



Intergewestelijke Cel voor het Leefmilieu
Cellule Interrégionale de l'Environnement
Kunstlaan 10-11, 1210 Brussel
Tel: 02/227 57 01
Fax: 02/227 56 99
Email: info@irceline.be
<http://www.irceline.be>

Vlaamse Milieumaatschappij
Afdeling Lucht, Milieu en Communicatie
Dr. De Moorstraat 24-26, 9300 Aalst
Tel: 053/72 62 10
Fax: 053/71 10 78
Email: info@vmm.be
<http://www.vmm.be>

Analyse van de NO₂ concentraties in stedelijke en verkeersgerelateerde meetstations.

Aandeel van de directe NO₂ uitstoot vs. NO_x/O₃-evenwicht.

Studie uitgevoerd in het kader van de proeftijd

Auteur: Charlotte Vanpoucke (VMM-IRCEL)

Promotor: Frans Fierens (VMM-IRCEL)

Lector: Peter Vanderstraeten (BIM)

Augustus 2010

Inhoud

1	Inleiding.....	4
2	Beschrijving van de pollutanten	4
3	Onderzoek naar een verklaring voor de vastgestelde NO ₂ concentratietrends in de wetenschappelijke literatuur	16
4	De evolutie van de directe NO ₂ emissies in België	19
4.1	methodologie	19
4.2	Trendanalyse	21
4.3	Analyse van de NO ₂ -omgevingsconcentraties.....	24
5	Besluit.....	29
	Referenties	33

Lijst van tabellen

Tabel 1: Grens- en streefwaarden voor NO ₂ en NO _x	5
Tabel 2: Euronormen voor personenwagens	9
Tabel 3: Schattingen voor de primaire NO ₂ -fracties van verschillende types voertuigen naargelang de euronorm. Waar de snelheidsafhankelijkheid duidelijk was werden ook deze waarden weergegeven. Bron: (Grice, et al., 2009)	13
Tabel 4: Aantal personenwagens in België opgedeeld volgens brandstof. <i>Bron: ACEA, www.acea.be/images/uploads/files/20090218_EU_Motor_vehicles_in_use_2007.pdf</i>	14
Tabel 5: Meetstations gebruikt in deze studie met vermelding van type en onderzochte periode.....	19
Tabel 6: Analyse van de verschillende bijdragen tot de NO ₂ -omgevingsconcentraties voor 6 stations met Moerkerke (44N012) als achtergrondstation.	27
Tabel 7: Analyse van de verschillende bijdragen tot de NO ₂ -omgevingsconcentraties voor 6 stations met Offagne (43N121) als achtergrondstation.	32

Lijst van figuren

Figuur 1: Variatie van daglicht gemiddelde concentraties van NO, NO ₂ en O ₃ met NO _x voor januari 2006,2007 en 2008 in de 8 stations verder beschouwd in deze studie. Het resultaat is analoog aan dat bekomen door (Clapp, et al., 2001) voor de UK.	8
Figuur 2: Variatie van daglicht gemiddelde concentraties van OX met NO _x voor januari 2006,2007 en 2008 in de 8 stations verder beschouwd in deze studie. Het resultaat is analoog aan dat bekomen door (Clapp, et al., 2001) voor de UK.	8

Figuur 3: NO ₂ -concentraties in functie van NO _x -concentraties voor alle beschikbare uurwaarden in 2008 van de meetstations Sint-Jans-Molenbeek (41R001), Ukkel (41R012), Borgerhout (42R801) en Schoten (42R811).	9
Figuur 4: Evolutie van de NO _x -emissies van dieselvoertuigen in de NEDC en de CADC. Bron: presentatie van S. Hausberger (TU Graz) op NO ₂ -workshop, 14-15 april 2010, Brussel.	10
Figuur 5: Procentueel aandeel van dieselwagens als nieuw geregistreerde wagens tussen 1 januari en 30 september 2009. Bron: ACEA, www.acea.be/images/uploads/files/20091030_Diesel_0909.pdf ..	15
Figuur 6: Invloed van dieselvoertuigen op de jaargemiddelde NO ₂ -concentraties. Bron: Presentatie van de Umweltbundesamt op de NO ₂ -workshop, 14-15 april 2010, Brussel gebruik makende van de gegevens van S. Hausberger (TU Graz).	15
Figuur 7: ΔOX in functie van ΔNO _x voor het verkeersstation Haren gekoppeld aan het landelijke station Moerkerke voor het jaar 2000.	24
Figuur 8: Evolutie van de NO ₂ /NO _x -emissiefracties voor elk station met Moerkerke (44N012) als achtergrondstation. Aan de data is een lineaire functie $f(x)=m*(x-2000)+c$ gefit.	26
Figuur 9: Evolutie van de NO ₂ /NO _x -emissiefracties voor elk station met Offagne (43N121) als achtergrondstation. Aan de data is een lineaire functie $f(x)=a*(x-2000)+b$ gefit.....	31

Analyse van NO₂ concentraties in stedelijke en verkeersgerelateerde stations.

Aandeel van de directe NO₂ uitstoot vs. NO_x/O₃-evenwicht.

1 Inleiding

In stedelijke omgevingen en nabij druk verkeer worden er de laatste jaren geen of weinig dalingen in de stikstofdioxideconcentraties (NO₂) waargenomen ondanks een gevoelige daling van de stikstofoxide-emissies (NO_x). Dergelijke trends zijn in verschillende Europese steden (Londen, Düsseldorf, Krakau) merkbaar. Als belangrijkste reden voor de stagnerende NO₂-concentraties wordt de toename van het aantal dieselwagens in het wagenpark en de invoering van de oxidatiekatalysator geopperd. Dit zijn oorzaken van stijgende 'directe' NO₂-emissies.

Naast de directe NO₂-emissies van het verkeer wordt de NO₂-concentratie in de omgevingslucht ook bepaald door het fotochemisch evenwicht tussen stikstofoxides (NO_x) en ozon (O₃). De titratie van ozon door stikstofmonoxide (NO) zorgt immers voor omzetting naar NO₂. De ozonachtergrondconcentratie speelt dus ook een beduidende rol in het vormen van de NO₂-concentraties.

Het doel van deze studie is na te gaan in welke mate de directe NO₂-emissies enerzijds en het NO_x/O₃-evenwicht anderzijds, bijdragen tot de NO₂-concentraties en wat de evolutie is van die bijdragen over de laatste tien jaar. Uit een recente Nederlandse studie (Keuken, et al., 2009) blijkt dat voor de NO₂-concentraties gemeten in stedelijke achtergrondstations de bijdrage van het NO_x/O₃-evenwicht belangrijker is dan de bijdrage van de directe NO₂-uitstoot en dat het belang van deze factor nog lichtjes toeneemt ondanks een stijgende directe NO₂-uitstoot door het verkeer.

Het vermoeden dat de directe NO₂-uitstoot een belangrijkere rol speelt in stedelijke en verkeersgerelateerde stations in België wordt in deze studie onderzocht.

2 Beschrijving van de pollutanten

Stikstofoxiden (NO_x) is de verzamelnaam voor stikstofmonoxide (NO) en stikstofdioxide (NO₂). In molaire concentraties: NO_x = NO + NO₂. NO_x ontstaat in verbrandingsprocessen bij hoge temperaturen door oxidatie van stikstof (N₂) in de lucht. Het wegverkeer is verantwoordelijk voor bijna de helft van de NO_x-emissies, waarbij dieselwagens gevoelig meer NO_x uitstoten dan benzinewagens uitgerust met een 3-wegkatalysator. Andere belangrijke bronnen zijn de industrie (incl. raffinaderijen) en de elektriciteitscentrales. NO is een kleur-, geur- en smaakloos gas met weinig toxische gevolgen. Dit in tegenstelling tot het oxidatieve NO₂ dat rood-bruin kleurt, irriteert en slecht ruikt.

Nadelige effecten

Stikstofoxiden hebben nadelige effecten op de gezondheid van mensen en dieren. Ook ecosystemen kunnen worden aangetast. Bovendien spelen stikstofoxiden ook een rol in de verzuring en zijn ze een belangrijke factor in de vorming van fotochemische luchtverontreiniging. Het schadelijk effect voor de menselijke gezondheid is de inwerking van voornamelijk NO₂ op het ademhalingsstelsel. De effecten zijn afhankelijk van de duur van de blootstelling. Bij acute blootstelling ondervinden gezonde mensen pas nadelige effecten bij zeer hoge NO₂ concentraties (>1880 µg/m³). Kinderen en mensen met astma of chronische longaandoeningen zijn het meest gevoelig voor NO₂ concentraties en zullen dan ook bij lagere concentraties (375-565 µg/m³ gedurende 1-2 uur) reeds hinder ondervinden. De nadelige effecten zijn verminderde longfunctie, symptomatische reacties, acute ademhalingsziektes, verhoogde gevoeligheid voor infecties en beschadiging van het longweefsel (bij zeer hoge concentraties). Ook de chronische blootstelling aan lagere niveaus kan deze schadelijke effecten veroorzaken.

Grens- en streefwaarden

Om de schadelijke gevolgen voor de gezondheid van de mens en het milieu als geheel zoveel mogelijk te voorkomen of te verminderen, worden er door de Europese Unie grenswaarden voor NO₂ opgelegd. De huidige grens- en streefwaarden voor NO₂ en NO_x werden voor het eerst gepubliceerd in de 1^{ste} Dochterraichtlijn (1999/30/EG) en zijn behouden gebleven in de nieuwe “cleaner air for Europe” richtlijn (2008/50/EG) die de Kaderrichtlijn 96/62/EG en de eerste drie dochterraichtlijnen vervangt. Tabel 1 toont een overzicht van de grenswaarden voor NO₂ en de streefwaarde voor NO_x.

Tabel 1: Grens- en streefwaarden voor NO₂ en NO_x

<i>Middelingstijd</i>	<i>Waarde</i>	<i>Datum waarop grenswaarde moet bereikt zijn</i>
Grenswaarden voor de bescherming van de gezondheid (NO₂)		
1 uur	200 µg/m ³ , niet vaker dan 18 keer per kalenderjaar overschreden	1/01/2010
1 jaar	40 µg/m ³	1/01/2010
Alarmpremie (NO₂)		
3 opeenvolgende uren	400 µg/m ³	
Streefwaarde voor de bescherming van de vegetatie (NO_x)		
1 jaar	30 µg/m ³	

De grenswaarden ter bescherming van de gezondheid dienen op 1/1/2010 bereikt te zijn. De laatste EU-richtlijn voorziet een mogelijkheid tot uitstel voor de inwerkingtreding van de grenswaarden voor NO₂ tot 1/1/2015. Om uitstel te verkrijgen zal de lidstaat moeten aantonen dat met reeds goedgekeurde en nieuwe maatregelen de grenswaarde, indien ze nog niet wordt bereikt, in 2015 wel zal gehaald worden. Wegens het dichtbebouwde en verkeersdrukke karakter van Vlaanderen worden nog steeds overschrijdingen van de jaargrenswaarde vastgesteld in de grote agglomeraties en langs drukke wegen. Ook in het Brussels Hoofdsteljk Gewest worden op verschillende meetplaatsen overschrijdingen van de jaargrenswaarde gemeten. De uurgrenswaarde en de

alarmdrempel voor NO₂ worden nauwelijks overschreden. Het kritiek niveau ter bescherming van de vegetatie tenslotte is strikt genomen op geen enkel gebied in Vlaanderen van toepassing, omdat de macroscale criteria voor de inplanting van meetstations nergens voldaan zijn.

Fotochemisch evenwicht

Een eerste belangrijke factor die bijdraagt tot de NO₂-concentraties in de omgevingslucht is het fotochemisch evenwicht tussen NO_x en O₃. NO en NO₂ worden in de omgevingslucht namelijk voortdurend in elkaar omgezet in de aanwezigheid van ozon. Onder invloed van hoge temperatuur (>25°C) en zonlicht (UV-licht: hv) wordt stikstofdioxide via fotochemische reacties met het aanwezige zuurstof omgezet in stikstofmonoxide en ozon. Deze reactie is een evenwichtsreactie en gaat dus ook in omgekeerde richting. De titratie van O₃ door NO zorgt opnieuw voor de productie van NO₂. Hoewel deze omzetting door tal van fotochemische reacties plaatsvindt, kan ze samengevat worden in één dominante reactievergelijking. Vergelijking 1 stelt deze globale evenwichtsreactie voor tussen enerzijds de vormingsreacties (van links naar rechts) en anderzijds de afbraakreacties (van rechts naar links) van ozon.



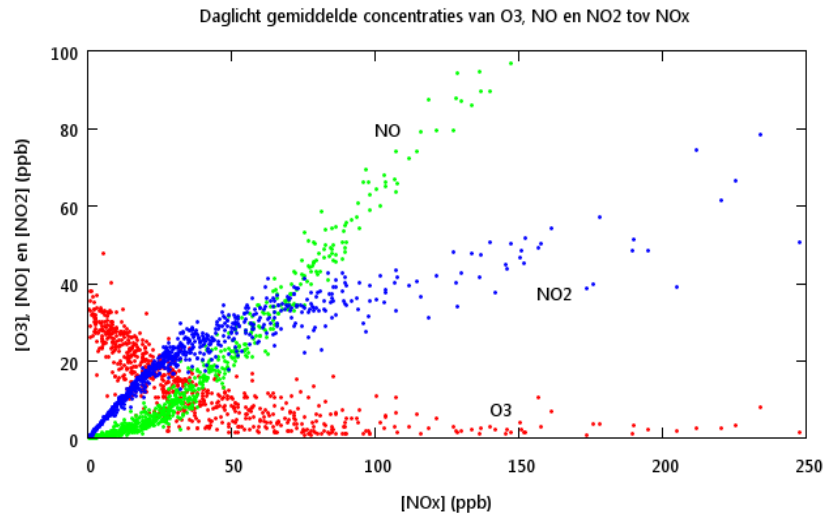
Stikstofoxides zijn zogenaamde precursoren van ozon, waarbij een groter aandeel van NO₂ in de NO_x-concentraties in de omgevingslucht leidt tot meer ozonvorming. Omgekeerd zal ook de hoeveelheid ozonachtergrondconcentratie en de aanwezigheid van NO bepalend zijn voor de concentraties NO₂ in de omgevingslucht. NO heeft een korte levensduur van enkele minuten. Hierdoor is de ozonafbraak belangrijker in verkeersrijke gebieden, dichtbij de emissiebronnen van NO. Op deze verkeersrijke locaties is O₃ dus de limiterende factor voor het doorgaan van de reactie. Een toename in de achtergrondozonconcentratie leidt via meer titratie door NO tot hogere NO₂-concentraties in de omgevingslucht. In het Ierse meetstation Mace Head, gelegen aan de westkust van Ierland en ver van de bewoonde wereld, worden de ozonconcentraties gemeten in de maritieme lucht die van over de Atlantische oceaan komt. De ozonconcentraties in dat meetstation kunnen dus beschouwd worden als "echte" achtergrondconcentraties omdat ze niet beïnvloed worden door lokale emissies. Uit de metingen van (Derwent, et al., 2007) blijkt dat de ozonachtergrondconcentratie daar tussen 1987 en 2007 is toegenomen met $0,31 \pm 0,12$ ppb per jaar (= $0,62 \mu\text{g}/\text{m}^3$ per jaar). Sinds 2000 lijken de achtergrondconcentraties er wel te stabiliseren. De jaargemiddelde ozonachtergrondconcentratie in Mace Head bedraagt ondertussen rond de $80 \mu\text{g}/\text{m}^3$. In Vlaanderen is dat nog rond de $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ vanwege de afbraakprocessen van de aangevoerde O₃ door NO op weg naar hier. De grootte van de ozonachtergrondconcentratie speelt dus ook een beduidende rol in de opbouw van de NO₂-concentratie in een stedelijk gebied. De levensduur van NO₂ gaat van enkele uren tot enkele dagen, waardoor het de mogelijkheid heeft zich verder te verspreiden vooraleer terug ozon te vormen. Dit verklaart waarom in verkeersgerelateerde stations vaak lagere ozonwaarden worden gemeten dan in meer landelijke meetstations. De aangevoerde NO₂ concentraties zijn in rurale gebieden immers nog hoog genoeg om te zorgen voor de vorming van ozon. Door de lagere (want minder verkeer) NO concentraties zal er echter minder ozonafbraak zijn. Het evenwicht (1) verschuift dus naar rechts. De NO₂-concentraties daarentegen zal op de verkeerslocaties groter zijn. De twee belangrijkste mogelijke redenen waarom er ondanks de dalende NO_x-concentraties toch geen of weinig daling zichtbaar is van de NO₂-concentraties zijn enerzijds hogere ozonachtergrondconcentraties die leiden

tot een grotere vorming van *secundair* NO₂ en anderzijds een groter aandeel van NO₂ in de NO_x-emissies (*primair* NO₂, zie volgende paragraaf).

