van de gemeten PPM<sub>10</sub>-concentraties

Op basis van deze functie kan het model gekalibreerd worden:

$$\text{PPM}_{10} (\text{gekalibreerd model}) = \text{PPM}_{10} (\text{model}) + \text{Bias}$$

$$= \text{PPM}_{10} (\text{model}) + 0,7548 * \text{PPM}_{10} (\text{metingen}) - 5,1143 \text{ (voor alle stations behalve Borgerhout).}$$

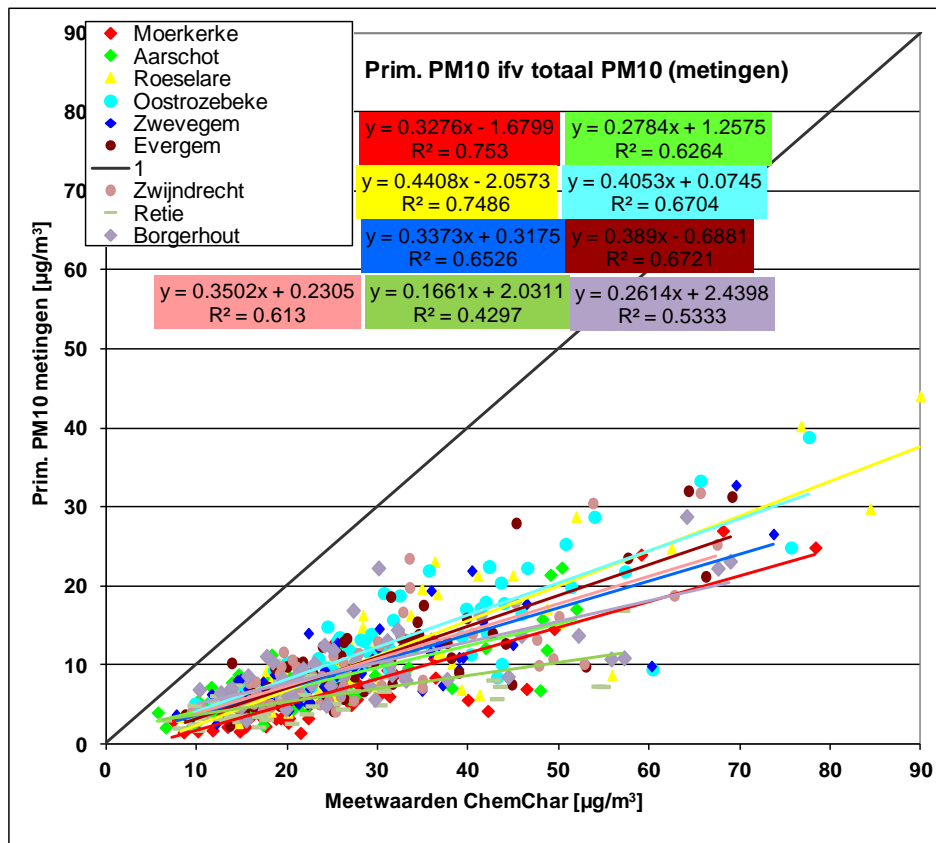
Door het bepalen van deze bias tussen model en meting en het bijtellen ervan op de modelresultaten wordt de volgende plot verkregen (Figuur 39).



Figuur 39: Gekalibreerd PPM<sub>10</sub> via een biascorrectie op basis van PPM<sub>10</sub> metingen

Deze kalibratiemethode zou dus gebruik maken van de PPM<sub>10</sub>-metingen van elke dag, waardoor ze alleen toegepast zou kunnen worden in het geval er PPM<sub>10</sub>-metingen beschikbaar zijn. Deze zijn uiteraard alleen beschikbaar tijdens speciale meetcampagnes zoals de Chemkarcampagnes. Omdat dus PPM<sub>10</sub>-metingen niet voor elke dag/elke locatie beschikbaar zijn maar we aannemen kunnen dat dit via het RIO-interpolatiemodel wel het geval is voor PM<sub>10</sub> werd onderzocht of er niet een bias kan berekend worden op basis van de PM<sub>10</sub>- (en niet de PPM<sub>10</sub>-) metingen.

Hiervoor werd onderzocht of de metingen van PM<sub>10</sub> en PPM<sub>10</sub> niet in voldoende mate gecorreleerd zijn om de PM<sub>10</sub>-metingen te kunnen gebruiken voor kalibratiedoeleinden. PM<sub>10</sub>-metingen zijn in principe voor elke dag en elke PM<sub>10</sub>-meetstation beschikbaar. Bijkomend, zou het de bedoeling zijn om (in kader van een ander project) een kalibratie voor alle Belgische BelEUROS-gridcellen uit te voeren zo zou dit kunnen op basis van de RIO PM<sub>10</sub>-kaarten die PM<sub>10</sub>-concentraties voor alle Belgische BelEUROS-gridcellen bevatten. Voor retrospectieve berekeningen van de chemische samenstelling van PM<sub>10</sub> bestaat er dus geen reden deze PM<sub>10</sub>-metingen (of RIO-kaarten) niet te gebruiken. Figuur 40 toont duidelijk aan dat de PM<sub>10</sub>- en de PPM<sub>10</sub>-metingen voor alle meetstations in voldoende mate gecorreleerd zijn. De kalibratie van de PPM<sub>10</sub>-modelwaarden kan dus uitgevoerd worden op basis van de bias tussen model en meetwaarden en de gemeten PM<sub>10</sub>-concentraties.



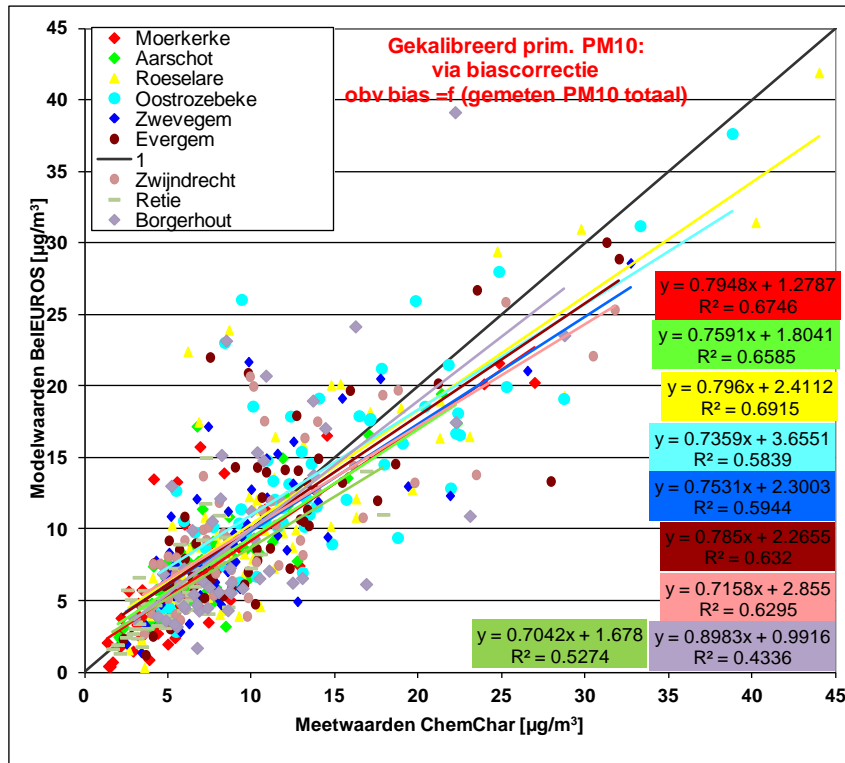
Figuur 40: Correlatie tussen de gemeten PPM<sub>10</sub>-concentraties in functie van de gemeten PM<sub>10</sub>-concentraties

$$\text{PPM}_{10} (\text{gekalibreerd model}) = \text{PPM}_{10} (\text{model}) + \text{Bias}$$

$$= \text{PPM}_{10} (\text{model}) + 0,7548 * \text{PPM}_{10} (\text{metingen}) - 5,1143$$

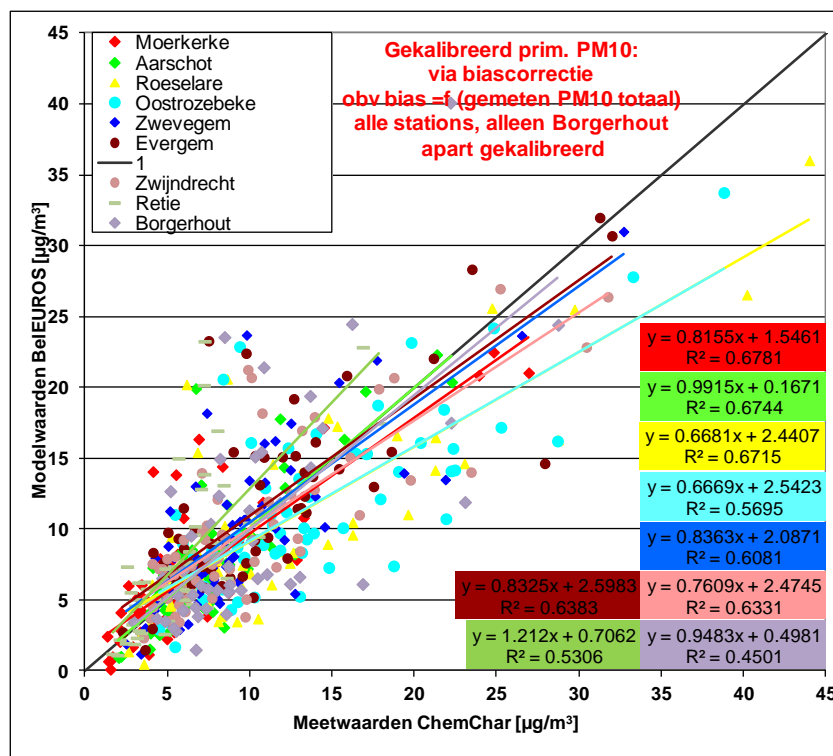
$$= \text{PPM}_{10} (\text{model}) + 0,7548 * (0,3742 * \text{PM}_{10} (\text{metingen}) - 0,7642) - 5,1143$$