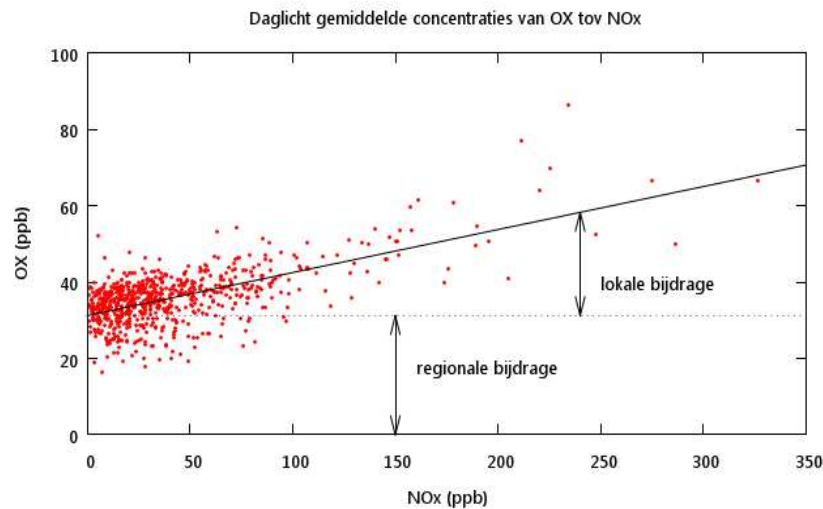
Andere precursoren van ozon zijn de vluchtige organische stoffen of VOS, die zorgen voor een extra productie van NO₂. De VOS zullen immers het NO terug omzetten naar NO₂ waardoor dit NO niet langer beschikbaar is voor de afbraak van ozon, met een netto verhoging van de ozonconcentraties tot gevolg. De invloed van VOS op de ozon- en NO₂-concentraties in de omgevingslucht wordt verder in deze studie niet expliciet behandeld.

Zoals NO en NO₂ samen onder de noemer NO_x vallen, wordt vanwege de fotochemische koppeling met O₃ ook vaak de 'oxidant' (OX) gedefinieerd, zijnde de (molaire) som van NO₂ en O₃. Bij fotochemisch evenwicht (vergelijking 1) wordt NO_x verdeeld in zijn componenten NO en NO₂ en OX in zijn componenten NO₂ en O₃. De totale concentraties van NO_x en OX blijven, in een chemische evenwichtssituatie echter constant. Figuur 1 toont het verloop van de daglicht gemiddelde concentraties¹ van de drie pollutanten uit het fotochemisch evenwicht ten opzichte van de NO_x-concentraties voor de 8 meetstations gebruikt in deze studie voor elke dag van januari 2006, 2007 en 2008. Het is duidelijk te zien dat bij hoge NO_x-waarden de NO-component de grootste bijdrage levert, terwijl bij lage waarden NO₂ domineert. Voor de oxidant OX is de component O₃ de dominante factor bij lage NO_x-waarden en NO₂ voor hoge NO_x-waarden. Er valt ook op te merken dat de NO₂-concentratie blijft toenemen met toenemende NO_x-concentraties ondanks het bijna tot 0 vallen van de O₃-concentraties. Het verband tussen de oxidant- (= NO₂ + O₃) en de NO_x-concentraties is voor dezelfde stations en periode uitgezet in Figuur 2. Uit dit nagenoeg lineair verband tussen de NO_x- en OX-concentraties concludeerden Clapp en Jenkin (Clapp, et al., 2001) dat de oxidant op een bepaalde locatie is opgebouwd uit een NO_x-onafhankelijke bijdrage enerzijds en een NO_x-afhankelijke lokale bijdrage anderzijds. De eerste bijdrage stelt de regionale component voor die grotendeels bestaat uit de ozonachtergrondconcentratie. De lokale bijdrage bevat voornamelijk de primaire uitstoot van NO₂, maar eveneens de NO₂ gevormd door bijvoorbeeld fotochemische reacties van NO met VOS. Hierbij worden de O₃-concentraties niet verminderd, wat dus leidt tot een netto toename van de oxidant. Het verloop van de daggemiddelde concentraties van O₃, NO en NO₂ in functie van NO_x wordt in Figuur 1 getoond voor de maand januari, maar de resultaten zijn gelijkaardig voor de andere maanden van het jaar. Al is er tijdens de zomermaanden wel een grotere variabiliteit in de ozonconcentraties en liggen de NO_x-concentraties gevoelig lager. De sterke variabiliteit van de ozonwaarden tijdens de zomer is te wijten aan de grote variatie in de regionale bijdrage tijdens ozonsmogperiodes. De lagere NO_x-concentraties zijn te danken aan de betere atmosferische verdunningsomstandigheden in de zomerperiode. Het gevolg voor de zomermaanden is dat we ons in een veel kleiner NO_x-bereik bevinden en met grote schommelingen in de ozonconcentraties te maken hebben waardoor een verloop zoals in Figuur 1 moeilijker te herkennen valt.

¹ Concentraties gemiddeld tussen 9u en 16u UT, omdat NO, NO₂ en O₃ zich tijdens daglichturen snel in een fotostationaire toestand bevinden.



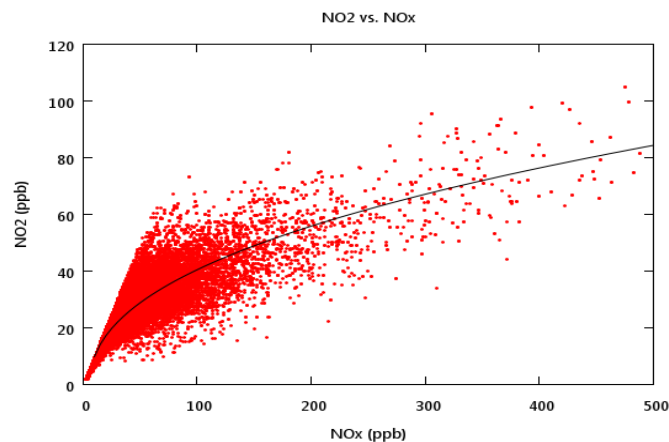
Figuur 1: Variatie van daglicht gemiddelde concentraties van NO, NO₂ en O₃ met NO_x voor januari 2006,2007 en 2008 in de 8 stations verder beschouwd in deze studie. Het resultaat is analoog aan dat bekomen door (Clapp, et al., 2001) voor de UK.



Figuur 2: Variatie van daglicht gemiddelde concentraties van OX met NO_x voor januari 2006,2007 en 2008 in de 8 stations verder beschouwd in deze studie. Het resultaat is analoog aan dat bekomen door (Clapp, et al., 2001) voor de UK.

Uit Figuur 1 is ook duidelijk dat vanwege de fotochemische koppeling tussen NO, NO₂ en O₃ er absoluut geen lineair verband bestaat tussen de NO₂- en de NO_x-concentraties. Een daling van NO_x resulteert dus niet automatisch in een even grote daling van NO₂. Figuur 3 toont dit verband nog sterker aan. Met een reductie van bijvoorbeeld 100 tot 50 ppb (=50%) van de NO_x-concentraties komt slechts een reductie van 41 tot 29 ppb (=29%) van de NO₂ concentraties overeen. Voor NO_x-concentraties kleiner dan ongeveer 100 ppb, stijgen de NO₂-concentraties snel vanwege de beschikbaarheid van O₃ dat reageert met NO tot vorming van NO₂. Voor grote NO_x-concentraties gaat de toename van de NO₂-concentratie veel langzamer en wordt het verband nagenoeg lineair. Bovendien toonden (Carslaw, et al., 2005) aan dat voor Marylebone Road, een drukke verkeersweg in Londen, de belangrijkste lokale bijdrage tot de NO₂-concentraties (i.e. de bijdrage bovenop de

achtergrondconcentratie²⁾ voor NO_x-concentraties onder de 100 ppb de chemische omzetting is tussen NO en O₃ in de onmiddellijke omgeving van de weg. Voor grote NO_x-concentraties gaande tot 600 ppb daarentegen worden de primaire NO₂-emissies overheersend in de lokale bijdrage.



Figuur 3: NO₂-concentraties in functie van NO_x-concentraties voor alle beschikbare uurwaarden in 2008 van de meetstations Sint-Jans-Molenbeek (41R001), Ukkel (41R012), Borgerhout (42R801) en Schoten (42R811).

Directe NO₂-uitstoot

Stikstofoxides komen door verbrandingsprocessen in de lucht, voornamelijk onder de vorm van NO dat dan door de reactie met de aanwezige ozon in de atmosfeer wordt omgezet in NO₂. Een deel van het NO₂ wordt ook rechtstreeks in de lucht uitgestoten. Dit is de zogenaamde primaire of directe NO₂-uitstoot. Er werd lange tijd aangenomen dat de fractie NO₂/NO_x in de verkeersemmissies slechts 1 à 5% bedroeg. Verschillende studies wijzen echter op een aanzienlijke toename van de primaire NO₂-fractie in de afgelopen twee decennia. Redenen hiervoor zijn het toenemend aantal dieselwagens en de invoering van de oxidatiekatalysator en deeltjesfilters. De aanname van 5% is bijgevolg niet langer voor alle voertuigen houdbaar. Een juiste schatting van de NO₂/NO_x-emissiefraction is belangrijk voor de modellering van de NO₂ omgevingsconcentraties in het licht van een analyse van de haalbaarheid van de Europese jaar- of uurnormen voor NO₂.

De verhouding NO₂/NO_x wordt door verschillende factoren bepaald. Zo is er het type voertuig en brandstof, de emissiestandaard, het al dan niet gebruik van een katalysator of roetfilter en de rijcondities.

Emissiestandaarden

Sinds 1992 legt Europa grenswaarden op voor de emissies van verontreinigende stoffen voor alle nieuwe voertuigen die in Europa verkocht worden: de EURO normen.

Tabel 2 toont de euronormen voor personenwagens met een onderscheid tussen benzine- en dieselwagens.

Tabel 2: Euronormen voor personenwagens met de uitstootnormen voor verschillende stoffen (in g/km)

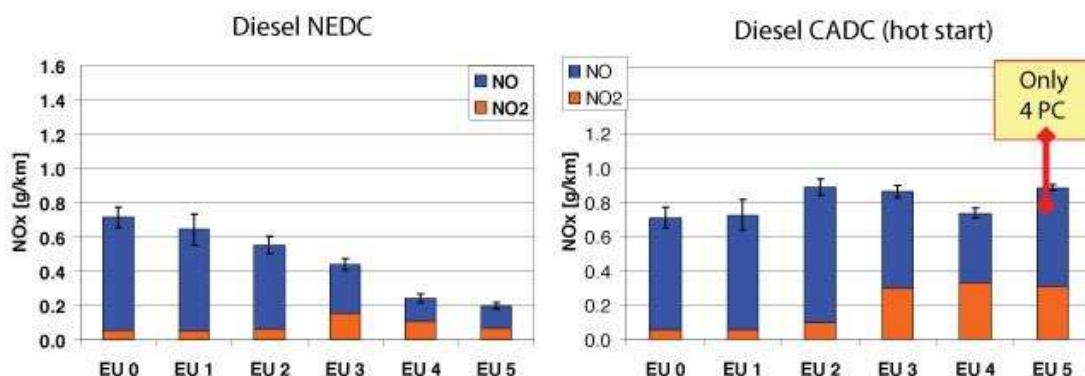
² Met de NO₂ achtergrondconcentratie wordt de altijd aanwezige NO₂ bedoeld afkomstig vanuit het buitenland en omringende regio's.

g/km		benzine				diesel			
		CO	KWS	NO _x	PM	CO	KWS+NO _x	NO _x	PM
Euro 1	1/7/92	2,72	0,5335	0,4365		2,72	0,97	0,873	0,14
Euro 2	1/1/96	2,2	0,275	0,225		1	0,7	0,630	0,08
Euro 3	1/1/2000 1/1/2001	2,3	0,2	0,15		0,64	0,56	0,500	0,05
Euro 4	1/1/2005 1/1/2006	1,0	0,1	0,08		0,5	0,3	0,250	0,025
Euro 5	1/9/2009 1/1/2011	1,0	0,1	0,06	0,005 (DI)	0,5	0,23	0,180	0,005
Euro 6	1/9/2014 1/9/2015	1,0	0,1	0,06	0,005 (DI)	0,5	0,17	0,080	0,005

De eerste datum geldt voor nieuwe types voertuigen, de tweede datum geldt voor alle nieuwe voertuigen.

Bron: www.lne.be

Het invoeren van de emissiestandaarden heeft onder meer de reductie van stikstofoxides voor ogen. De "officiële" NO_x-uitstoot van nieuwe voertuigen is wel gedaald de laatste jaren, maar die reductie ligt een stuk lager dan wat in realistische rijomstandigheden wordt gemeten. Dit is te wijten aan de officiële Europese testcyclus NEDC (New European Driving Cycle) waarmee de uitstoot wordt bepaald. De NEDC dateert uit een periode dat de wagens nog lichter en veel minder krachtig waren zodat de werkelijke uitstoot (in realistische rijomstandigheden) hoger is dan wat volgens deze rijcyclus wordt gemeten. Een realistischere testcyclus is de CADC (Common Artemis Driving Cycle). De resultaten uit deze cyclus tonen aan dat de NO_x-uitstoot voor dieselwagens hoger ligt dan verwacht (zie Figuur 4). Wanneer deze cyclus wordt genomen om de uitstoot te meten blijkt dat de NO_x-uitstoot van dieselwagens met de komst van nieuwere euronormen nauwelijks gereduceerd is. Euro-2 en euro-3 wagens stoten zelfs meer NO_x uit dan Euro-1 wagens. Vanaf Euro-3 zien we ook een grote stijging in het aandeel NO₂ in de totale NO_x-uitstoot (van minder dan 10% voor Euro-2 tot bijna 40% voor Euro-4). Dit is te wijten aan het invoeren van de oxidatiekatalysator en (later) de dieselroetfilters. Met de Euro-5 norm lijkt dit aandeel weer lichtjes te dalen. Hoe de uitstoot van Euro-6 norm wagens (verplicht vanaf 2014) in realistische rijomstandigheden zal zijn is nog niet 100% duidelijk. De eerste tests zouden wel wijzen op een daling van de totale NO_x emissies. Om sneller de NO₂ normen te halen, pleiten vele lidstaten dan ook voor een versnelde introductie van de Euro-6 norm.