Figuur 41 toont het resultaat van de kalibratieoefening, namelijk een scatterplot van de gekalibreerde gemodelleerde PPM<sub>10</sub>-concentraties t.o.v. de PPM<sub>10</sub>-metingen, waarbij de modelwaarden gekalibreerd werden gebruikmakend van de gemeten PM<sub>10</sub>-concentraties. Elk station werd hierbij apart gekalibreerd.



Figuur 41: Kalibratie van PPM<sub>10</sub>: Biascorrectie op basis van de gemeten PM<sub>10</sub>-concentraties: aparte kalibratie voor elk station

Gebruiken we voor Moerkerke, Aarschot, Roeselare, Oostrozebeke, Zwevegem, Evergem, Zwijndrecht en Retie dezelfde kalibratiefunctie en kalibreren alleen Borgerhout apart krijgen we Figuur 42.

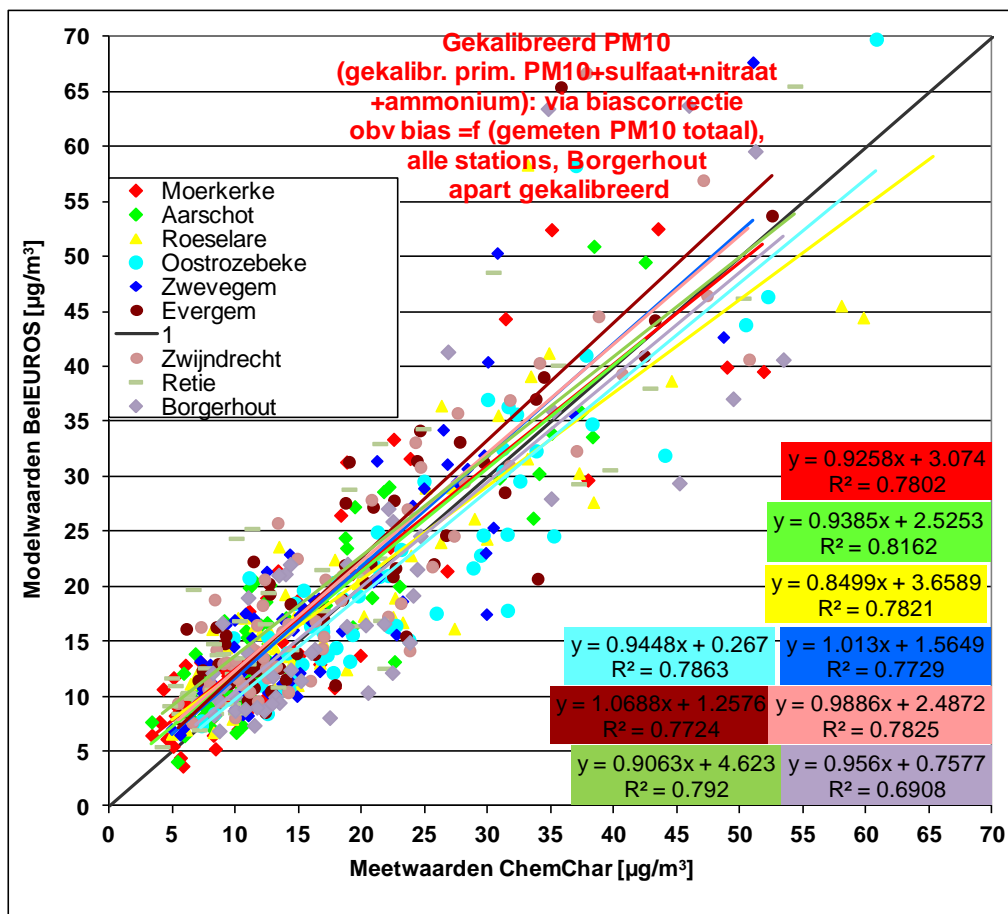


Figuur 42: Kalibratie van PPM<sub>10</sub>: Biascorrectie op basis van de gemeten PM<sub>10</sub>-concentraties: één functie voor alle meetstations behalve Borgerhout



Het feit dat er een aparte kalibratie noodzakelijk lijkt voor Borgerhout is op zich logisch omdat dat een lokale hotspot is waarvoor BeIEUROS niet gemaakt is.

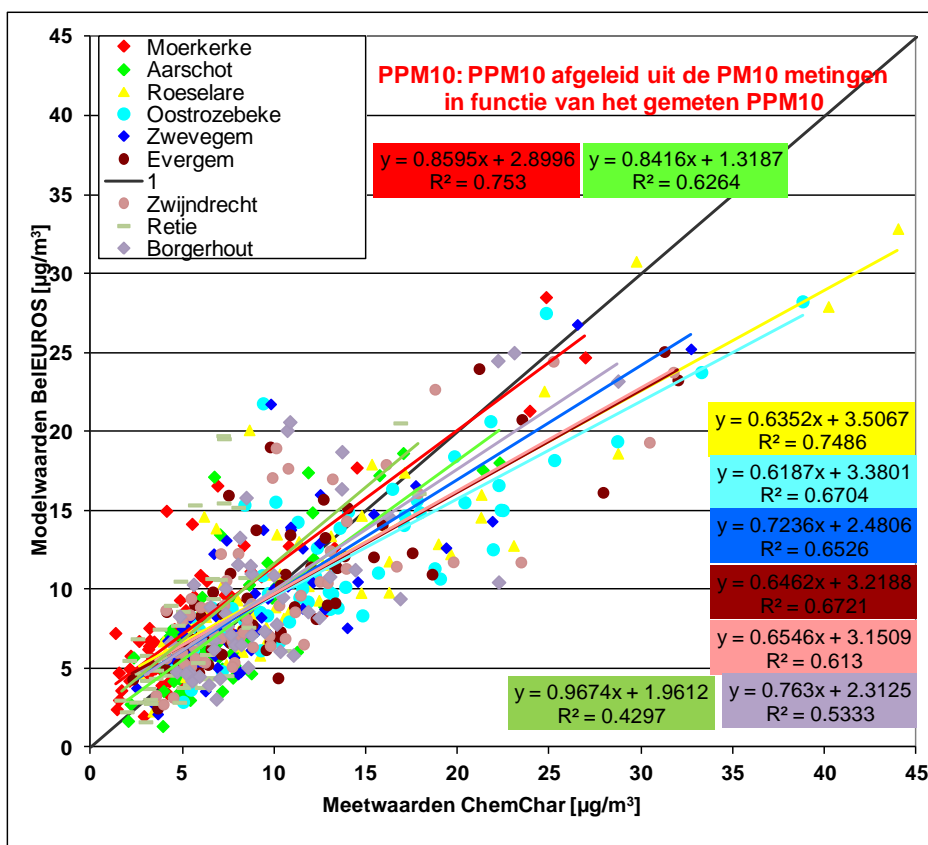
Voor de PM<sub>10</sub>-concentraties wordt er met deze kalibratie voor PPM<sub>10</sub> de volgende grafiek verkregen (Figuur 43). Hierbij werd zowel voor het model alsook de metingen de som gemaakt van de gekalibreerde PPM<sub>10</sub>-componenten en de (niet gekalibreerde) secundaire componenten ammonium, nitraat en sulfaat. Het betreft dus eigenlijk niet de totale PM<sub>10</sub>-concentratie maar PM<sub>10</sub> zonder zeezout en zonder de restfractie, in het vervolg PM<sub>10</sub>\* genoemd. Het resultaat toont dat quasi alle systematische onder- en overschattingen van de meetwaarden verdwenen zijn door de toegepaste kalibratie.



Figuur 43: Kalibratie van PM<sub>10</sub>: Som van ammonium, nitraat en sulfaat (niet gekalibreerd) en de PPM<sub>10</sub>-componenten (gekalibreerd); gebruik van een aparte kalibratiefunctie voor Borgerhout

Bij deze kalibratiemethode voor PPM<sub>10</sub> stelt zich echter de vraag of het model eigenlijk nog een meerwaarde heeft gezien bij deze vorm van kalibratie de gemeten PM<sub>10</sub>-concentraties per dag gebruikt worden om de modelwaarde te corrigeren. Zou met andere woorden een inschatting van de PPM<sub>10</sub>-concentraties puur op basis van de dagelijkse PM<sub>10</sub>-metingen niet een even goed resultaat opleveren?