Figuur 4: Evolutie van de NO_x-emissies van dieselveertuigen in de NEDC en de CADC. Bron: presentatie van S. Hausberger (TU Graz) op NO₂-workshop, 14-15 april 2010, Brussel.

Een andere Europese stimulans om de NO_x-emissies naar beneden te halen is de “National Emission Ceilings” of NEC-richtlijn (2001/81/EG). Deze richtlijn legt emissieplafonds op voor onder andere NO_x aan de Europese lidstaten die moeten gehaald worden tegen 2010. Verschillende lidstaten waaronder ook België zullen de plafonds voor NO_x niet halen. Dit is onder meer te wijten aan een verkeerde inschatting van emissiefactoren in het verleden en de verdieseling van het Belgische wagenpark. Deze verdieseling is het gevolg van lagere accijnzen op dieselbrandstof en de federale “CO₂” korting bij de aanschaf van een nieuwe wagen (een dieselwagen verbruikt meestal minder dan een vergelijkbare benzinewagen en stoot dus minder CO₂ uit).

Rijcondities

Ook het rijgedrag bepaalt de uitstoot van een wagen. Voor NO_x geldt er algemeen dat de emissies stijgen met toenemende snelheid omdat de motortemperatuur dan stijgt. Een gemiddelde snelheid is echter geen absolute referentie om de hoeveelheid emissies aan te toetsen. Filerijden of vaak stoppen en terug vertrekken zorgt ook voor een hogere uitstoot dan vlot rijden aan dezelfde gemiddelde snelheid. Ook een ‘koude’ start genereert een hogere NO_x-uistoot dan een ‘warme’ start omdat het emissiecontrolesysteem dan nog niet zijn optimale werkingstemperatuur heeft bereikt. Wat de verhouding NO₂/NO_x betreft is er een complexer verband met de snelheid die te maken heeft met de uitlaatgasnabehandeling. Voor oudere pre-Euro-3 dieselwagens wordt er een lichte daling waargenomen met toenemende snelheid. De toepassing van oxidatiekatalysatoren of deeltjesfilters op modernere dieselwagens zorgen voor een kleinere snelheidsafhankelijkheid of zelfs een lichte stijging van de NO₂/NO_x-fractie met toenemende snelheid. Voor benzinewagens wordt er volgens de Air Quality Exchange Group in de UK (Air Quality Exchange Group, 2007), gebaseerd op een beperkt aantal metingen, geen significant verband aangetoond tussen de snelheid van de testcyclus en de hoeveelheid NO_x uitgestoten als NO₂. Uit metingen die werden uitgevoerd in Belgische verkeerstunnels tussen 1989 en 1992 (Vanderstraeten, et al., 1991) blijkt dat er bij fileverkeer wel een duidelijke toename van de NO₂/NO_x-concentratie is zowel voor benzine- als voor dieselwagens.

Nabehandelingen van uitlaatgassen

Met het oog op het halen van de emissienormen zijn er al heel wat inspanningen geleverd om de uitstoot van luchtvervuilende stoffen door voertuigen te verlagen. De belangrijkste pollutanten in de uitlaatgassen van wagens zijn CO, NO_x, koolwaterstoffen en fijn stof (PM). De keuze voor het reduceren van de emissies van de ene pollutant is echter niet altijd gunstig voor de emissies van een andere pollutant. Een voorbeeld hiervan is de installatie van de deeltjesfilter in dieselwagens bij de introductie van de Euro-5 emissiestandaard (zie verder). Voor benzinewagens bestaat er de 3-wegkatalysator die de uitstoot van de schadelijke stoffen NO_x, HC en CO vermindert. De NO_x uitstoot verlaagt zo met 80 à 90%. Sinds de invoering van de 3-wegkatalysatoren voor benzinewagens ligt de NO_x-uitstoot beduidend lager dan deze van dieselwagens. Door de hoge werkingstemperatuur van de 3-wegkatalysator, wordt er vaak ook een voorkatalysator geplaatst die de schadelijke emissies tijdens de koude start van de wagen moet beperken.

Voor dieselwagens is de vermindering van de NO_x-emissies een stuk moeilijker door het overschot aan lucht (zuurstof) tijdens de verbranding. Het O₂ dat niet gebruikt wordt voor de verbranding oxideert immers N₂ met de vorming van NO_x tot gevolg. De oxidatiekatalysatoren gebruikt in diesel personenwagens werden in de eerste plaats ingevoerd voor de vermindering van CO en

koolwaterstoffen, waarvoor ze heel efficiënt zijn. Hierbij wordt er echter ook NO geoxideerd tot NO₂. Dus hoewel de oxidatiekatalysator weinig effect heeft op de totale NO_x-emissie, zorgt hij wel voor een stijging van de NO₂/NO_x-fractie. Voor de afbraak van NO_x-emissies in lichte dieselwagens wordt gebruik gemaakt van de NO_x-katalysatoren met een 'NO_x-trap'. Op dit substraat wordt de NO_x opgevangen en wanneer dit verzadigd is wordt de katalysator geregenereerd en zal de NO_x omgezet worden in luchtstikstof (N₂). Voor zware voertuigen (vrachtwagens, bussen) maakt men gebruik van de "Selective Catalytic Reduction" (SCR) techniek. Bij de SCR de-NO_x -katalysatoren wordt er ammoniak of ureum in de katalysator geïnjecteerd waardoor de NO_x wordt omgezet in waterdamp (H₂O) en stikstof (N₂). SCR is effectief voor zowel de verlaging van de NO_x als van de NO₂ emissies. Een nadeel is wel dat dit leidt tot een gevoelige toename van de ammoniak (NH₃) uitstoot. Uit tests blijkt dat de-NO_x-katalysatoren voor lichte en zware voertuigen de NO_x emissies tot tot 80% verminderen (Air Quality Expert Group, 2004).

Om tegemoet te komen aan de strenge emissiewaarden voor fijn stof (PM) is de installatie van een roetfilter noodzakelijk. In de roetfilter worden de roetdeeltjes opgevangen en wanneer deze verzadigd is worden de deeltjes bij hoge temperatuur verbrand. Dit proces noemt men de "regeneratie" van de filter. Om ook bij lagere temperaturen tot regeneratie van de roetdeeltjes te komen, wordt er NO₂ gebruikt voor de oxidatie van het fijn stof. Deze NO₂ is afkomstig van de oxidatie van het NO in de oxidatiekatalysator. Niet alle NO₂ wordt echter altijd gebruikt voor de oxidatie van de roetdeeltjes, zodat de uitstoot van NO_x door het gebruik van een deeltjesfilter voor een groter deel uit NO₂ kan bestaan. De hoeveelheid NO_x zelf wordt door de roetfilter weinig beïnvloed. De roetfilter is een mooi voorbeeld van een situatie waarbij men kiest voor de reductie van de ene pollutant (PM) ten koste van een stijging van een andere pollutant (hier het direct uitgestoten NO₂). Het meer schadelijke effect van fijn stofdeeltjes op de gezondheid in vergelijking met NO_x was hierin bepalend. Bovendien heeft de wetgever alleen normen opgelegd voor de totale hoeveelheid stikstofoxides (NO_x) en niet voor de meest schadelijke component (NO₂)

Voertuigtype

De fractie NO₂ in de totale NO_x-uitstoot is ook afhankelijk van het voertuigtype. Er bestaat een grote variatie tussen de uitstoot van passagierswagens, vrachtwagens en bussen. Tabel 3 geeft een overzicht van de primaire NO₂-fracties voor verschillende voertuigtypes en emissiestandaarden volgens Grice, et al. (2009) na een uitgebreide literatuuranalyse.

Tabel 3: Schattingen voor de primaire NO₂-fracties van verschillende types voertuigen naargelang de euronorm. Waar de snelheidsafhankelijkheid duidelijk was werden ook deze waarden weergegeven. Bron: (Grice, et al., 2009)

		f-NO ₂ (%)	Speed related f-NO ₂ (low, medium and high) (%)
Petrol passenger cars	Euro 2 and earlier	4	
	Euro 3	3	
	Euro 4	3	
	Euro 5	3	
	Euro 6	3	
Diesel passenger cars	Euro 2 and earlier	11	
	Euro 3	30	25, 30, 40
	Euro 4	55	
	Euro 5	55	
	Euro 6	55	
Diesel heavy light-duty vans	Euro 2 and earlier	11	
	Euro 3	30	
	Euro 4	55	
	Euro 5	55	
	Euro 6	55	
Rigid trucks	Euro II and earlier	11	
	Euro III	14	14, 14, 8
	Euro IV	10	
	Euro V	10	
	Euro VI	10	
Articulated trucks	Euro II and earlier	11	
	Euro III	14	14, 14, 8
	Euro IV	10	
	Euro V	10	
	Euro VI	10	
Buses and coaches	Euro II and earlier	11	
	Euro III untrapped	14	
	Euro III trapped	35	
	Euro IV	10	
	Euro V	10	
	Euro VI	10	

Brandstoftype (diesel- versus benzine wagens)

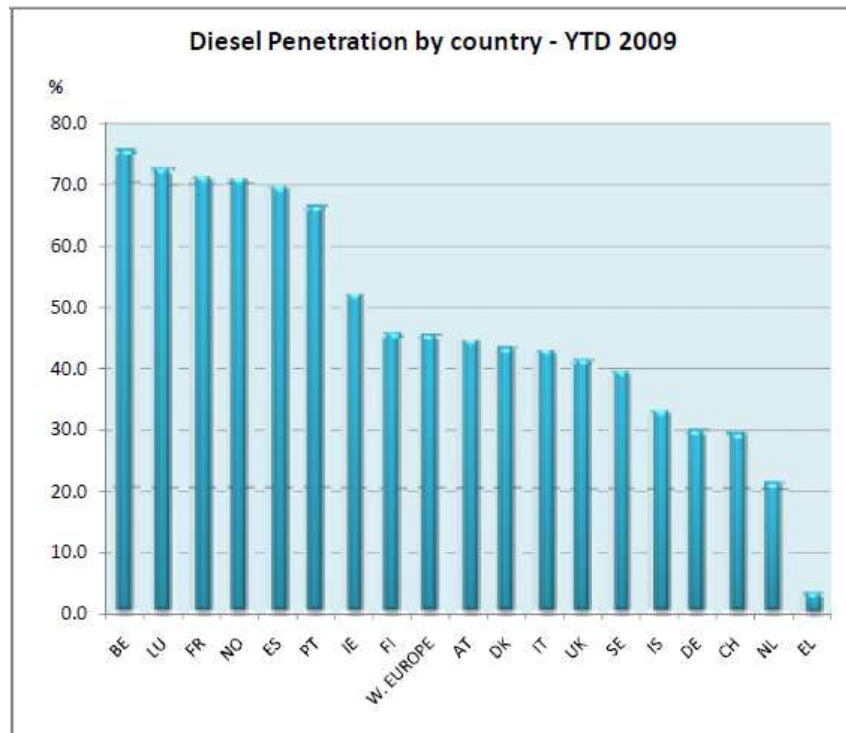
Bij een benzine wagen is het mengsel brandstof/lucht in een stoichiometrisch evenwicht, d.w.z. in een correcte verhouding zodat er na verbranding geen overschot van lucht (zuurstof) of brandstof aanwezig is. Hierdoor wordt er minder NO_x geproduceerd in vergelijking met diesel wagens waar er wel een overschot van lucht aanwezig is tijdens het verbrandingsproces en waar de verbrandingstemperatuur bovendien hoger ligt. Naast een hogere NO_x-uitstoot hebben diesel wagens ook een grotere NO₂/NO_x-verhouding. Dit komt onder meer omdat bij diesel wagens de brandstof en de lucht geen homogeen mengsel vormen. De toepassing van technieken om de emissies te reduceren (oxidatiekatalysator, deeltjesfilter) kunnen ook een oorzaak zijn van de hogere primaire NO₂ fractie bij diesels. Benzine wagens stoten tussen de 1 en 5% NO_x uit onder de vorm van NO₂. Bij diesels ligt dit rond de 20%, maar dit kan zelfs stijgen tot 70% afhankelijk van het gebruik van een oxidatiekatalysator of deeltjesfilter.

Als oorzaak voor de hoge, nauwelijks afnemende, NO₂-concentraties in stedelijke en verkeersrijke gebieden wordt vaak de stijging van de primaire NO₂-uitstoot genoemd. Die stijging heeft enerzijds te maken met de toepassing van de oxidatiekatalysatoren en anderzijds met het toenemende aantal diesel wagens in het wagenpark. Uit cijfers van de Europese vereniging van autofabrikanten (ACEA, European Automobile Manufacturers Association) blijkt dat in België het aandeel van diesel wagens in het totale passagierswagenpark continu is toegenomen van 27,7% in 1991 tot 54,5% in 2007 (zie Tabel 4). Ruim de helft van de Belgische personenwagens die momenteel in gebruik zijn heeft dus een dieselmotor. Daarmee heeft België het procentueel grootste aantal diesel wagens in zijn

wagenpark. Bovendien spant België ook de kroon in het aandeel dieselwagens bij nieuwe registraties (Figuur 5). In de periode januari-september 2009 waren ruim 75% van de nieuw geregistreerde wagens in België dieselwagens. De grote verdieseling van het Belgische wagenpark is er voornamelijk gekomen door fiscale stimulansen van de overheid, namelijk de lagere accijnzen op diesel in vergelijking met benzine en de subsidies voor de aankoop van wagens met een lage CO₂ uitstoot. De invloed van dieselveertuigen op de jaargemiddelde NO₂-concentraties wordt duidelijk in de verf gezet in Figuur 6 die de prognose toont voor de jaargemiddelde NO₂-concentratie in 2012 in de stad Graz in Zwitserland (links) en het concentratieverschil (rechts) indien er geen dieselveertuigen meer verkocht zouden worden vanaf 2009.