Figuur 44 toont een inschatting van de PPM<sub>10</sub>-concentraties puur op basis van de dagelijkse PM<sub>10</sub>-metingen en de gevonden correlatie tussen de metingen van PPM<sub>10</sub> en PM<sub>10</sub>.



Figuur 44: Inschatting van PPM<sub>10</sub> op basis van de PM<sub>10</sub>-metingen en de correlatie tussen de PPM<sub>10</sub>- en PM<sub>10</sub>-metingen

Vergelijken we dit resultaat met het resultaat van het gekalibreerde model (Figuur 42) zo moeten we besluiten dat het gekalibreerde model quasi geen toegevoegde waarde heeft t.o.v. een berekening van PPM<sub>10</sub> rechtstreeks op basis van de gemeten PM<sub>10</sub>-concentratie van het betreffende station.

## 2.2 Bepaling van de modelonzekerheid

In dit hoofdstuk wordt de modelonzekerheid op de daggemiddelde concentraties bepaald ("expanded uncertainty"), en dit zowel voor telkens de volledige dataset en de dataset zonder het meetstation van Borgerhout omdat de kalibratiefunctie voor deze locatie sterk verschilt van deze voor de andere stations.

De onzekerheid is uitgedrukt in % bij het gemiddelde. De waarde "2u" komt min of meer overeen met het 95 % confidentie-interval op de daggemiddelde concentraties en is dus de waarde die doorgaans gerapporteerd wordt. Voor automatische PM-metingen wordt deze 2u-waarde getoetst aan 25 % bij 50 µg/m<sup>3</sup>.

Tabel 4 toont de resultaten van de berekeningen, waarbij voor sulfaat, nitraat en ammonium niet-gekalibreerde waarden en voor PPM<sub>10</sub> gekalibreerde waarden gebruikt worden.

Tabel 4: Berekening van de modelonzekerheid op basis van daggemiddelde concentraties voor de verschillende chemische componenten

	Sulfaat	Nitraat	Ammonium	PPM <sub>10</sub>	PM <sub>10</sub> *
Gemiddelde meetwaarde	2,78	4,4	1,53	9,5	18,2

[ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]					
u	41 %	86 %	101 %	44 %	35 %
<b>2u</b>	<b>82 %</b>	<b>172 %</b>	<b>202 %</b>	<b>88 %</b>	<b>69 %</b>
u (excl. Borgerhout)	35 %	84 %	96 %	41 %	33 %
<b>2u (excl. Borgerhout)</b>	<b>70 %</b>	<b>168 %</b>	<b>192 %</b>	<b>81 %</b>	<b>66 %</b>

PM<sub>10</sub>\*: Dit komt overeen met PM<sub>10</sub>, maar zonder zeezout en zonder de restfractie

De kalibratiefunctie voor PPM<sub>10</sub> werd opgesteld gebruikmakend van de gegevens van de Chemkar II campagne. Het zou interessant zijn om na te gaan in hoeverre deze kalibratie algemeen kan toegepast worden ook voor andere locaties en andere jaren, dus hoe goed de kalibratie opgesteld voor Chemkar II bruikbaar is voor bijvoorbeeld een kalibratie voor de data van Chemkar III. De grote van het verschil in correctie van jaar tot jaar zal uiteraard ook meespelen in de algemene onzekerheid van het model. Dit aspect zou vooral belangrijk zijn om bijvoorbeeld te bepalen hoe bruikbaar het model is bij voorspellingen (dag per dag, geen scenario-voorspellingen). Omwille van tijdsgebrek kon deze analyse echter niet meer uitgevoerd worden.

Het feit dat zeezout en de restfractie niet meegenomen werden bij de bepaling van de modelonzekerheid, maakt wel dat we op zich niet kunnen stellen dat het model daggemiddelde PM<sub>10</sub>-concentraties berekent met een onzekerheid van 69 %. Deze waarde is van toepassing op de PM<sub>10</sub>-concentraties zonder zeezout en de restfractie (PM<sub>10</sub>\*). Het niet berekende deel (ca. 9  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  gemiddeld over de hele Chemkar II-meetcampagne) zal ook bijdragen aan de onzekerheid maar het model is momenteel niet in staat (o.a. omwille van ontbrekende emissies) daar betrouwbare concentraties voor te berekenen.

Om de modelonzekerheid voor andere jaren te kennen zou deze oefening eigenlijk voor een redelijk aantal datasets (jaren) moeten uitgevoerd worden en de kalibratie o.b.v. Chemkar II (dit komt quasi overeen met het jaar 2009) telkens moeten toegepast worden op de data van bv. Chemkar III en andere metingen. Dit zou een beeld geven van de algemene onzekerheid van het model.

Een cross-validatie (bv. leaving-one-out methode) geeft mogelijk een antwoord op de vraag hoe toepasbaar het model is voor andere locaties. Dit vraagt dan wel een algemene aanpak m.b.t. kalibratie, ook voor Borgerhout. Voor Borgerhout zou een model met één kalibratiefunctie sowieso slechter scoren als het model met een aparte kalibratiefunctie voor Borgerhout. Omwille van de aparte situatie op deze locatie is een "algemeen model" op zich dus niet bruikbaar voor Borgerhout of voor gelijkaardige hotspots.

De belangrijkste conclusies van de bepaling van de modelonzekerheid op basis van de daggemiddelde model- en meetwaarden zijn dus:

- De huidige modelaanpak geeft een onzekerheid van 69 % op een PM<sub>10</sub>\*-dagwaarde in 2009 en waarschijnlijk nog een stuk meer op een totaal PM<sub>10</sub>-dagwaarde in 2009.
- De juistheid en onzekerheid van het model voor andere jaren kunnen we niet inschatten. Een test op de dataset van Chemkar III zou hiervoor wel een indicatie kunnen geven.
- De juistheid en onzekerheid van het model voor andere plaatsen kennen we ook nog niet. Dit zou kunnen ingeschat worden aan de hand van een cross-validatie.

### **3 Berekening van de bijdragen van de chemische subcomponenten van PM<sub>10</sub>**

#### **3.1 Inleiding**

In het derde hoofdstuk van dit rapport wordt de chemische karakterisatie van PM<sub>10</sub> uitgevoerd voor de periode van de Chemkar II-metingen voor de hele meetperiode, dus ook voor de dagen waarop geen metingen van de chemische samenstelling uitgevoerd werden. Op basis van de 9 chemische componenten van het model worden uur per uur de bijdragen per component berekend. Deze berekeningen worden uitgevoerd op het 7,5 km grid van BeEUROS. Vervolgens worden deze bijdragen geaggregeerd om ook de daggemiddelde bijdragen te berekenen.

Hierbij worden dus, zoals boven beschreven, de componenten nitraat, sulfaat en ammonium niet gekalibreerd en de primaire PM<sub>10</sub>-componenten worden volgens de boven beschreven methode gekalibreerd. De som van nitraat, sulfaat, ammonium en de gekalibreerde PPM<sub>10</sub>-componenten wordt beschouwd als de (gekalibreerde) PM<sub>10</sub>\*-concentratie zonder zeezout en zonder de (in de metingen chemisch niet-geïdentificeerde) restfractie.

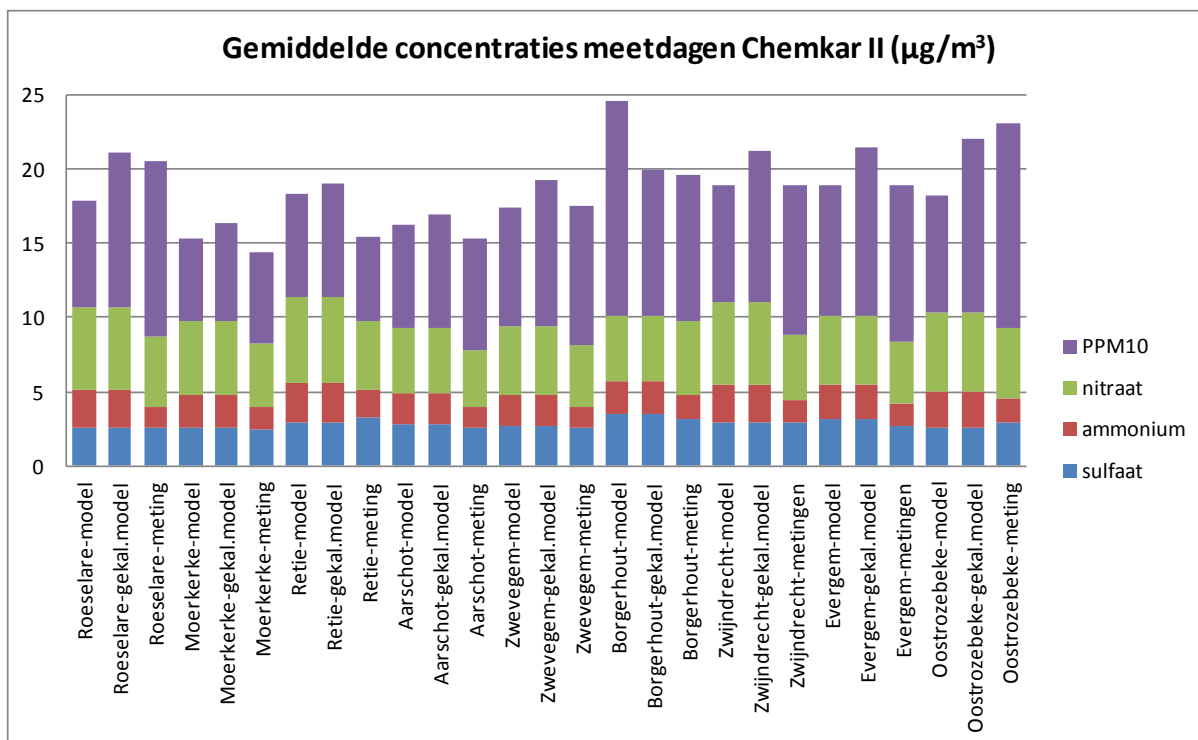
De voor de kalibratie benodigde PM<sub>10</sub>-concentraties van de relevante meetstations zijn afkomstig van de IRCEL-databank.

#### **3.2 Berekening van de chemische subcomponenten van PM<sub>10</sub> voor de periode 25/10/2008 – 2/11/2009**

Figuur 45 toont de vergelijking van de over de hele Chemkar II campagne gemiddelde concentraties PPM<sub>10</sub>, ammonium, nitraat en sulfaat en dit op basis van:

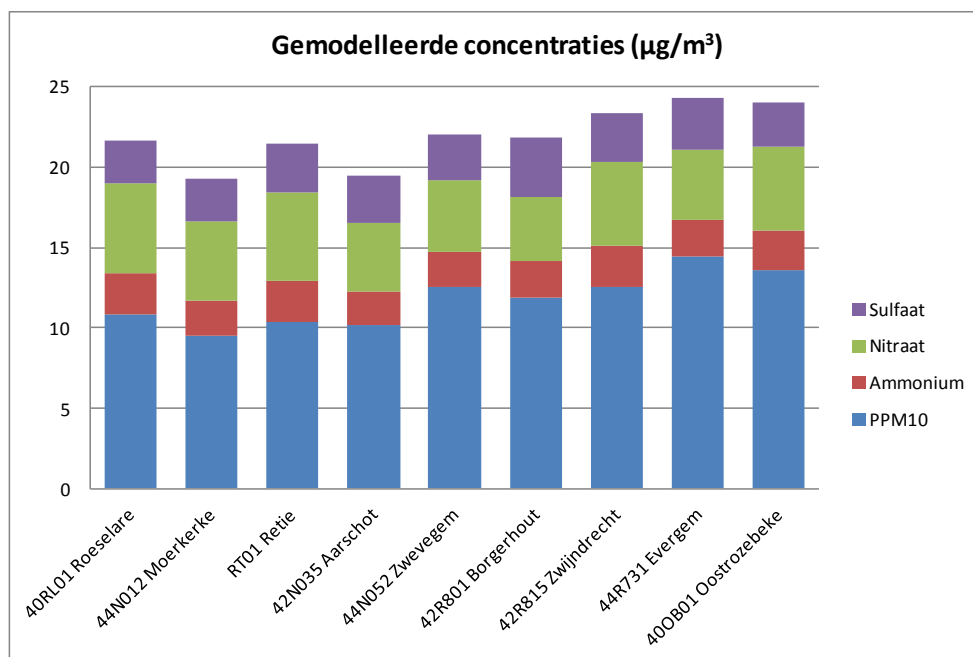
- het (niet-gekalibreerde) model,
- het (voor PPM<sub>10</sub>) gekalibreerde model en
- de meetwaarden.

Omdat alleen PPM<sub>10</sub> gekalibreerd werd heeft de kalibratie geen invloed op de concentraties van de secundaire anorganische componenten. Voor PPM<sub>10</sub> is duidelijk een betere overeenkomst tussen het gekalibreerde model en de metingen.



Figuur 45: Gemiddelde concentraties voor de meetdagen van Chemkar II per meetlocatie voor PPM<sub>10</sub>, nitraat, ammonium en sulfaat telkens voor het niet-gekalibreerde model, voor het gekalibreerde model en op basis van de metingen

Figuur 46 toont de berekende concentraties alleen voor het gekalibreerde model, maar wel voor de hele periode oktober 2008 t.e.m. november 2009 en niet de concentraties specifiek op de meetdagen van de Chemkar II campagne (één meting om de 6 dagen).



Figuur 46: Gemiddelde gemodelleerde concentraties van PPM<sub>10</sub>, ammonium, nitraat en sulfaat voor de 9 meetlocaties voor de volledige periode oktober 2008 t.e.m. november 2009

Er zijn bepaalde verschillen zichtbaar tussen de resultaten voor de meetdagen en de resultaten voor de hele periode, maar deze verschillen zijn al bij al klein. We kunnen dus aannemen dat de chemische samenstelling vastgesteld op de Chemkar II-meetdagen representatief is voor het (jaar)gemiddelde over de hele periode oktober 2008 t.e.m. november 2009.

Vervolgens hebben we een analyse uitgevoerd van de bijdrage (%) per chemische component aan de gemodelleerde PM<sub>10</sub>\*-concentraties (= som van PPM<sub>10</sub>, ammonium, nitraat en sulfaat) voor 9 meetlocaties voor de periode 25/10/2008 – 2/11/2009. Getoond is telkens het aantal dagen met daggemiddelde gemeten PM<sub>10</sub>-concentratie groter dan 50 µg/m<sup>3</sup> (“overschrijdingsdagen”), de gemiddelde bijdrage over de hele periode (“gem.”) en de gemiddelde bijdrage van de respectievelijke component op de overschrijdingsdagen in deze periode (“o.d.”).

Het blijkt echter dat de conclusies die we kunnen/moeten trekken uit deze analyse afhangen van de beslissing of we het gekalibreerde of het niet-gekalibreerde model gebruiken. Ergens is dit ook logisch, omdat het model PPM<sub>10</sub> vooral op dagen met hoge (P)PM<sub>10</sub>-concentratie onderschat, op dagen met lage (P)PM<sub>10</sub>-concentratie daarentegen niet onderschat of zelfs overschat. De kwestie van al dan niet kalibreren heeft hierop een belangrijke invloed.

Tabel 5 toont de resultaten verkregen met het gekalibreerde model en tabel 6 de resultaten verkregen met het niet-gekalibreerde model.

Tabel 5: Analyse van de bijdrage (%) per chemische component aan de gemodelleerde PM<sub>10</sub>\*-concentraties voor 9 meetlocaties voor de periode 25/10/2008 – 2/11/2009: Aantal dagen met daggemiddelde gemeten PM<sub>10</sub>-concentratie groter dan 50 µg/m<sup>3</sup> (“overschrijdingsdagen”); gem: gemiddelde bijdrage over de hele periode; o.d.: gemiddelde bijdrage van de respectievelijke component op de overschrijdingsdagen in deze periode; resultaten voor het gekalibreerde model

Component	40RL01 Roeselare	44N012 Moerkerke	RT01 Retie	42N035 Aarschot	44N052 Zwevegem	42R801 Borgerhout	42R815 Zwijndrecht	44R731 Evergem	40OB01 Oostrozebeke
# overschrijdingsdagen	30	38	29	31	47	44	48	61	60
PPM <sub>10</sub> (gem.)	50	50	48	53	58	55	55	60	57
PPM <sub>10</sub> (o.d.)	60	57	61	65	63	59	61	63	62
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> (gem.)	12	11	12	10	9	10	10	9	10
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> (o.d.)	10	10	9	9	9	10	9	9	9
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> (gem.)	24	23	24	19	19	17	20	16	20
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> (o.d.)	22	25	20	17	19	17	20	17	20
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (gem.)	14	16	16	17	14	19	14	15	13
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (o.d.)	9	8	9	10	10	14	9	11	9

Tabel 6: Analyse van de bijdrage (%) per chemische component aan de gemodelleerde PM10\*-concentraties voor 9 meetlocaties voor de periode 25/10/2008 – 2/11/2009: Aantal dagen met daggemiddelde gemeten PM10-concentratie groter dan 50 µg/m3 (“overschrijdingsdagen”); gem: gemiddelde bijdrage over de hele periode; o.d.: gemiddelde bijdrage van de respectievelijke component op de overschrijdingsdagen in deze periode; resultaten voor het niet-gekalibreerde model

Component	40RL01 Roeselare	44N012 Moerkerke	RT01 Retie	42N035 Aarschot	44N052 Zwevegem	42R801 Borgerhout	42R815 Zwijndrecht	44R731 Evergem	40OB01 Oostrozebeke
# overschrijdingsdagen	30	38	29	31	47	44	48	61	60
PPM <sub>10</sub> (gem.)	48	47	46	51	53	64	50	55	51
PPM <sub>10</sub> (o.d.)	42	34	42	46	46	60	43	48	45
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> (gem.)	12	12	12	11	10	8	11	10	11
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> (o.d.)	14	15	14	13	13	10	14	12	13
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> (gem.)	26	25	25	21	21	14	23	19	23
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> (o.d.)	31	37	30	26	27	17	29	24	29
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (gem.)	14	16	16	17	16	14	15	16	15
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (o.d.)	12	13	14	15	14	13	14	16	13