Tabel 4: Aantal personenwagens in België opgedeeld volgens brandstof. Bron: ACEA, www.acea.be/images/uploads/files/20090218_EU_Motor_vehicles_in_use_2007.pdf

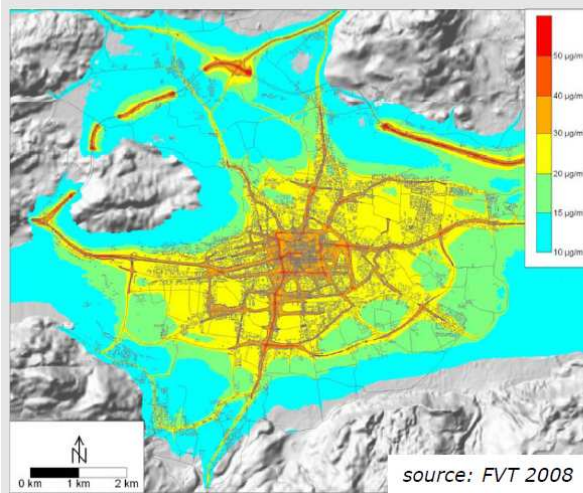
	Belgium						
	Gasoline	%share	Diesel	%share	Other	%share	Total
2007	2.212.636	44,2	2.730.384	54,5	63.274	1,3	5.006.294
2006	2.292.288	46,5	2.570.403	52,1	66.593	1,4	4.929.284
2005	2.384.237	49,0	2.406.476	49,5	70.639	1,5	4.861.352
2004	2.462.002	51,1	2.284.966	47,4	71.603	1,5	4.818.571
2003	2.534.662	53,1	2.164.495	45,4	73.427	1,5	4.772.584
2002	2.600.452	55,0	2.050.709	43,4	73.695	1,6	4.724.856
2001	2.665.846	56,9	1.951.875	41,7	66.775	1,4	4.684.496
2000	2.719.604	58,8	1.847.934	39,9	61.411	1,3	4.628.949
1999	2.748.675	60,4	1.738.997	38,2	59.564	1,3	4.547.236
1998	2.762.005	62,0	1.634.348	36,7	61.657	1,4	4.458.010
1997	2.803.876	64,1	1.530.130	35,0	39.117	0,9	4.373.123
1996	2.829.974	65,7	1.440.730	33,4	37.000	0,9	4.307.704
1995	2.831.095	66,8	1.372.087	32,4	35.869	0,8	4.239.051
1994	2.851.133	68,3	1.287.792	30,8	35.886	0,9	4.174.811
1993	2.858.935	69,8	1.202.911	29,3	36.857	0,9	4.098.703
1992	2.844.801	70,6	1.145.440	28,4	38.792	1,0	4.029.033
1991	2.797.526	71,2	1.089.055	27,7	42.325	1,1	3.928.906



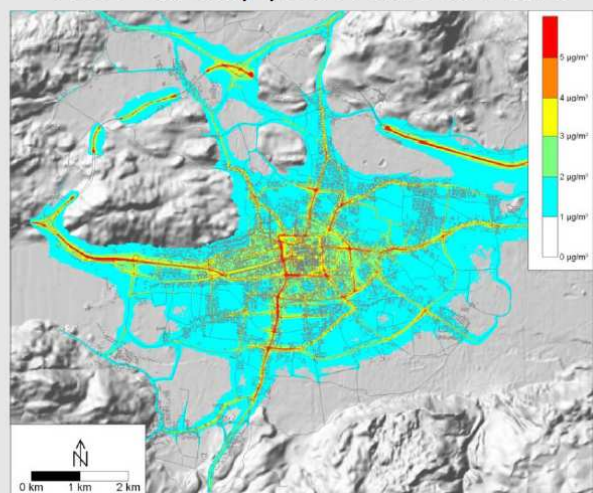
Figuur 5: Procentueel aandeel van dieselwagens als nieuw geregistreerde wagens tussen 1 januari en 30 september 2009. Bron: ACEA, www.acea.be/images/uploads/files/20091030_Diesel_0909.pdf

Influence of Diesel vehicles

NO₂ annual mean BAU 2012



difference in NO₂ annual mean if from 2009 on only petrol cars are sold



Figuur 6: Invloed van dieselveertuigen op de jaargemiddelde NO₂-concentraties. Bron: Presentatie van de Umweltbundesamt op de NO₂-workshop, 14-15 april 2010, Brussel gebruik makende van de gegevens van S. Hausberger (TU Graz).

3 Onderzoek naar een verklaring voor de vastgestelde NO₂ concentratietrends in de wetenschappelijke literatuur

Dankzij verscheidene emissiereducerende maatregelen (vooral door strengere normen opgelegd door de EU) zijn de NO_x-concentraties in de meeste landen significant gedaald. Die daling wordt echter niet in voldoende mate weerspiegeld in de NO₂-omgevingsconcentraties. Door de niet-lineaire relatie tussen NO_x- en NO₂-concentraties (Figuur 3), wordt er sowieso wel een mildere daling van de NO₂-concentraties verwacht (Air Quality Expert Group, 2004), maar een stagnatie of in sommige gevallen zelfs een stijging was niet verwacht. Dit zal in dit hoofdstuk verder onderzocht worden.

Door de hoge NO₂-concentraties in verkeersrijke en stedelijke gebieden, hebben verschillende lidstaten het moeilijk om te voldoen aan de Europese drempelwaarde voor de jaargemiddelde NO₂-concentratie van 40 µg/m³. Het is bijgevolg niet onbelangrijk te weten welke factoren bijdragen tot de opbouw van de NO₂-concentraties. Uit het vorige deel kunnen we reeds concluderen dat de NO₂-concentraties die in de omgevingslucht worden gemeten het resultaat zijn van 3 factoren:

1. De bestaande NO₂ achtergrondconcentraties. Deze NO₂ wordt aangevoerd uit de omliggende regio en het buitenland of uitgestoten door andere bronnen dan het wegverkeer. Deze achtergrond maakt 30 tot 50% van de omgevingsconcentraties uit in een stad.
2. NO₂ gevormd door de fotochemische reacties tussen NO (de belangrijkste component van NO_x-emissies) en de aanwezige ozon (aanwezig als ozonachtergrond).
3. De directe NO₂-uitstoot, waarvoor voornamelijk het wegverkeer en in het bijzonder dieselwagens verantwoordelijk zijn.

In stedelijke gebieden en in de nabijheid van druk verkeer wordt vooral de bijdrage van primair NO₂ als een belangrijke factor beschouwd voor het al dan niet halen van de Europese drempelwaarden.

Uit een studie over de NO₂-concentraties in een stedelijke omgeving (Fierens, 2008) is gebleken dat over een periode van 5 jaar (2003-2007) het aandeel NO₂ in de totale NO_x-emissies in de Brusselse Leopold II-tunnel is opgelopen van 20% tot 30% (Vanderstraeten, 2006). Behalve in tunnels, waar er weinig dispersie is en externe omgevingsfactoren sterk gereduceerd zijn, is het meten van de primaire NO₂-fractie in de buitenlucht niet evident. Om toch een idee te krijgen van dit primair aandeel kan gebruik gemaakt worden van de totale oxidant (OX) concentraties (ter herinnering OX= NO₂ + O₃). Het verschil tussen de totale oxidant van 2 meetplaatsen levert een inzicht in de mogelijke bijdrage van de primaire NO₂ emissies. Voor een volledige uiteenzetting van deze methode wordt verwezen naar volgend hoofdstuk. Volgens deze werkwijze werd door (Carslaw, et al., 2004) de primaire bijdrage aan de NO₂-concentraties in Marylebone Road (wat een street canyon is) in Londen onderzocht. Er werd een analyse gemaakt van de dagprofielen van de geschatte primaire NO₂-emissies en de gemeten NO_x-concentraties en van tellingen van voertuigtypes voor weekdays, zaterdag en zondag. Hieruit bleek dat de mogelijke bijdrage van primaire NO₂-emissies groter was op weekdays dan op weekenddagen. Bovendien toonden de voertuigtellingen aan dat er op zaterdag en zondag beduidend minder zware dieselveertuigen reden dan op weekdays. De dagprofielen voor de verschillende dagen van berekende NO_x-emissies voor dieselveertuigen verliepen heel gelijklopend met de dagprofielen van de geschatte directe NO₂-emissies. Dit wijst erop dat voornamelijk de dieselveertuigen verantwoordelijk zijn voor de primaire NO₂-uitstoot. Met

behulp van een model gebaseerd op de $\text{NO}_x\text{-NO}_2\text{-O}_3$ -chemie, werd getracht de gemeten NO_2 -concentraties te 'voorspellen'. De primaire NO_2/NO_x -emissiefraction bleek de enige parameter te zijn die leidde tot het beste resultaat met een gemiddelde waarde van 9%. Een multi-pele regressie resulteerde in 0,6% en 12,7% directe NO_2 ten opzichte van de totale uitstoot voor respectievelijk benzine- en dieselveertuigen. Dezelfde resultaten staan samengevat in (Carslaw, et al., 2004).

In een uitgebreidere studie van dezelfde auteurs (Carslaw, et al., 2005), waarin gebruik gemaakt werd van hetzelfde model op basis van eenvoudige chemische vergelijkingen, werden de primaire NO_2 -emissies voor verschillende wegen in Londen berekend. De resultaten toonden een groot bereik aan met schattingen gaande van 3,2% tot 23,5%. De laagste waarden werden berekend voor straten met een vlotte verkeersstroom. De mediaan was 10,6%. Deze studie toont nog maar eens aan dat een NO_2/NO_x -fractie van 5% die veelal in modellen gebruikt wordt vandaag de dag een onderschatting van de werkelijkheid is. Een ander opmerkelijk resultaat is dat de keuze van het achtergrondstation (zie 4 Methodologie) weinig invloed heeft op de berekening van de primaire NO_2 -fractie. Ook (Jenkin, 2004) toonde een grote variabiliteit van plaats tot plaats aan in de lokale oxidantbijdrage die grotendeels is opgebouwd uit primaire NO_2 -emissies. De genoemde redenen hiervoor zijn het aantal dieselveertuigen en de snelheid die sterk verschillen van locatie tot locatie.

De hierboven beschreven studies concluderen allen dat de primaire NO_2 -uitstoot van het wegverkeer een grote bijdrage levert aan de gemeten NO_2 -concentraties dichtbij een verkeersweg. Als de primaire NO_2 -emissies blijven toenemen is het zelfs mogelijk dat ook de Europese uurdrempelwaarde voor NO_2 ($200 \mu\text{g}/\text{m}^3$, maximaal 18 uur per jaar overschreden) overschreden wordt. Dit is nu reeds het geval in enkele drukke straten in de Londense binnenstad. (Carslaw, et al., 2007) gebruikten een model dat een vooruitzicht moest bieden op het halen van die uurnorm. Het model hield rekening met de belangrijkste factoren die de piekconcentraties van NO_2 beïnvloeden: de NO_x -trend, de primaire NO_2 -fractie en de variabiliteit van de weersomstandigheden. De conclusie was dat met een blijvend dalende NO_x -trend en een primaire NO_2 -fractie die op het niveau van 2004 bleef (nl. 22%) de Europese uurdrempel op Marylebone Road pas ten vroegste in 2014 zal bereikt worden. Stijgende directe NO_2 emissies hebben een sterk negatieve invloed op de piekconcentraties, maar ook de meteorologische omstandigheden spelen een belangrijke rol in het halen van de uurnorm. In België wordt de laatste jaren de uurgrenswaarde voor NO_2 in alle meetstations gerespecteerd). Een stijging van de directe NO_2 uitstoot zou weliswaar ook kunnen leiden tot een hogere kans dat deze drempel wordt overschreden in verkeersrijke zones.

Dat de directe NO_2 -uitstoot is toegenomen in Londen wordt bevestigd in de studie van (Carslaw, 2005). Gemiddeld over 63 meetstations in Londen is de NO_2/NO_x emissiefraction gestegen van 5-6% in 1997 tot 17% in 2003. Vooral eind 2002 en in 2003 wordt een sterke stijging waargenomen. Dit had volgens de auteurs te maken met de invoering van de katalytische diesel deeltjesfilters (CDPF) op bussen in Londen. Die bussen kunnen bovendien vaak niet vlot doorrijden en moeten vaak stoppen, waardoor hun primaire NO_2 -fractie oploopt tot boven de 30%. Naast de invloed van de deeltjesfilters op bussen speelt ook de toename van dieselwagens in het wagenpark een beduidende rol. In dezelfde studie worden ook de NO_2 -concentraties gemodelleerd voor alle 36 meetstations indien de directe NO_2 -uitstoot op het niveau van het begin van de tijdsreeks zou gebleven zijn. Dit toont aan dat de NO_2 -concentraties gemiddeld 17% hoger liggen dan in het geval er geen stijging van de primaire fractie zou geweest zijn sinds 1997. In dat geval zouden 14 van de 36 stations nu een significant dalende trend in NO_2 -concentraties tonen in plaats van 5 meetstations.

Een recente studie in een Europese context is deze van (Grice, et al., 2009). Van tien verschillende landen in de Europese Unie werden de trends en voorspellingen van primaire NO₂-uitstoot geanalyseerd. Hiervoor werden twee benaderingen gebruikt. Enerzijds gebruikte men in de literatuur beschreven primaire NO₂ emissiefactoren per voertuigtype en –technologie toegepast op een NO_x-emissie-inventaris en anderzijds werd een model aangewend dat zowel de primaire fractie op basis van omgevingsconcentraties berekent als omgekeerd de NO₂-omgevingsconcentraties kan berekenen op basis van geschatte primaire fracties. De methode met de emissie-inventaris levert een nationaal en stedelijk gemiddelde van de primaire NO₂-fractie, terwijl het gebruik van het model lokale schattingen van de directe NO₂-uitstoot levert. Algemeen werd voor elk land een lichte stijging waargenomen tussen 1995 en 2000 gevolgd door een sterkere stijging tussen 2000 en 2005. De modelberekeningen leveren een toename van 6,3% tot 10,6% gemiddeld over de meetstations en de methode gebaseerd op de emissie-inventaris geeft een stijging van 8,6% in 2000 tot 12,4% in 2004 voor het gemiddelde van de betrokken landen. Voorspellingen wijzen uit dat de primaire emissiefractie nog zal toenemen tot 19,6% in 2010 en 32,0% in 2020. De sterkste stijging wordt verwacht tussen 2005 en 2015. Ondanks de aanhoudende afname van NO_x-concentraties, wordt er verwacht dat de NO₂-omgevingsconcentraties nog zullen toenemen tot 2015 waarna de concentraties terugvallen op het niveau van 2005 door de afvlakking van de primaire NO₂-bijdrage. Enkel Griekenland vormt een uitzondering met voorspelde primaire emissiefracties die onder de 10% blijven in 2020. Dit komt doordat er geen private dieselwagens toegelaten zijn in Athene en Thessaloniki.

In de Nederlandse studie van Keuken, et al. (2009) waarvan we de methodologie ook in deze studie hebben gebruikt, werd het belang van de bijdrage van de directe NO₂-uitstoot ten opzichte van het O₃/NO_x-evenwicht onderzocht in een stedelijk gebied. Keuken et al. kwamen tot de conclusie dat, alhoewel de directe NO₂-uitstoot in de periode 1986 – 2005 toenam, de bijdrage van de fotochemische omzetting van NO en O₃ naar NO₂ belangrijker was dan de directe emissie van NO₂. Dit lijkt op het eerste zicht in tegenspraak met de bovenstaande studies die het belang van de directe NO₂-emissie in verkeersrijke gebieden duidelijk onderstrepen. Mogelijke verklaringen voor de bevindingen uit de Nederlandse studie is de keuze van de meetstations die gebruikt werden om de directe NO₂-emissies in te schatten. Het betreft hier een stedelijk achtergrondstation en geen verkeersstation waardoor de invloed van de primaire NO₂-uitstoot vermoedelijk een stuk lager is. Dit blijkt trouwens uit de resultaten van de studie waarin de geschatte directe uitstoot in dit meetstation slechts een stijging van 9 tot 13 % vertoonde in de periode 1986-2005. Alhoewel het relatieve aandeel directe NO₂ steeg, daalde het absolute aandeel van de directe NO₂ uitstoot door de forse daling van de NO_x emissies.