Toename of afname per component op overschrijdingsdagen t.o.v. de jaargemiddelde bijdrage is voor het gekalibreerde model t.o.v. het niet-gekalibreerde model voor alle componenten tegenstrijdig. Zo vinden we met het gekalibreerde model hogere bijdragen voor PPM<sub>10</sub> op overschrijdingsdagen dan jaargemiddeld, terwijl het niet-gekalibreerde model net het omgekeerde resultaat oplevert. Voor ammonium vinden we met het niet-gekalibreerd model licht hogere bijdragen op overschrijdingsdagen en met het gekalibreerde model iets lagere bijdragen. Voor nitraat vinden we met het niet-gekalibreerd model duidelijk hogere bijdragen op overschrijdingsdagen dan op het jaargemiddelde terwijl met het gekalibreerde model geen significante verschillen gevonden tussen de jaargemiddelde bijdrage en deze op overschrijdingsdagen. Tenslotte voor sulfaat vinden we met het niet-gekalibreerde model iets lagere bijdragen op overschrijdingsdagen t.o.v. de jaargemiddelde bijdrage en met het gekalibreerde model duidelijk lagere bijdragen op overschrijdingsdagen.

De vraag stelt zich dus welk resultaat is realistischer? Enerzijds weten we dat het niet-gekalibreerde model met zekerheid de PPM<sub>10</sub>-concentraties onderschat, vooral op overschrijdingsdagen. Dat het niet-gekalibreerde model een lager percentage PPM<sub>10</sub> berekent voor de overschrijdingsdagen is dan ook logisch en we weten dat dit zo niet klopt. Anderzijds kunnen we momenteel niet uitsluiten dat er niet door de kalibratie een artefact ontstaat die verantwoordelijk kan zijn voor het resultaat dat in het gekalibreerde model het percentage PPM<sub>10</sub> duidelijk hoger is op overschrijdingsdagen t.o.v. de jaargemiddelde bijdrage.

Op dit moment lijkt het enige zinvolle besluit bij deze resultaten te zijn dat de modelonzekerheid te groot is om betrouwbare resultaten te berekenen voor de chemische componenten specifiek op overschrijdingsdagen.

We zouden echter wel kunnen proberen deze analyse uit te voeren op basis van de Chemkar II-meetcampagne. Hierbij stoten we echter ook op problemen. Het aantal metingen op overschrijdingsdagen was tijdens de Chemkar II campagne in het algemeen (zeer) laag. Bijvoorbeeld in Aarschot waren er in de periode 25/10/2008 – 2/11/2009 in totaal 31 overschrijdingsdagen van de PM<sub>10</sub>-dagnorm, waarvan alleen op 2 dagen (= 6,5 %) Chemkar-metingen uitgevoerd werden. In de periode van het typische wintersmog (bijvoorbeeld de periode 1/12/2008 – 31/01/2009) waren er 15 overschrijdingsdagen in Aarschot, waarvan op geen enkele dag Chemkar-metingen uitgevoerd werden.

Het percentage van overschrijdingsdagen met metingen is (toevallig) zeer uiteenlopend per locatie, bijvoorbeeld in Retie/Dessel werd er op 7 van de 29 overschrijdingsdagen gemeten, in Aarschot op 2 van de 31 en in Zwevegem op 4 van de 47. Hierdoor kan er een vertekend beeld ontstaan. Zouden we dus de bijdrage van PPM<sub>10</sub> op overschrijdingsdagen inschatten op basis van de Chemkar II-metingen dan dient hierbij opgemerkt worden dat er maar heel weinig metingen waren op overschrijdingsdagen en dat zo'n inschatting dan ook vrij onzeker is. Ook het feit dat de wintersmogperiode eigenlijk voor een groot stuk ontbreekt in de Chemkar II-metingen maakt dat we geen representatieve weergave van de verschillende mogelijke oorzaken van dergelijke overschrijdingen hebben.

Hieruit moeten we concluderen dat we noch op basis van het model noch op basis van de Chemkar II-metingen een betrouwbaar uitspraak kunnen doen over de verschillen in chemische samenstelling op de overschrijdingsdagen van de Chemkar II-campagne t.o.v. de jaargemiddelde chemische samenstelling. Zo'n analyse zou waarschijnlijk wel betrouwbare resultaten opleveren wanneer we de resultaten van alle 4 Chemkar-meetcampagnes voor alle locaties zouden samennemen. Hieruit zouden we conclusies kunnen trekken m.b.t. de algemene, quasi overal optredende overschrijdingsdagen. De oorzaken van lokale overschrijdingen zijn echter veel moeilijker te achterhalen.

#### **4 Analyse van de oorzaken van de PM<sub>10</sub>-overschrijdingen voor de periode 25/10/2008-2/11/2009**

##### **4.1 Inleiding**

Ondanks de in het vorige hoofdstuk beschreven onzekerheden i.v.m. de kwestie of het gekalibreerde model of het niet-gekalibreerde model betrouwbaardere resultaten oplevert wordt er in dit vierde hoofdstuk van het rapport een poging gedaan om een analyse uit te voeren van de jaargemiddelde Vlaamse bijdrage per chemische subcomponent en van de Vlaamse bijdrage per subcomponent specifiek op overschrijdingsdagen. Er werd enkel gebruik gemaakt van het **niet-gekalibreerde model** omdat er voor de inschatting van de Vlaamse bijdrage een modelberekening uitgevoerd werd met gereduceerde Vlaamse emissies. De toegepaste kalibratiemethode via het optellen van de bias voor PPM<sub>10</sub> (die bepaald werd voor een berekening met alle Vlaamse emissies) mag zeker niet (zomaar) toegepast worden om de PPM<sub>10</sub>-concentraties van een berekening met gereduceerde Vlaamse emissies te corrigeren.

Om deze reden is het aangeraden om voor EC, OC, de minerale fractie en PPM<sub>10</sub> vooral naar de resultaten voor de gemiddelde Vlaamse bijdrage te kijken en weinig aandacht te besteden aan de berekende Vlaamse bijdragen op overschrijdingsdagen. Bij deze laatste speelt immers de



onderschatting van de PPM<sub>10</sub>-concentraties op dagen met hoge PM<sub>10</sub>-concentraties een mogelijks belangrijke rol, waardoor de betrouwbaarheid van deze resultaten momenteel maar moeilijk in te schatten is. De resultaten voor deze componenten worden in de volgende tabel daarom alleen met lichtgrijze kleur getoond en dienen slechts ter informatie. De resultaten voor de secundaire PM<sub>10</sub>-componenten zijn door de onderschatting van PPM<sub>10</sub> niet betroffen omdat we hier (in tegenstelling tot hoofdstuk 3) geen bijdragen berekenen t.o.v. de totale PM<sub>10</sub>-concentraties, die uiteraard wel beïnvloed zijn door de PPM<sub>10</sub>-concentraties.

Deze analyse kan waardevolle informatie verstrekken voor het bronnenonderzoek en kan aantonen welke emissiereductiestrategieën effectief zouden leiden tot een vermindering van het aantal overschrijdingsdagen. In functie van de locatie en van de tijd van het jaar dragen mogelijks verschillende oorzaken bij aan de waargenomen overschrijdingen. Tot nu toe werden de Vlaamse en de buitenlandse bijdragen aan de PM<sub>10</sub>-concentraties in Vlaanderen immers alleen berekend op jaargemiddelde basis. Het is echter te verwachten dat de bijdragen op overschrijdingsdagen verschillend zijn van de jaargemiddelde bijdragen.

Door de al bij al relatief lage bijdrage van Vlaamse emissies aan de fijnstofconcentraties in Vlaanderen (ongeveer 25 % van de gemodelleerde PM<sub>10</sub>-concentraties op jaarbasis) zijn de emissies die uiteindelijk verantwoordelijk zijn voor de overschrijdingen mogelijks voor een groot deel afkomstig van niet-Vlaamse bronnen. Anderzijds is de Vlaamse bijdrage mogelijks (veel) hoger op overschrijdingsdagen dan op jaargemiddelde basis, al dan niet afhankelijk van de component in kwestie. Primaire fijnstofemissies en ook ammoniakemissies zorgen immers voor verhoogde concentraties fijn stof in de rechtstreekse omgeving van de bronnen. Deze vraag werd onderzocht in dit hoofdstuk door de resultaten van een modelberekening met 20 % verminderde Vlaamse emissies te analyseren met bijzondere aandacht voor de overschrijdingsdagen van de PM<sub>10</sub>-dagnorm.

In deze analyse werden ook de Vlaamse bijdragen van de componenten EC, OC en mineraal PM<sub>10</sub> meegenomen. Bij deze analyse worden immers alleen de relatieve bijdragen berekend, nl. de resultaten van een berekening met verminderde emissies vergeleken met deze van een berekening met alle Vlaamse emissies. Systematische over- of onderschattingen van de concentraties door het model zouden voor de berekening van een relatieve bijdrage maar een kleinere rol mogen spelen.

Typische situaties die aanleiding geven tot hoge daggemiddelde PM<sub>10</sub>-concentraties zijn stabiele weersomstandigheden in de winter en in de lente. Door de slechte vermenging van de onderste luchtlagen komt het tot een opstapeling van primaire stofemissies en van bepaalde secundaire componenten zoals ammoniumnitraat, dat door de lage temperaturen stabiel is. In de lente doen zich ook (bijna) elk jaar episodes met hoge PM<sub>10</sub>-concentraties voor die waarschijnlijk veroorzaakt worden door hoge concentraties secundaire componenten (ammoniumnitraat en ammoniumsulfaat) en die gelinkt kunnen worden aan tijdelijk verhoogde ammoniakemissies (bemesting).

Het aantal overschrijdingen van de PM<sub>10</sub>-dagnorm in 2011 en 2012 toont aan dat dit probleem nog niet opgelost is. De combinatie van hoge emissies en ongunstige meteorologische omstandigheden zorgt voor de vele overschrijdingen, omdat de ongunstige meteorologische omstandigheden voor een slechte verdunning van de luchtverontreiniging zorgen met hogere concentraties tot gevolg.

## 4.2 Vlaamse bijdragen van de verschillende chemische componenten aan de PM<sub>10</sub>-concentraties in Vlaanderen

Deze analyse werd uitgevoerd voor de periode 25/10/2008 t.e.m. 2/11/2009, dus voor het grootste deel van de meetperiode van de Chemkar II campagne.

In vroegere studies werd tot nu toe alleen de jaargemiddelde Vlaamse bijdrage aan de PM<sub>10</sub>-concentraties in Vlaanderen berekend. De bijdragen van de aparte chemische componenten en de Vlaamse bijdrage dag per dag werden echter tot nu toe nog niet berekend.

Tabel 7 toont de resultaten van de analyse van de Vlaamse bijdrage per chemische component voor de 9 meetlocaties van de Chemkar II campagne voor de periode 25/10/2008 – 2/11/2009. Berekend werd per meetlocatie het aantal dagen met daggemiddelde gemeten PM<sub>10</sub>-concentratie groter dan 50 µg/m<sup>3</sup> (“overschrijdingsdagen”) op basis van de gevalideerde PM<sub>10</sub>-metingen uit de IRCEL-databank. (Omdat er in Retie geen meetstation van het telemetrisch meetnet van VMM gelegen is werd het aantal overschrijdingsdagen berekend voor het station Dessel (42N016) en verondersteld dat de situaties in Retie en Dessel m.b.t. overschrijdingsdagen vergelijkbaar zijn.)

Tabel 7 toont per chemische component de gemiddelde Vlaamse bijdrage over de hele periode (“gem.”), de gemiddelde Vlaamse bijdrage op de overschrijdingsdagen in deze periode (“o.d.”) en tenslotte het relatieve verschil in Vlaamse bijdrage op overschrijdingsdagen t.o.v. de niet-overschrijdingsdagen van deze periode (“delta”). Deze resultaten werden verkregen gebruikmakend van het niet-gekalibreerde model. Omwille van de veel grotere onzekerheid op de Vlaamse bijdrage van de PPM<sub>10</sub>-componenten (EC, OC, mineraal stof en PPM<sub>10</sub>) worden de resultaten voor deze componenten voor de overschrijdingsdagen alleen getoond (ter informatie) in een lichtgrijze kleur.

Vóór de bespreking van de resultaten van deze oefening dient ook hier opgemerkt te worden dat er waarschijnlijk een aanzienlijke onzekerheid verbonden is aan deze resultaten, vooral omdat het hier berekeningen op dagbasis zijn. Ten eerste is de modelonzekerheid op de berekende concentraties significant hoger op dagbasis dan op jaarbasis. Ten tweede is waarschijnlijk de methode voor de berekening van de Vlaamse bijdrage niet altijd geschikt voor een berekening op dagbasis. We berekenen immers de pollutantconcentraties in Vlaanderen bij een emissiereductie van 20 % voor alle sectoren en pollutanten, bepalen het concentratieverschil met de berekening met alle Vlaamse emissies en vermenigvuldigen dit verschil met een factor vijf om de totale bijdrage van alle Vlaamse emissies te berekenen. Hierbij maken we de aanname dat er een lineair verband bestaat tussen de effecten op de PM<sub>10</sub>-concentraties van 20 % emissiedaling in Vlaanderen en de effecten van 100 % emissiedaling.

Voor de jaargemiddelde concentraties en bijdragen lijkt deze aanname gerechtvaardigd, zo bleek uit modelruns met verschillende percentages van emissiereducties. Hierbij werd inderdaad een lineair verband teruggevonden tussen de emissiereductie en de PM<sub>10</sub>-concentraties. Hier voeren we deze oefening echter uit op basis van daggemiddelde concentraties. De aanname van lineariteit tussen een 20 % emissiedaling en een 100 % emissiedaling lijkt dan veel minder gerechtvaardigd omdat zich er op dagbasis veel extremere concentratieverschillen tussen de pollutanten onderling voordoen. Dit heeft een impact op de beschikbaarheid van de precursoren wat op zijn beurt een invloed kan hebben op de vorming van de secundaire PM<sub>10</sub>-componenten. Een exacte inschatting van de onzekerheid op de berekende Vlaamse bijdragen op dagbasis is echter niet mogelijk. Een aanwijzing

hiervoor kan het feit zijn dat er op dagbasis, afhankelijk van de chemische component, voor een beperkt (!) aantal dagen ofwel een negatieve Vlaamse bijdrage ofwel een Vlaamse bijdrage van meer dan 100 % berekend wordt. Om deze reden is ook de onzekerheid op de Vlaamse bijdragen voor de secundaire PM<sub>10</sub>-componenten op dagbasis onderworpen aan een grote onzekerheid en moeten ook deze resultaten met de nodige omzichtigheid geïnterpreteerd worden. Ook deze resultaten worden in de volgende tabel alleen met lichtgrijze kleur getoond.

Tabel 7: Analyse van de Vlaamse bijdrage (%) per chemische component voor 9 meetlocaties voor de periode 25/10/2008 – 2/11/2009: Aantal dagen met daggemiddelde gemeten PM<sub>10</sub>-concentratie groter dan 50 µg/m<sup>3</sup> (“overschrijdingsdagen”); gem: gemiddelde Vlaamse bijdrage over de hele periode; o.d.: gemiddelde Vlaamse bijdrage op de overschrijdingsdagen in deze periode; delta: relatief verschil in Vlaamse bijdrage op overschrijdingsdagen t.o.v. niet-overschrijdingsdagen

Component	40RL01 Roeselare	44N012 Moerkerke	RT01 Retie	42N035 Aarschot	44N052 Zwevegem	42R801 Borgerhout	42R815 Zwijndrecht	44R731 Evergem	40OB01 Oostrozebeke
# overschrijdingsdagen	30	38	29	31	47	44	48	61	60
EC (gem.)	47	30	45	61	68	86	68	76	57
EC (o.d.)	55	32	48	67	70	89	70	80	63
EC (delta)	18	7	8	10	4	3	3	7	12
OC (gem.)	38	23	35	37	43	69	45	51	43
OC (o.d.)	52	29	44	48	54	78	53	63	55
OC (delta)	37	28	26	31	27	14	20	28	34
Min (gem.)	30	19	29	21	24	42	28	28	30
Min (o.d.)	43	26	40	33	35	58	35	41	42
Min (delta)	48	40	43	57	54	42	29	56	47
PPM <sub>10</sub> (gem.)	34	21	32	32	37	62	39	44	37
PPM <sub>10</sub> (o.d.)	48	27	42	44	49	73	47	57	49
PPM <sub>10</sub> (delta)	43	35	35	42	36	21	24	36	39
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> (gem.)	23	30	30	25	24	36	31	31	24
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> (o.d.)	11	21	15	14	18	35	17	32	15
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> (delta)	-54	-33	-51	-48	-28	0	-54	2	-43
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> (gem.)	25	35	38	30	22	33	35	29	26
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> (o.d.)	4	23	14	7	13	16	7	19	9
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> (delta)	-90	-37	-65	-83	-50	-58	-92	-44	-79
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (gem.)	9	6	14	13	13	27	15	19	12
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (o.d.)	22	12	18	23	23	46	27	37	21
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (delta)	142	111	32	82	92	78	89	112	95
PM <sub>10</sub> (gem.)	25	21	27	25	28	49	31	35	28
PM <sub>10</sub> (o.d.)	27	22	27	27	32	57	29	43	30
PM <sub>10</sub> (delta)	7	8	-2	9	18	18	-7	28	12

Een andere bron van onzekerheid is verbonden aan de gebruikte/beschikbare emissies. Het is zeer waarschijnlijk dat bepaalde emissiebronnen van primair fijn stof op dit moment niet of maar deels zijn opgenomen in de gebruikte emissie-inventarissen, waaronder de lokale bijdragen van opwaaiend bodemstof (al dan niet door wegverkeer), diffuse verkeeremissies, houtverbranding, op- en overslag van goederen ... Deze emissies zijn allemaal emissies van primair fijn stof en zouden, indien

opgenomen in de emissie-inventaris, waarschijnlijk zorgen voor een hogere Vlaamse bijdrage aan de  $PM_{10}$ -concentraties dan de berekende 25 % gemiddeld op jaarbasis gemiddeld over heel Vlaanderen. Primaire fijnstofemissies zorgen immers voor lokaal verhoogde  $PM_{10}$ -concentraties.