Een Amerikaans onderzoek (Jacobson et al., 2004) tenslotte bestudeerde het effect op de fotochemische verontreiniging wanneer alle benzinewagens uit het wagenpark zouden vervangen worden door dieselwagens. Er werden 6 cases beschouwd met verschillende NO_x-emissies en verschillende NO₂/NO_x-verhoudingen. In alle 6 de cases leidde de omschakeling naar dieselwagens tot een toename van de ozonconcentraties groter dan 60 ppb (= 120 µg/m³). Veranderingen in totale NO_x-emissies hadden hierbij een grotere invloed dan veranderingen in de primaire NO₂-uitstoot bij gelijkblijvende NO_x-emissies. Voor het reduceren van de O₃-concentraties is dus vooral de daling van de NO_x-emissies efficiënt en in mindere mate de daling van de primaire NO₂-fractie.

4 De evolutie van de directe NO₂ emissies in België

4.1 methodologie

Om onder meer een idee te krijgen van het verloop van de directe NO₂-emissies in België werd er eerst een trendanalyse gemaakt van de concentraties van de pollutanten NO_x, NO, NO₂ en O₃ voor de acht meetstations die gebruikt werden in deze studie. De detectie van de trend werd gedaan met behulp van de Mann-Kendalltest zonder seizoensvariatie en een kwantificatie van de trend werd bepaald met Sen's methode. Beide statistische analyses werden uitgevoerd met behulp van de Excel template 'MAKESENS' (Salmi, et al., 2002). De Mann-Kendalltest is toepasbaar voor data die geen seizoensale of andere cycli vertonen. Er wordt dus een monotone trend verwacht. Beide methodes bieden het voordeel dat de data niet aan een vooropgestelde distributie moeten voldoen en dat er eventueel enkele data mogen ontbreken. Bovendien is Sen's methode niet bijzonder gevoelig aan outliers.

Voor het bepalen van de verschillende bijdragen van de NO₂-concentraties werd in deze studie een analoge methodiek gebruikt als deze van Keuken, et al. (2009). Deze methode is een 'totale oxidant benadering', waarbij concentraties op verschillende types meetposten vergeleken worden. Dit betekent wel dat zowel NO_x, NO₂ als O₃-metingen op dezelfde locatie en met een voldoende lange tijdreeks beschikbaar moeten zijn. Tabel 5 geeft een overzicht van de meetplaatsen met het type meetstation en de gebruikte meetperiode. Van elke station en elke pollutant beschikken we over uurwaarden. De beschikbare uurdata werden enkel gebruikt wanneer ze voor alle drie de pollutanten op hetzelfde uur aanwezig waren.

Tabel 5: Meetstations gebruikt in deze studie met vermelding van type en onderzochte periode.

Lokatie	Code Stations	Stationstype	Periode
Haren (Voorhaven)	41N043	Verkeer	1999-2008
Sint-Lambrechts-Woluwe	41WOL1	Verkeer	1995-2008
Sint-Jans-Molenbeek	41R001	Stedelijk	1998-2008
Borgerhout	42R801	Stedelijk	1996-2008
Ukkel	41R012	Stedelijke achtergrond	1986-2008
Schoten	42R811	Stedelijke achtergrond	2004-2008
Moerkerke	44N012	Landelijk	1987-2008
Offagne	43N121	Landelijk	1987-2008

De totale oxidant benadering komt erop neer dat we de directe NO₂-uitstoot bepalen uit de trend van het verschil in oxidant ΔOX tussen twee meetplaatsen ten opzichte van het verschil in stikstofoxideconcentraties ΔNO_x . De concentratie oxidant ($OX = NO_2 + O_3$) is bij NO_x-O₃-evenwicht immers constant. Wanneer er echter directe NO₂ wordt geëmitteerd in een stedelijke omgeving bijvoorbeeld, dan zal de stedelijke oxidant stijgen ten opzichte van de regionale oxidant (in landelijk gebied wordt de hoeveelheid directe NO₂-uitstoot verwaarloosbaar verondersteld). Het verschil in oxidant tussen een stationspaar over de jaren heen is bijgevolg een schatting voor de trend in directe NO₂-uitstoot. Keuken, et al., (2009) gebruikten als stationspaar een stedelijk achtergrondstation met

een landelijk station. Hier worden de NO₂-concentraties en hun bijdrages geanalyseerd van 2 verkeers-, 2 stedelijke en 2 stedelijke achtergrondstations telkens gekoppeld aan een landelijke meetplaats. Telkens werden de NO₂-concentraties van het landelijke meetstation als achtergrond NO₂-concentraties beschouwd in het onderzochte stedelijke, stedelijke achtergrond of verkeersstation.

Concreet werden volgende stappen ondernomen om de verschillende bijdragen tot de NO₂-omgevingsconcentraties te berekenen:

- **NO₂-achtergrondconcentratie**

1. De gemeten NO₂-concentratie in het landelijk station wordt beschouwd als de regionale achtergrondconcentratie in het stedelijk station, het verkeersstation of het stedelijke achtergrondstation.

- **Directe NO₂-bijdrage**

1. ΔOX en ΔNO_x van het stationspaar worden bepaald per uur.
2. Per jaar wordt de ΔOX uitgezet ten opzichte van de ΔNO_x en hieruit wordt de helling bepaald. Deze is een maat voor de directe NO₂-uitstoot per jaar (uitgedrukt in %).
3. Om voor een bepaald jaar de bijdrage van directe NO₂ emissies in absolute cijfers te kennen wordt vermenigvuldigd met ΔNO_x .
4. De helling voor elk jaar wordt uitgezet over de hele periode. Dit levert de trend van directe NO₂-uitstoot.

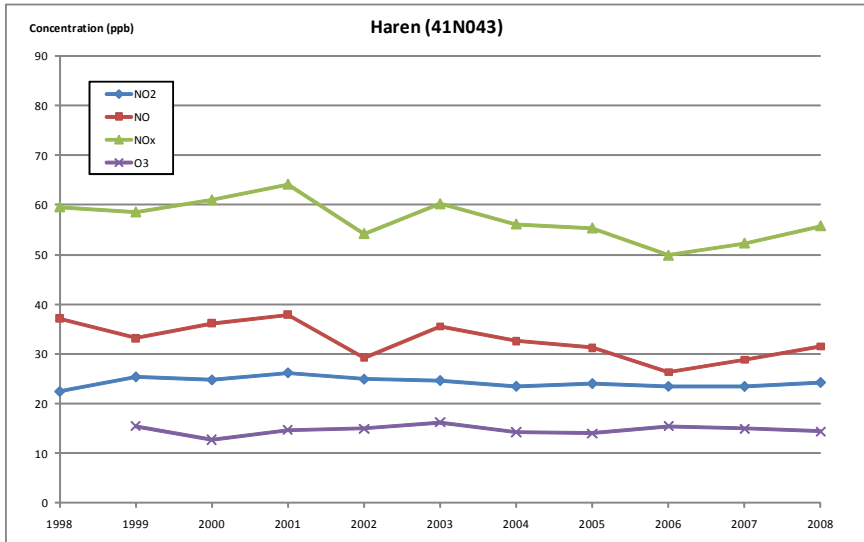
- **Bijdrage door het NO_x/O₃-evenwicht**

De bijdrage aan de NO₂-concentraties door het fotochemisch evenwicht tussen NO, NO₂ en O₃ is de hoeveelheid NO die omgezet wordt in NO₂.

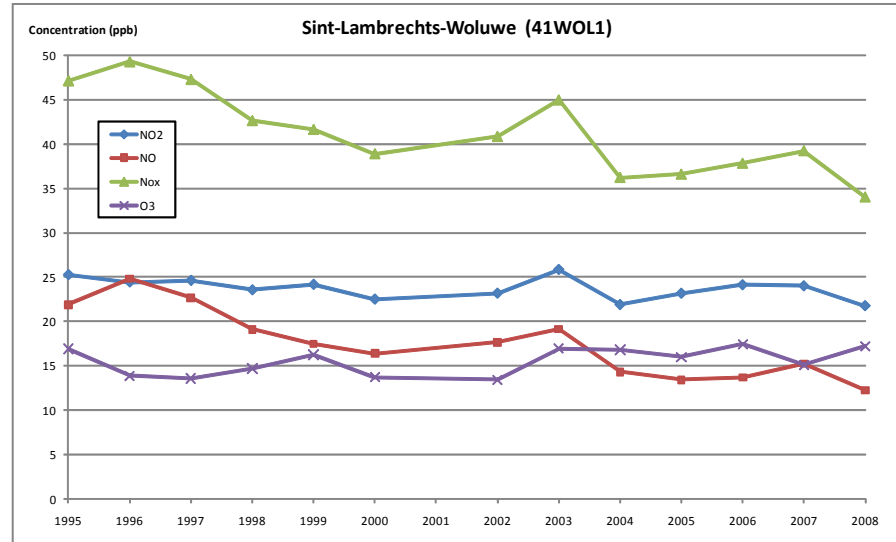
1. De fractie NO per jaar is 100% NO_x min de fractie NO₂ dat jaar (berekend in puntje 2 hierboven).
2. Vermenigvuldiging met ΔNO_x levert de NO-concentraties veroorzaakt door de directe uitstoot.
3. Dit samengeteld met de NO-achtergrondconcentratie (van het regionale station) geeft een totale verwachte NO-omgevingsconcentratie. De gemeten omgevingsconcentratie NO is echter kleiner en het verschil tussen gemeten en verwachte concentratie is een schatting voor de NO die is geconverteerd naar NO₂.

4.2 Trendanalyse

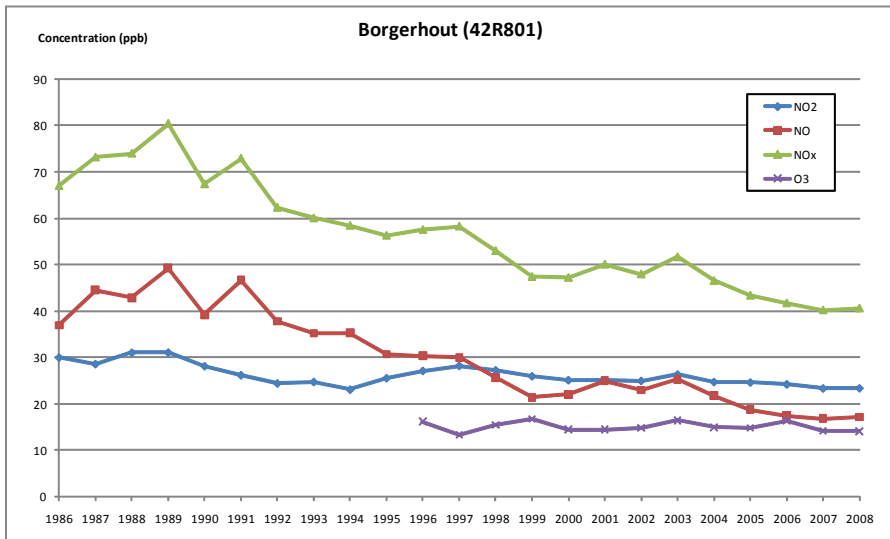
De figuren op de volgende pagina's geven de NO-, NO₂-, NO_x- en O₃-concentraties weer sinds het begin van de meetreeks van elk station. In de stedelijke en verkeersstations is het duidelijk dat er nog altijd problemen zijn om de jaargemiddelde NO₂-norm te halen (40 µg/m³ of 21 ppb). In die stations liggen de jaargemiddelde NO₂-concentraties immers nog altijd boven de 20 ppb. In de landelijke en stedelijke achtergrondstations zijn de stikstofoxideconcentraties een stuk lager. In alle stations zijn de NO_x-concentraties significant gedaald dankzij de vele maatregelen om de NO_x-emissies te beperken. Ook de NO-concentraties kenden een dalende trend in de laatste 20 jaar. De trend voor de NO₂-concentraties is echter minder duidelijk. In de meeste gevallen wordt er geen of een weinig significante trend waargenomen. Waar er wel een significante daling is van de NO₂-concentraties (Borgerhout en Ukkel) is deze daling beduidend lager dan de daling van de NO_x-concentraties. Dit bevestigt de trends die ook elders in Europa worden waargenomen. Wat de ozonconcentraties betreft, worden er in de verkeers- en stedelijke stations geen significante trends waargenomen. In de stedelijke achtergrond- en nog meer in de landelijke stations daarentegen is wel een significant stijgende trend te zien. Deze stijging deed zich voornamelijk voor tot 2000, waarna er eerder een stagnatie optreedt. In het uitgesproken landelijke station Offagne, dat quasi niet beïnvloed wordt door verkeersemissies, en waar dus weinig NO-titratie plaatsvindt, zijn de ozonachtergrondconcentraties toegenomen van 18 ppb (36 µg/m³) in 1986 tot 28 ppb (56 µg/m³) in 2008. Dit is een stijging van 56% of ongeveer 0,45 ppb per jaar.