Voor EC vinden we de hoogste Vlaamse bijdrage van alle berekende componenten, en dit voor de meeste meetlocaties. EC is een primaire pollutant en wordt vooral uitgestoten door het wegverkeer, dus op lage hoogte. De Vlaamse bijdrage ligt op achtergrondlocaties bij ongeveer 45 % (alleen voor Moerkerke wordt er maar een Vlaamse bijdrage van 30 % berekend; dit is mogelijks te wijten aan het feit dat Moerkerke in het westen niet ver gelegen is van de Noordzee en in het noorden dichtbij de Nederlandse grens waardoor de Vlaamse bijdragen al bij al laag zijn). Op de eerder hotspot-achtige locaties worden Vlaamse bijdragen berekend tussen 60 % en 86 %, de laatste waarde voor Borgerhout. Op overschrijdingsdagen worden er tendentieel voor alle meetlocaties (nog) hogere Vlaamse bijdragen berekend dan op het jaargemiddelde, wat logisch lijkt gezien vele overschrijdingsdagen veroorzaakt worden door slechte verspreidingscondities in de atmosfeer, hetgeen leidt tot een opstapeling van lokaal veroorzaakte pollutie.

Verder is het interessant te zien dat het verschil in Vlaamse bijdrage tussen overschrijdingsdagen en niet-overschrijdingsdagen klein is voor EC t.o.v. de verschillen berekend voor de andere componenten. De Vlaamse bijdrage aan EC is gewoon altijd (zeer) hoog.

Voor OC liggen de berekende Vlaamse bijdragen tussen 23 % (Moerkerke) en 69 % (Borgerhout). Ook voor deze subcomponent van  $PM_{10}$  ligt de Vlaamse bijdrage dus duidelijk hoger dan de gemiddelde Vlaamse bijdrage van 27 % voor  $PM_{10}$  (uit de MIRA-studie rond de "Verklarende factoren voor evoluties in luchtkwaliteit"). OC hoort immers ook bij de primaire fijnstofcomponenten die (in tegenstelling tot de secundaire fijnstofcomponenten) in de rechtstreekse omgeving van de bronnen bijdragen aan de  $PM_{10}$ -concentraties. Op de overschrijdingsdagen neemt de gemiddelde Vlaamse bijdrage aan de OC-concentraties toe.

Ook de minerale fractie van  $PM_{10}$  hoort bij de chemische componenten met een eerder hoge Vlaamse bijdrage. We vinden voor deze component Vlaamse bijdragen tussen 19 % (Moerkerke) en 42 % (Borgerhout). Op overschrijdingsdagen vinden we ook voor deze chemische subcomponent significant hogere bijdragen.

Voor de totale concentratie aan primaire  $PM_{10}$ -componenten berekenen we jaargemiddelde Vlaamse bijdragen tussen 21 % (Moerkerke) en 62 % (Borgerhout). Op overschrijdingsdagen liggen deze bijdragen gemiddeld ongeveer 10 % hoger.

Kijken we nu naar de secundaire  $PM_{10}$ -componenten ammonium, nitraat en sulfaat dan krijgen we een significant ander beeld te zien. Voor het ammonium berekenen we voor 8 van de 9 meetlocaties een jaargemiddelde Vlaamse bijdragen tussen 23 % en 31 %. Alleen voor Borgerhout berekenen we een iets hogere Vlaamse bijdrage (36 %). De verschillen in Vlaamse bijdrage tussen achtergrondlocaties en hotspots zijn dus voor deze component veel kleiner dan voor de drie primaire componenten. Dit komt overeen met de bijdragen van deze componenten aan de  $PM_{10}$ -concentraties: De verschillen in  $PM_{10}$ -concentraties tussen achtergrondlocaties en hotspots is vooral te verklaren door verschillen in de primaire  $PM_{10}$ -concentraties terwijl de concentraties van de secundaire componenten niet erg verschillend zijn op achtergrond- en hotspotlocaties.

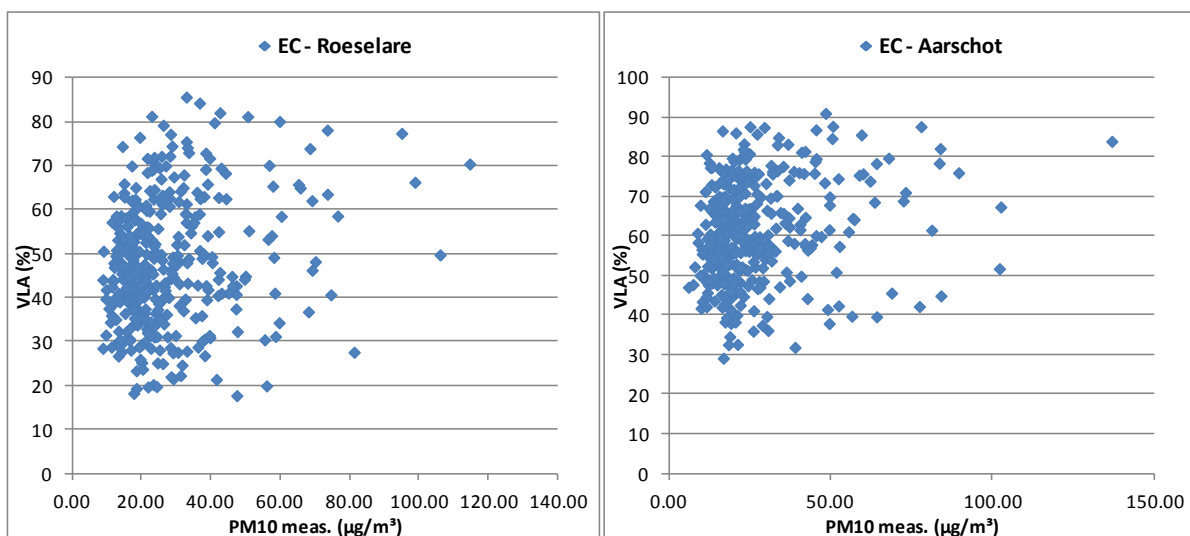
Verder zien we dat de Vlaamse bijdrage aan het ammonium op overschrijdingsdagen lager ligt dan de jaargemiddelde Vlaamse bijdrage.

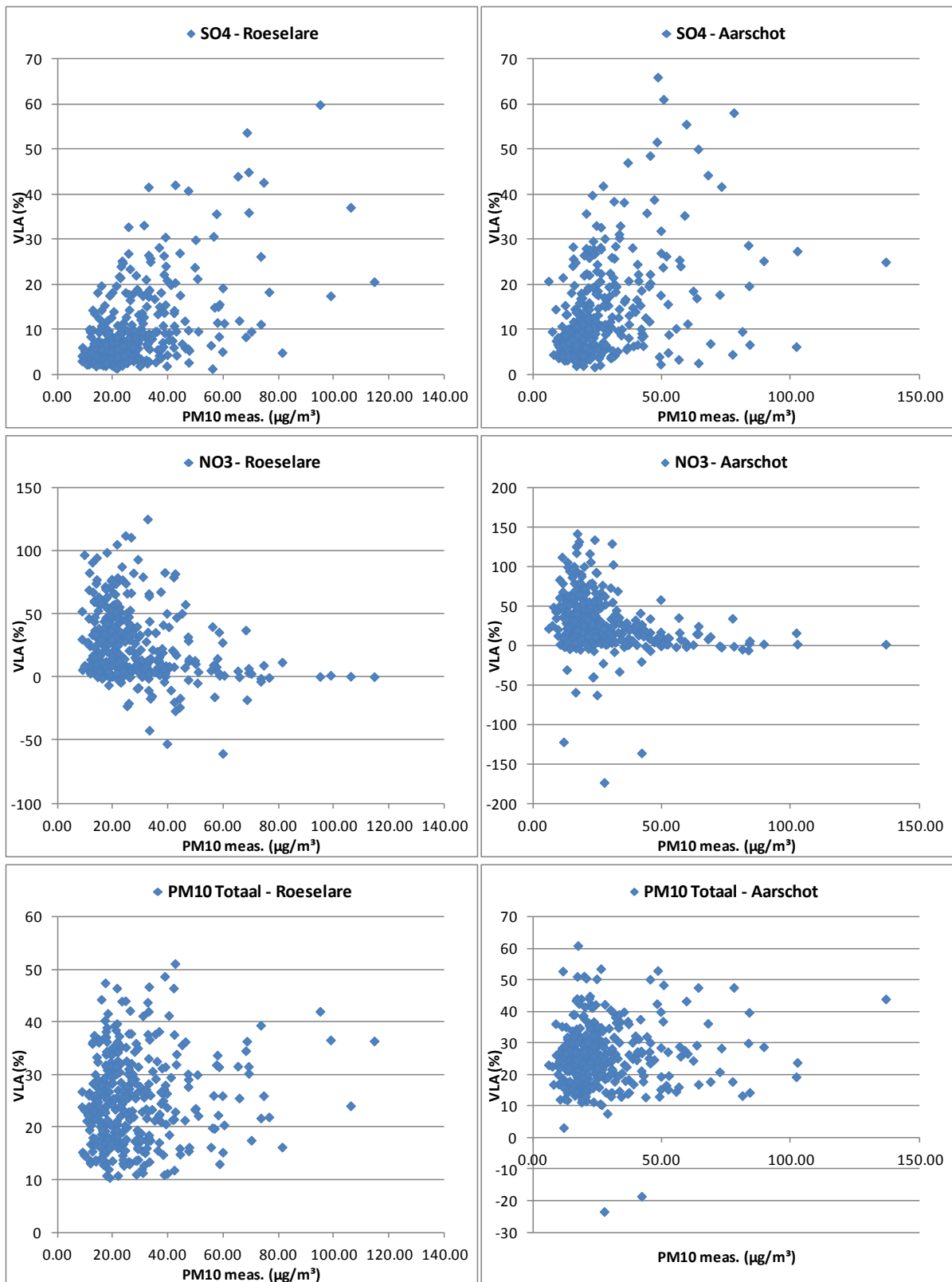
Voor het nitraat zien we iets grotere verschillen in Vlaamse bijdrage tussen achtergrondlocaties en hotspotlocaties. We vinden waarden tussen 22 % (Zwevegem) en 38 % (Retie). Op overschrijdingsdagen ligt de Vlaamse bijdrage op alle locaties lager dan op het jaargemiddelde.

Voor het sulfaat worden algemeen zeer lage jaargemiddelde Vlaamse bijdragen berekend, tussen 6 % (Moerkerke) en 27 % (Borgerhout). Op overschrijdingsdagen daarentegen ligt de Vlaamse bijdrage aan de sulfaatconcentratie beduidend hoger. Het zou dus kunnen dat de verhoging van de Vlaamse bijdrage op overschrijdingsdagen voor sulfaat en de vermindering ervan voor nitraat gelinkt zijn met elkaar. Mogelijks komt het door de vaak uitwisselarme weertypes tot een verschuiving van het evenwicht tussen nitraat en sulfaat ten voordele van sulfaat.

Voor de totale concentraties PM<sub>10</sub> zien we jaargemiddelde Vlaamse bijdragen tussen 21 % (Moerkerke) en 49 % (Borgerhout). Op de meeste locaties neemt de Vlaamse bijdrage op overschrijdingsdagen licht toe. Dit is dus het effect van enerzijds verhoogde bijdragen op overschrijdingsdagen voor de drie primaire componenten en voor sulfaat en anderzijds lagere bijdragen van ammonium en nitraat.

Figuur 47 toont de Vlaamse bijdrage (%) aan de concentraties van EC, sulfaat, nitraat en PM<sub>10</sub> voor de meetlocaties Roeselare en Aarschot in functie van de gemeten PM<sub>10</sub>-concentratie.





Figuur 47: Vlaamse bijdrage (%) aan de concentraties van EC, sulfaat, nitraat en PM10 voor de meetlocaties Roeselare en Aarschot in functie van de gemeten PM10-concentratie

## 5 Conclusies

Deze studie heeft aangetoond dat de modelonzekerheid voor de chemische subcomponenten van PM<sub>10</sub> op dagbasis nog behoorlijk hoog is, ook na een modeloptimalisatie en een kalibratie van de primaire PM<sub>10</sub>-componenten. Op jaargemiddelde basis zijn de onzekerheden waarschijnlijk veel lager.

De berekeningen van de bijdragen van de chemische componenten aan de PM<sub>10</sub>-concentraties heeft resultaten opgeleverd die in grote lijnen conform zijn met de conclusies van de Chemkar-meetcampagnes: De verschillen in PM<sub>10</sub>-concentraties tussen achtergrondlocaties en hotspotlocaties worden vooral veroorzaakt door verschillen in de concentraties van de primaire fijnstofcomponenten. De concentraties van de secundaire fijnstofcomponenten zijn ongeveer dezelfde op alle locaties.

De berekening van de Vlaamse bijdragen per chemische component op jaargemiddelde basis en voor de overschrijdingsdagen van de PM<sub>10</sub>-dagnorm heeft aangetoond dat er voor de primaire PM<sub>10</sub>-componenten significant hogere Vlaamse bijdragen berekend worden dan voor PM<sub>10</sub> (totaal). Vooral voor EC vinden we zeer hoge Vlaamse bijdragen, voor de locatie Borgerhout zelfs bijdragen van bijna 90 %. EC is hoogstwaarschijnlijk een van de meest gezondheidsgevaarlijke fracties van PM<sub>10</sub>. Dit resultaat toont dat de gezondheidseffecten verbonden aan deze EC-concentraties vooral door maatregelen in Vlaanderen effectief kunnen teruggedrongen worden (cfr. lage-emissie-zones, rekening rijden) of door Europese maatregelen die een groot impact hebben op de lokale luchtkwaliteit (cfr. partikelfilters voor dieselloertuigen). Bij uitbreiding geldt hetzelfde voor de andere primaire componenten, OC en de minerale fractie. Deze componenten vertonen allemaal hoge Vlaamse bijdragen en aan deze componenten worden ook hogere gezondheidsrisico's toegeschreven dan aan de secundaire fijnstofcomponenten. Het zijn deze laatste die voor de relatief lage Vlaamse bijdrage van "maar" 25 % voor PM<sub>10</sub> zorgen.

Al bij al is ook de berekening van de Vlaamse bijdragen onderworpen aan aanzienlijke onzekerheden. Ontbrekende of momenteel onderschatte primaire fijn stof emissies (bv. opwaaiend stof door het wegverkeer, stof afkomstig van houtverbranding, stof van op- en overslagactiviteiten) zorgen waarschijnlijk voor een onderschatting van de Vlaamse bijdrage aan de primaire fijnstofconcentraties en dus waarschijnlijk ook voor een onderschatting van de Vlaamse bijdrage aan de PM<sub>10</sub>-concentraties in Vlaanderen.

Het invullen van deze leemtes, vooral op het gebied van ontbrekende en onderschatte primaire fijnstofemissies, lijkt op dit moment prioritair te zijn. Belangrijke stappen hierin worden momenteel gezet met o.a. de recente studie rond de emissies van houtverbranding. Eens deze emissies opgenomen zijn in de officiële Vlaamse emissie-inventaris lijkt het zinvol opnieuw een modelvalidatie uit te voeren. Zolang er echter (waarschijnlijk) belangrijke emissiebronnen ontbreken in de inventarissen dienen de modelresultaten op beleidsniveau zeer omzichtig gebruikt te worden, bv. in kader van toetsing aan doelstellingen.

## Referenties

Builtjes PJH, van Loon M, Schaap M, Teeuwisse S, Visschedijk AH, Bloos JP (2003) Project on the modelling and verification of ozone reduction strategies: contribution of TNO-MEP. TNO-report, MEP-R2003/166, Apeldoorn, Nederland.

Derwent RG, Simmonds PG, Manning AJ, Spain TG (2007) Trends over a 20-year period from 1987 to 2007 in surface ozone at the atmospheric research station, Mace Head, Ireland, *Atmos. Environ.* **41**, 9091-9098.

Janssen NAH, Hoek G, Simic-Lawson M, Fischer P, van Bree L, ten Brink H, Keuken M, Atkinson RW, Anderson HR, Brunekreef B, Cassee FR (2011) Black carbon as an additional indicator of the adverse health effects of airborne particles compared with PM<sub>10</sub> and PM<sub>2.5</sub>, *Environmental Health Perspectives* **119**, 1691-1699.

Schaap M, Denier Van Der Gon HAC, Dentener FJ, Visschedijk AJH, Van Loon M, ten Brink HM, Putaud J-P, Guillaume B, Liousse C, Builtjes PJH (2004) Anthropogenic black carbon and fine aerosol distribution over Europe, *J. Geophys. Res.* **109**, D18207, doi:10.1029/2003JD004330.

Veldeman N, Peelaerts W, Deutsch F (2012) Opname EIL datawarehouse in E-MAP, VITO-rapport.

VMM (2010) Chemkar PM<sub>10</sub> 'hotspots': Chemische karakterisatie van fijn stof in Vlaanderen, 2008-2009.

VMM (2012) Lozingen in de Lucht 2011.

## Lijst van afkortingen

EC: elementair koolstof / elemental carbon

Nss: niet zeezout / non sea salt

OC: organisch koolstof / organic carbon

OM: organisch materiaal / organic matter

POC: primair organisch koolstof / primary organic carbon

POM: primair organisch materiaal / primary organic matter

PPM<sub>10</sub>: primaire componenten in de PM<sub>10</sub>-fractie / primary components in the PM<sub>10</sub>-fraction