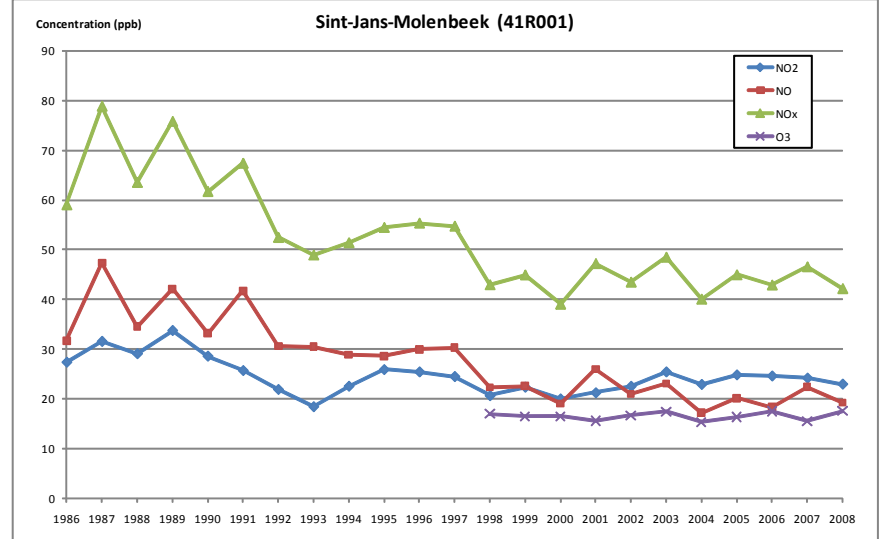
1998-2008	NO2	NO	NOx	O3
Significant		0,05	0,1	
Sen's Slope estimation	-0,157	-0,837	-0,811	0,001



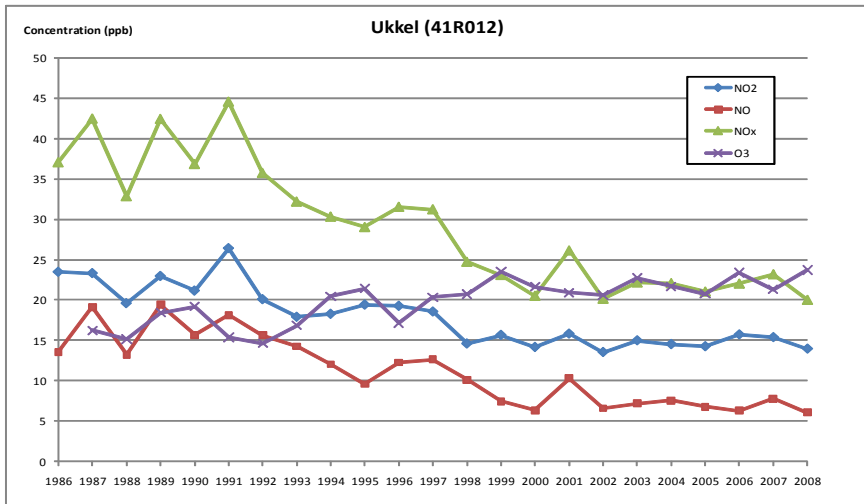
1995-2008	NO2	NO	NOx	O3
Significant		0,05	0,01	0,01
Sen's Slope estimation	-0,201	-0,903	-1,011	0,168



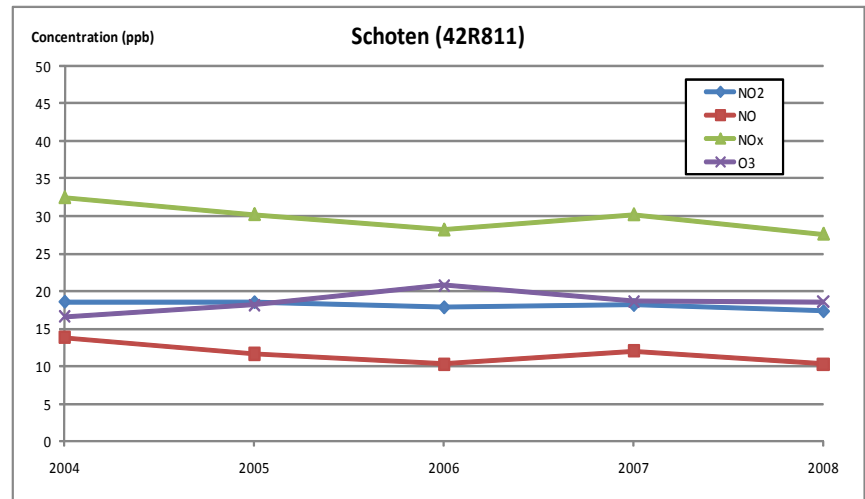
1986-2008	NO2	NO	NOx	O3
Significant	0,001	0,001	0,001	
Sen's Slope estimation	-0,251	-1,359	-1,570	-0,051



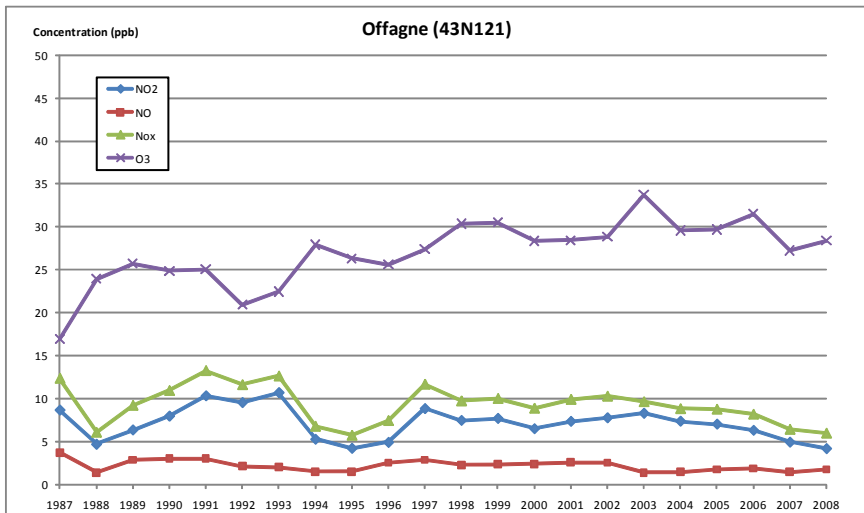
1986-2008	NO2	NO	NOx	O3
Significant	0,05	0,001	0,001	
Sen's Slope estimation	-0,248	-0,930	-1,098	0,024



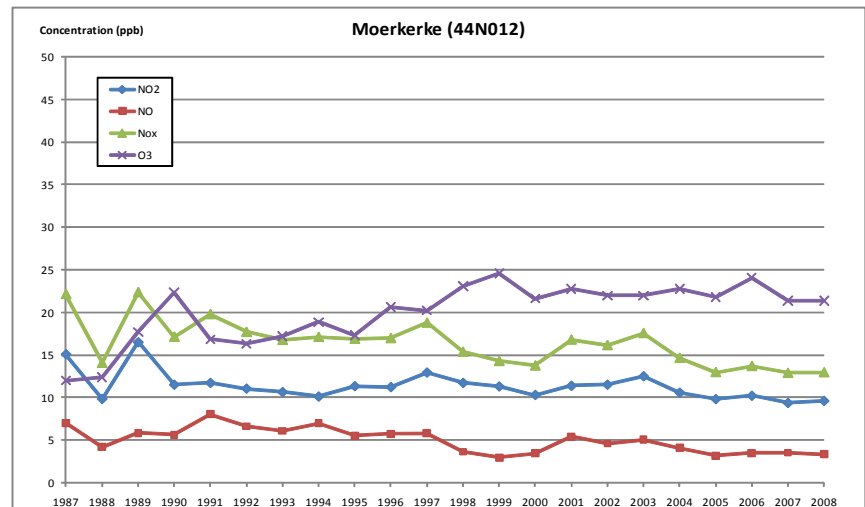
1986-2008	NO2	NO	NOx	O3
Significant	0,001	0,001	0,001	0,001
Sen's Slope estimation	-0,442	-0,579	-0,983	0,324



2004-2008	NO2	NO	NOx	O3
Significant	0,1		0,1	
Sen's Slope estimation	-0,293	-0,748	-1,038	0,366



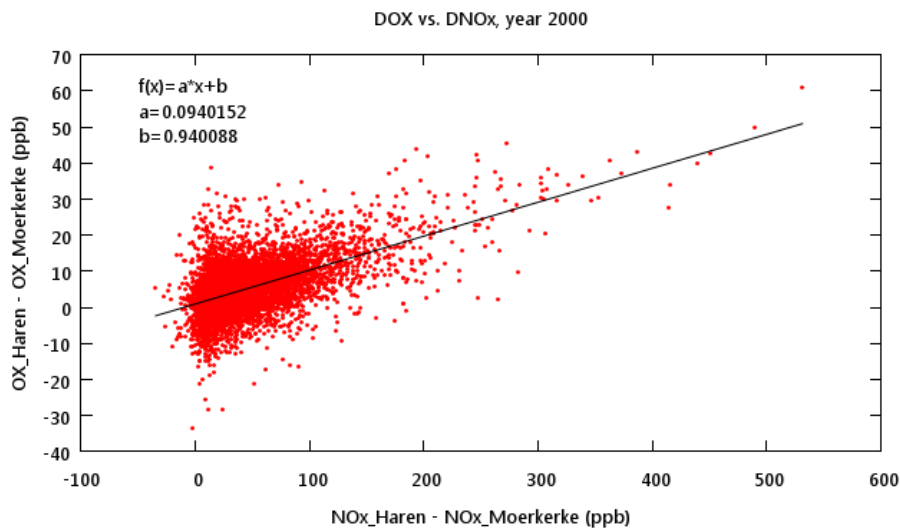
1987-2008	NO2	NO	NOx	O3
Significant		0,05	0,05	0,001
Sen's Slope estimation		-0,093	-0,058	0,360



1987-2008	NO2	NO	NOx	O3
Significant		0,001	0,001	0,01
Sen's Slope estimation		-0,174	-0,314	0,390

4.3 Analyse van de NO₂-omgevingsconcentraties

De bijdrage van de directe NO₂-uitstoot in de totale NO₂-omgevingsconcentraties werd zoals hierboven beschreven bepaald voor de verkeersstations, de stedelijke stations en de stedelijke achtergrondstations. In een eerste stap wordt het verschil berekend in oxidant tussen het te onderzoeken station en het daaraan gekoppelde 'achtergrondstation'. Figuur 7 geeft het verschil in oxidant (ΔOX) ten opzichte van het verschil in stikstofoxiden (ΔNO_x) voor het stationspaar Haren-Moerkerke in 2000. De helling van de lineaire fit door deze punten is een maat voor de totale NO_x-emissies die worden uitgestoten onder de vorm van directe NO₂. In het voorbeeld van Figuur 7 is dat 9,4%.

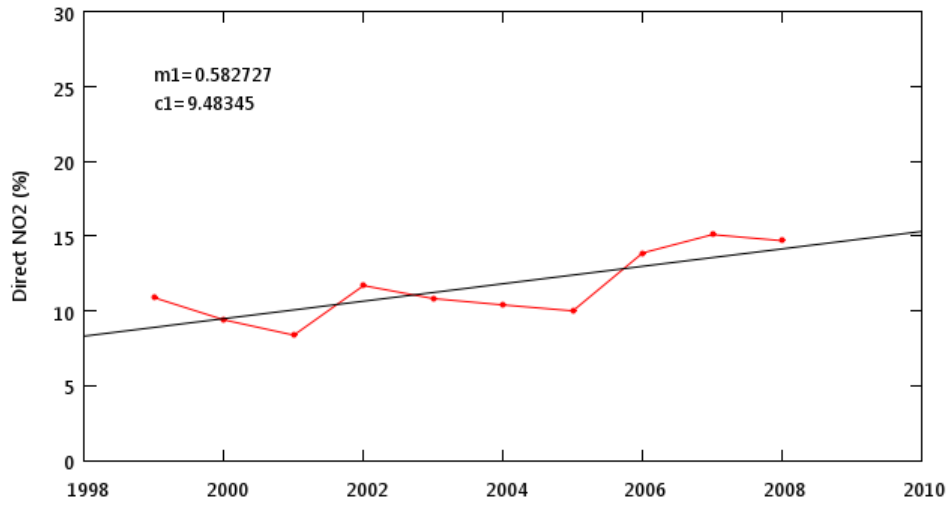


Figuur 7: ΔOX in functie van ΔNO_x voor het verkeersstation Haren gekoppeld aan het landelijke station Moerkerke voor het jaar 2000.

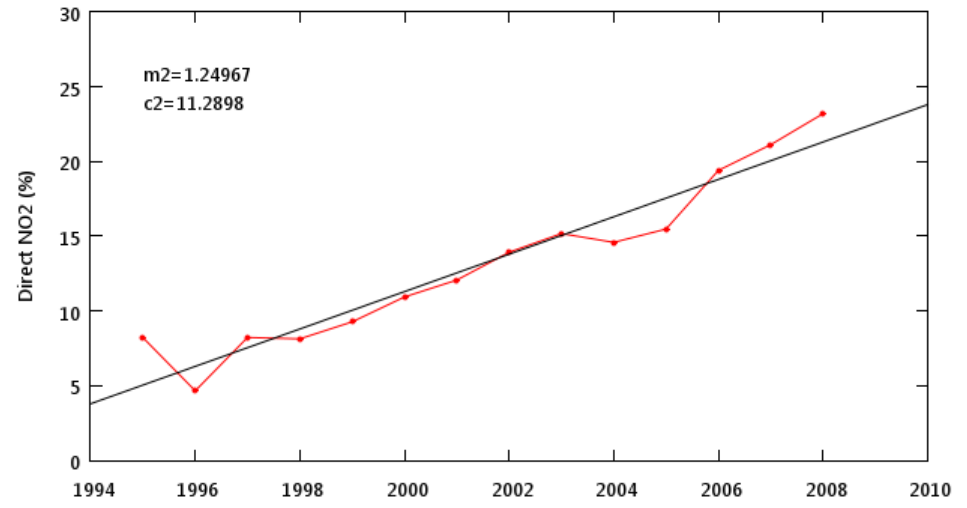
Figuur 8 toont dan de evolutie van de directe NO₂-emissies voor elk station met het landelijke station te Moerkerke gebruikt als achtergrondstation. Uit de lineaire fits is het duidelijk dat de fractie primaire NO₂-uitstoot gevoelig is toegenomen in het laatste decennium, behalve voor het stedelijke achtergrondstation te Ukkel. Voor het verkeersstation Sint-Lambrechts-Woluwe is deze stijging zeer uitgesproken met een NO₂/NO_x-verhouding van 5% in 1995 tot 21% in 2008. Voor het verkeersstation Haren en het stedelijke achtergrondstation Sint-Jans-Molenbeek noteren we een stijging met 5% respectievelijk tussen 1999 en 2008 en tussen 1998 en 2008. De lineaire fit in Ukkel geeft een daling van de NO₂/NO_x-emissiefractionen weer, maar hier schommelen de waarden per jaar sterk waardoor de trend minder zeker wordt. Voor de korte periode 2004-2008 tenslotte is ook een toename van 3% merkbaar in het stedelijke achtergrondstation te Schoten.

De emissiefractionen uit Figuur 8 werden gebruikt om de bijdrage van de directe NO₂-emissies en de bijdrage van de fotochemische conversie tot de totale NO₂-omgevingsconcentratie te berekenen. De volledige analyse voor elk station van de verschillende bijdragen tot de totale NO₂-concentraties voor het beginjaar van de meetreeks en het jaar 2008 staat in Tabel 6. Alle waarden zijn in ppb. De 3 percentages geven het relatieve aandeel t.o.v. de totale NO₂-omgevingsconcentraties aan en de 2

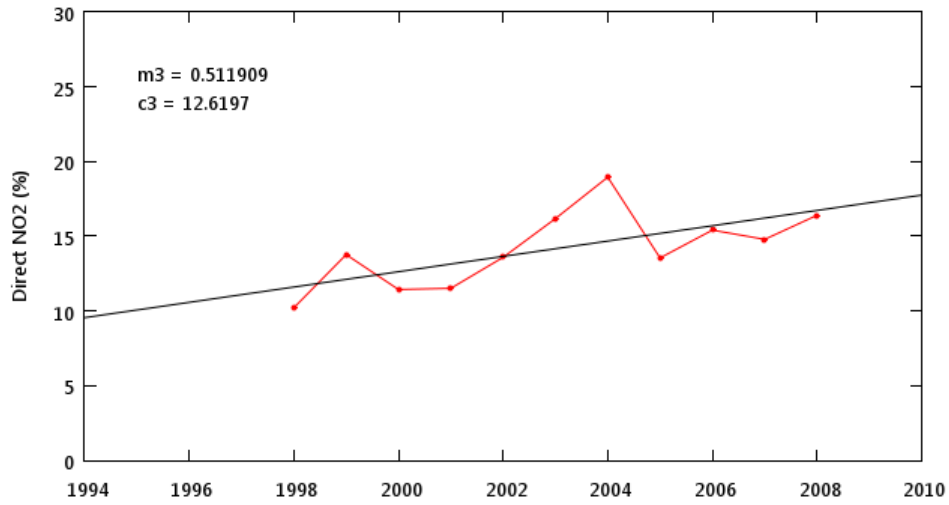
Haren - Moerkerke



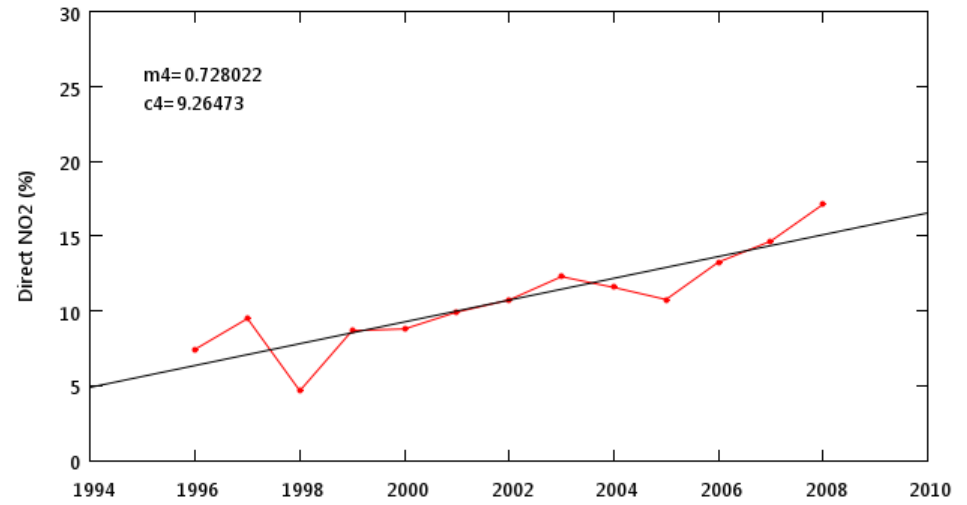
Sint-Lambrechts-Woluwe - Moerkerke

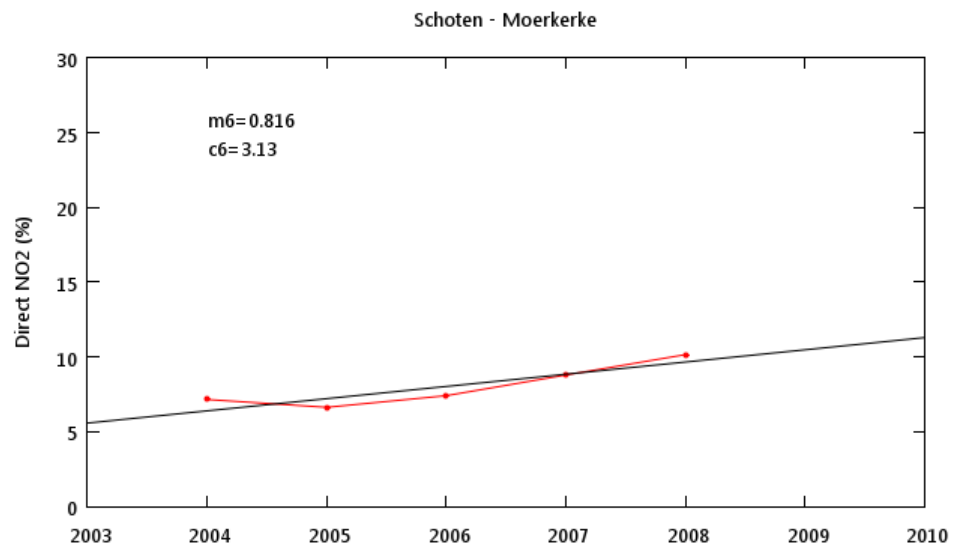
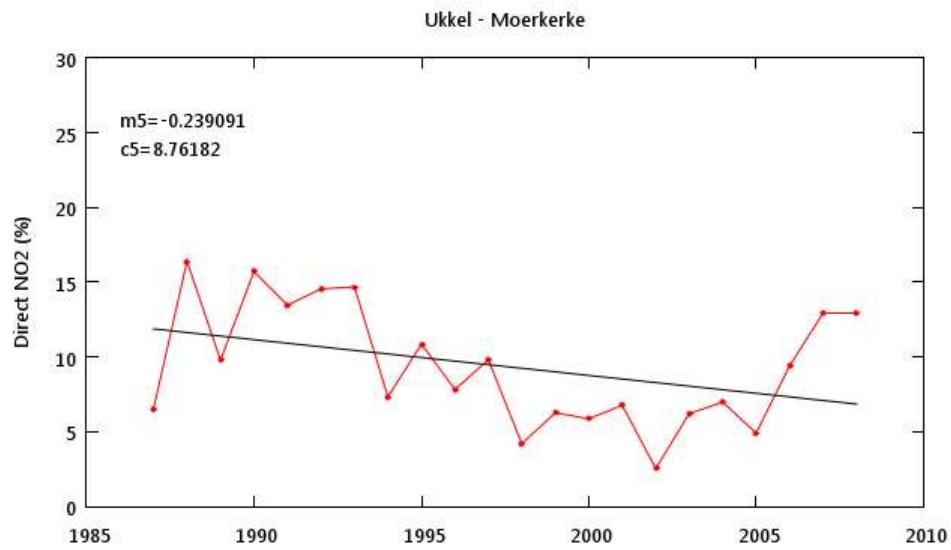


Sint-Jans-Molenbeek - Moerkerke



Borgerhout - Moerkerke





Figuur 8: Evolutie van de NO_2/NO_x -emissiefractionen voor elk station met Moerkerke (44N012) als achtergrondstation. Aan de data is een lineaire functie $f(x)=m*(x-2000)+c$ gefit.

Tabel 6: Analyse van de verschillende bijdragen tot de NO₂-omgevingsconcentraties voor 6 stations met Moerkerke (44N012) als achtergrondstation.

	Verkeer Haren - Moerkerke						Verkeer St-Lambr.-Wol. - Moerkerke						Stedelijk St-Jans-Molenbeek - Moerkerke					
	1999		2008				1995		2008				1998		2008			
achtergrond	11,31	45%	9,60	41%			11,34	38%	9,60	43%			11,73	57%	9,60	41%		
Directe NO ₂	3,92	16%	28%	5,96	25%	43%	1,76	6%	9%	4,56	21%	36%	3,18	16%	36%	4,97	21%	36%
NO/O ₃ conversie	9,93	39%	72%	8,02	34%	57%	16,76	56%	91%	7,96	36%	64%	5,54	27%	64%	8,90	38%	64%
berekende concentratie NO₂ (som van de 3 bijdragen)	25,16		23,58				29,86		22,12				20,45		23,47			
gemeten concentratie NO ₂	25,41		24,28				25,27		21,76				20,67		22,98			
	Stedelijk Borgerhout - Moerkerke						Stedelijke achtergrond Ukkel - Moerkerke						Stedelijke achtergrond Schoten - Moerkerke					
	1999		2008				1987		2008				2004		2008			
achtergrond	11,23	42%	9,60	42%			15,10	67%	9,60	68%			10,57	55%	9,60	55%		
Directe NO ₂	2,56	10%	16%	4,13	18%	31%	2,32	10%	31%	0,50	4%	11%	1,17	6%	14%	1,44	8%	18%
NO/O ₃ conversie	13,02	49%	84%	9,38	41%	69%	5,16	23%	69%	4,08	29%	89%	7,37	39%	86%	6,51	37%	82%
berekende concentratie NO₂ (som van de 3 bijdragen)	26,81		23,11				22,58		14,18				19,11		17,55			
gemeten concentratie NO ₂	27,15		23,44				23,32		13,96				18,59		17,31			

percentages daarnaast geven het relatieve aandeel aan in de som van de bijdrage van de directe NO₂-emissies en de bijdrage van NO/O₃-conversie. De goede overeenkomst tussen de som van de verschillende berekende bijdragen en de gemeten concentraties rechtvaardigt de gebruikte werkmethode. Algemeen stellen we vast dat de gemeten NO₂-concentraties in 2008 in elk station behalve in Sint-Jans-Molenbeek enkele ppb lager liggen dan in het eerste jaar van de meetreeks. Dit terwijl de bijdrage van directe NO₂-emissies in alle stations behalve te Ukkel in absolute waarde met enkele ppb is toegenomen. De bijdrage van de NO₂-achtergrond schommelt rond de 40% in de verkeers- en stedelijke stations in 2008. In de stedelijke achtergrondstations ligt dat aandeel hoger met 55% te Schoten en 68% te Ukkel omdat de andere twee bijdragen daar kleiner zijn. Verder kunnen we besluiten dat in elk meetstation de bijdrage van de NO conversie naar NO₂ door het fotochemisch evenwicht tussen NO_x en O₃ groter is dan de bijdrage aan directe NO₂ emissies. Het belang van deze laatste bijdrage neemt echter wel toe in 5 van de 6 meetstations. Voornamelijk in de verkeersstations en de stedelijke stations is het groeiende aandeel van de directe NO₂-bijdrage in de totale NO₂-omgevingsconcentraties duidelijk merkbaar. In Haren is dit aandeel gestegen van 16% in 1999 tot 25% in 2008. In Sint-Lambrechts-Woluwe is dit van 6% in 1995 naar 21% in 2008 geëvolueerd. Ook in de stedelijke stations Sint-Jans-Molenbeek en Borgerhout stellen we respectievelijke stijgingen vast van 16% tot 21% (periode 1998-2008) en van 10% tot 18% (periode 1999-2008). In het stedelijke achtergrondstation te Ukkel wordt het belang van de directe NO₂-uitstoot kleiner. In 1987 zorgden de directe NO₂-emissies daar nog voor 10% van de totale NO₂-concentraties. In 2008 was dit gedaald tot 4%. In Schoten berekenen we een toename van 2% in het relatief aandeel van de directe NO₂-emissies voor de korte tijdsreeks van 5 jaar. De relatieve bijdrages van de NO/O₃-conversie zijn in alle stations behalve in Sint-Jans-Molenbeek en in Ukkel gedaald. Deze bijdrages maken in 2008 tussen de 30% en 40% uit van de totale NO₂-omgevingsconcentraties. Het enigszins afwijkende resultaat voor het stedelijke achtergrondstation te Ukkel ten opzichte van de verkeers- en stedelijke stations, namelijk een kleinere relatieve bijdrage van de directe NO₂-emissies tot de totale NO₂-concentraties en afnemend belang van die bijdrage, toont aan dat de directe NO₂-uitstoot van het verkeer een veel minder grote invloed heeft op de uiteindelijke omgevingsconcentraties aan NO₂ in stedelijke achtergrondregio's. Het resultaat in Ukkel is analoog aan de conclusie uit de Nederlandse studie van (Keuken, et al., 2009).

Figuur 9 toont analoog aan Figuur 8 de evolutie in directe NO₂-emissies voor elk station met Offagne als achtergrondstation. Ondanks het feit dat er een iets lagere NO₂/NO_x-emissiefraction (enkele %) wordt berekend wanneer Offagne als achtergrondstation wordt gekozen, is de evolutie volledig gelijklopend als deze met Moerkerke als achtergrondstation. De grootste stijging wordt waargenomen voor het verkeersstation Sint-Lambrechts-Woluwe.

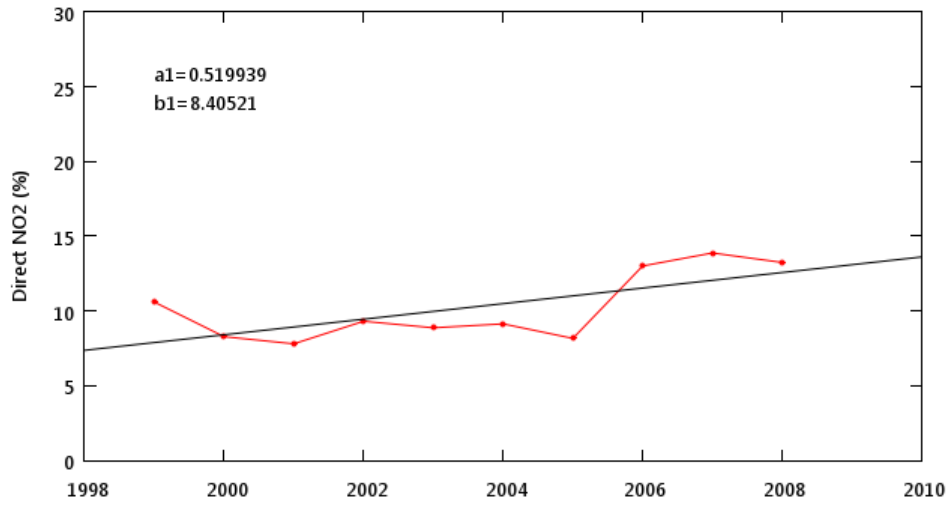
Tabel 7 vat dan weer alle bijdragen tot de totale NO₂-omgevingsconcentraties samen, nu met het landelijke station Offagne gekoppeld aan elk station. Wat meteen opvalt is dat de NO₂-achtergrondconcentratie, dus de jaargemiddelde NO₂-concentratie in Offagne, een stuk lager ligt dan deze van het station in Moerkerke. Deze kleinere relatieve bijdrage van de achtergrond (20 à 30% in 2008) leidt tot een grotere relatieve bijdrage van de NO/O₃-conversie (rond 60% in 2008). De bijdrage van de directe NO₂-emissies blijft min of meer gelijk, wat er op wijst dat de keuze van het achtergrondstation weinig invloed heeft op de berekening van de directe NO₂-uitstoot. Dit is een bijkomend argument dat de in deze studie gebruikte methodologie wetenschappelijke verantwoord is.

Voor de evolutie in de relatieve bijdrage van de directe NO₂-uitstoot kunnen dus dezelfde conclusies getrokken worden als bij de keuze van Moerkerke als achtergrondstation. De directe NO₂ bijdrage stijgt in de verkeers- en stedelijke stations tot 20 à 25% van de totale NO₂-concentraties. In Ukkel daalt de directe NO₂-bijdrage van 14% in 1987 tot 8% in 2008 en in Schoten stijgt deze tot 13%. Een verschil met de vorige analyse is wel dat de relatieve bijdrage van de NO/O₃-conversie in elk station behalve in Sint-Lambrechts-Woluwe toeneemt in plaats van afneemt met de tijd. Relatief gezien ten opzichte van de directe NO₂-emissies echter (dus de NO₂-achtergrond buiten beschouwing gelaten) is de trend in die bijdrage dalend. Dit betekent dat de relatieve bijdrage van de directe NO₂-emissies sneller aan belang wint dan de relatieve bijdrage van de NO/O₃-conversie. Door de ligging van Moerkerke (ten noordwesten en westen van de overige stations) wordt dat station (44N012) betrouwbaarder beschouwd als achtergrondstation dan dat van Offagne (43N121) (ten zuidoosten ten opzichte van de overige stations), gezien de overheersende windrichting in België.

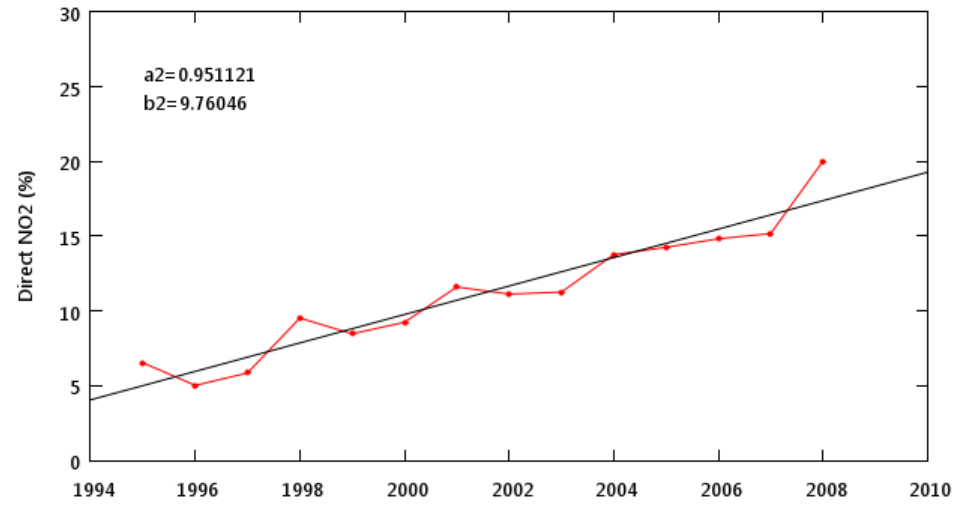
5 Besluit

Ondanks de relatief belangrijke dalingen in de NO_x-concentraties worden er geen of slechts beperkte dalingen van de NO₂-concentraties waargenomen. Daarom werden de verschillende bijdragen tot de NO₂-omgevingsconcentraties en hun evolutie onderzocht. In stedelijke meetstations en stations in de onmiddellijke omgeving van druk verkeer is de bijdrage van directe NO₂-uitstoot door het verkeer de laatste tien jaar behoorlijk toegenomen. Deze bijdrage bedraagt momenteel 20 à 25% van de totale NO₂-concentraties. Dit is een stuk hoger dan in stedelijke achtergrondmeetplaatsen. In de stedelijke achtergrondstations is de invloed van de directe NO₂-uitstoot minder uitgesproken en ligt dit percentage rond de 10%. De belangrijkste redenen voor de toenemende directe NO₂-emissies zijn het stijgend aantal dieselwagens en het gebruik van oxidatiekatalysatoren en deeltjesfilters. De oxidatie van NO tot NO₂ door ozon (zie het NO_x-O₃-evenwicht) draagt wel nog steeds het meeste bij in alle stations ten opzichte van de directe NO₂-bijdrage, maar het toenemende belang van de directe NO₂-uitstoot is, zeker in de stedelijke en verkeersrijke stations, niet te verwaarlozen. De stijgingen in de directe NO₂-emissies zijn een extra probleem die het tijdig halen van de Europese NO₂ jaargrenswaarde (in verkeersgerichte meetplaatsen) nog zal bemoeilijken. Om het NO₂ probleem op te lossen zullen in de eerste plaats bijkomende maatregelen genomen moeten worden om de NO_x-emissies verder te verminderen met als doel de NO₂ achtergrondconcentraties verder te verlagen. In stedelijke en verkeersstations zullen bijkomende lokale emissiereducerende maatregelen nodig zijn om de Europese NO₂ jaargrenswaarde te halen.

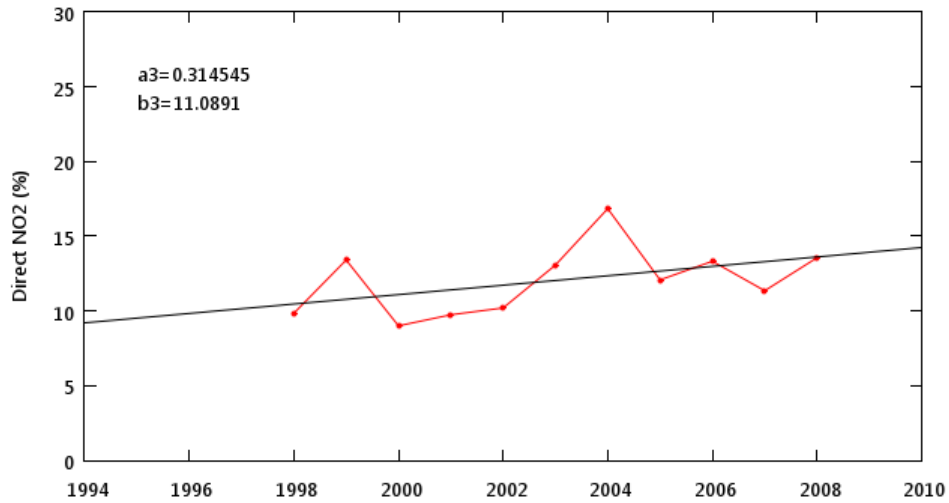
Haren - Offagne



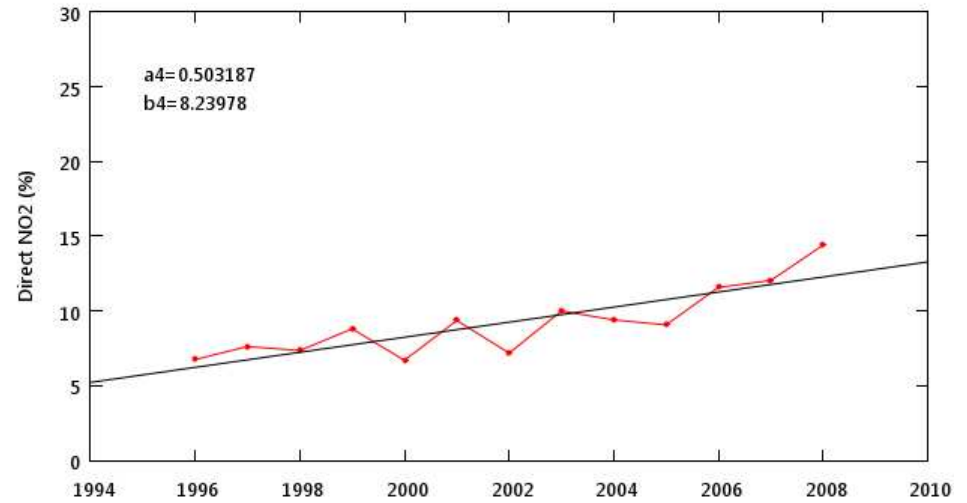
Sint-Lambrechts-Woluwe - Offagne

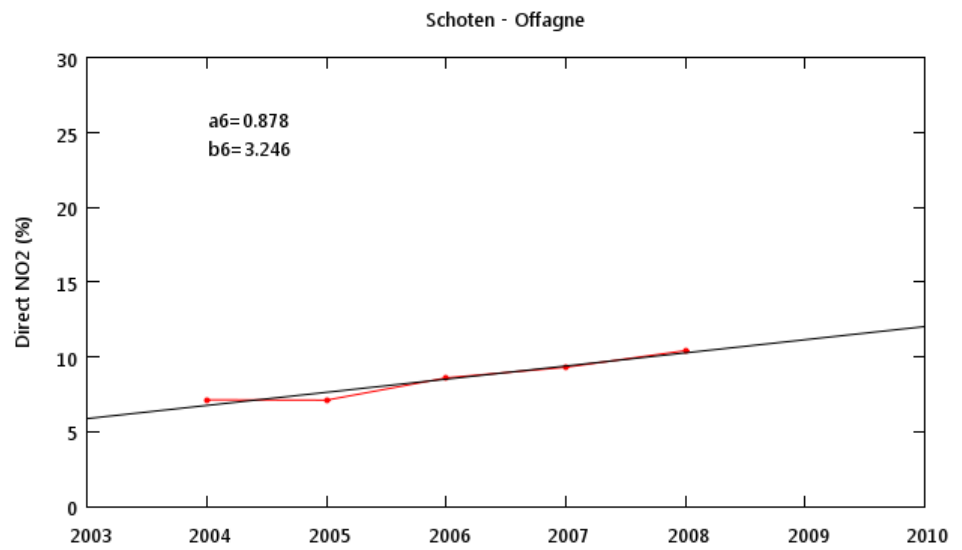
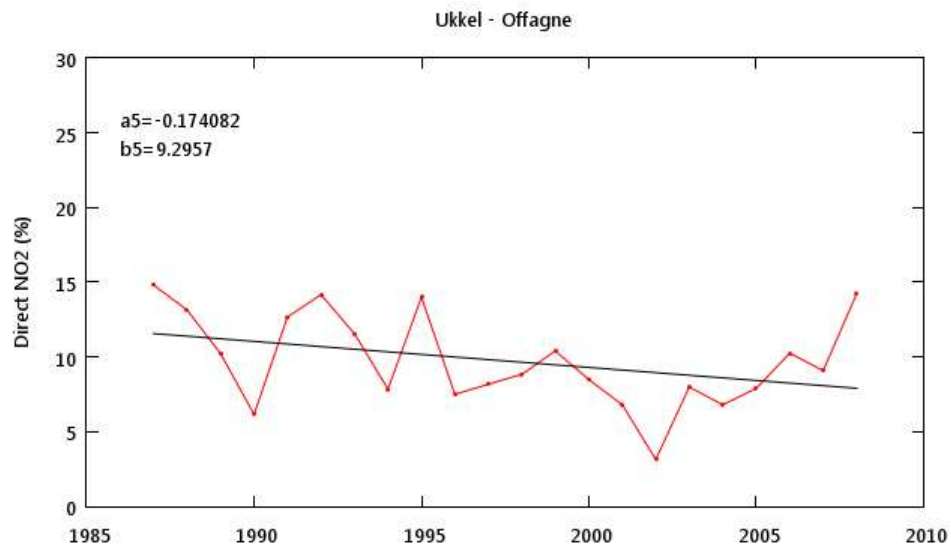


Sint-Jans-Molenbeek - Offagne



Borgerhout - Offagne





Figuur 9: Evolutie van de NO₂/NO_x-emissiefractionen voor elk station met Offagne (43N121) als achtergrondstation. Aan de data is een lineaire functie $f(x)=a*(x-2000)+b$ gefit.

Tabel 7: Analyse van de verschillende bijdragen tot de NO₂-omgevingsconcentraties voor 6 stations met Offagne (43N121) als achtergrondstation.

	Verkeer Haren - Offagne						Verkeer Sint-Lambrechts-Woluwe - Offagne						Stedelijk Sint-Jans-Molenbeek - Offagne					
	1999		2008				1995		2008				1998		2008			
achtergrond	7,68	30%	4,20	18%			4,24	21%	4,20	19%			7,45	37%	4,20	18%		
Directe NO ₂	3,83	15%	22%	6,21	26%	31%	1,84	9%	11%	4,84	22%	28%	3,40	17%	27%	4,92	22%	26%
NO/O ₃ conversie	13,83	55%	78%	13,53	56%	69%	14,51	70%	89%	12,51	58%	72%	9,06	46%	73%	13,73	60%	74%
berekende concentratie NO₂ (som van de 3 bijdragen)	25,34		23,94				20,59		21,55				19,91		22,85			
gemeten concentratie NO₂	25,41		24,28				25,27		21,76				20,67		22,98			

	Stedelijk Borgerhout - Offagne						Stedelijke achtergrond Ukkel - Offagne						Stedelijke achtergrond Schoten - Offagne					
	1996		2008				1987		2008				2004		2008			
achtergrond	4,92	26%	4,20	18%			8,64	32%	4,20	30%			7,36	40%	4,20	24%		
Directe NO ₂	2,60	14%	19%	4,22	18%	22%	3,95	14%	21%	1,11	8%	11%	1,58	9%	14%	2,21	13%	17%
NO/O ₃ conversie	11,22	60%	81%	14,74	64%	78%	14,82	54%	79%	8,59	62%	89%	9,36	51%	86%	10,78	63%	83%
berekende concentratie NO₂ (som van de 3 bijdragen)	18,74		23,16				27,41		13,90				18,30		17,19			
gemeten concentratie NO₂	27,15		23,44				23,32		13,96				18,59		17,31			

Referenties

- Air Quality Exchange Group** Trends in primary nitrogen dioxide in the UK [Journal]. - 2007.
- Air Quality Expert Group** Nitrogen Dioxide in the United Kingdom [Report]. - 2004. - <http://www.defra.gov.uk/environment/airquality/aqeg>.
- Carslaw David C. and Beevers Sean D.** Estimations of road vehicle primary NO₂ exhaust emission fractions using monitoring data in London [Journal] // Atmospheric Environment 39. - 2005. - pp. 167-177.
- Carslaw David C. and Beevers Sean D.** Investigating the potential importance of primary NO₂ emissions in a street canyon [Journal] // Atmospheric Environment 38. - 2004. - pp. 3585-3594.
- Carslaw David C. and Beevers Sean D.** New Directions: Should road vehicles emissions legislation consider primary NO₂? [Journal] // Atmospheric Environment 38. - 2004. - pp. 1233-1234.
- Carslaw David C.** Evidence of an increasing NO₂/NO_x emissions ratio from road traffic emissions [Journal] // Atmospheric Environment 39. - 2005. - pp. 4793-4802.
- Carslaw David C., Beevers Sean D. and Bell Margaret C.** Risks of exceeding the hourly EU limit value for nitrogen dioxide resulting from increased road transport emissions of primary nitrogen dioxide [Journal] // Atmospheric Environment 41. - 2007. - pp. 2073-2082.
- Clapp Lynette J. and Jenkin Michael E.** Analysis of the relationship between ambient levels of O₃, NO₂ and NO as a function of NO_x in the UK [Journal] // Atmospheric Environment. - 2001. - pp. 6391-6405.
- Derwent R. G. [et al.]** Trends over a 20-year period from 1987 to 2007 in surface ozone at the atmospheric research station, Mace Head, Ireland [Journal] // Atmospheric Environment 41. - 2007. - pp. 9091-9098.
- Fierens Frans** Dalende NO_x emissies - stagnerende NO₂ concentraties in stedelijke omgeving: wat is er aan de hand? [Report] / IRCEL-VMM. - 2008.
- Grice Susannah [et al.]** Recent trends and projections of primary NO₂ emissions in Europe [Journal] // Atmospheric Environment 43. - 2009. - pp. 2154-2167.
- Jacobson Mark Z. [et al.]** The effect on photochemical smog of converting the U.S. fleet of gasoline vehicles to modern diesel vehicles [Journal] // Geophysical Research Letters Vol. 31. -2004.- , L02116.
- Jenkin Michael E.** Analysis of sources and partitioning of oxidant in the UK-Part 1: the NO_x-dependence of annual mean concentrations of nitrogen dioxide and ozone [Journal] // Atmospheric Environment 38. - 2004. - pp. 5117-5129.
- Keuken Menno, Roemer Michiel and Van den Elshout Sef** Trend analysis of urban NO₂ concentrations and the importance of direct NO₂ emissions versus ozone/NO_x equilibrium [Journal] // Atmospheric Environment. - 2009. - pp. 4780-4783.
- Salmi Timo [et al.]** Detecting trends of annual values of atmospheric pollutants by the Mann-Kendall test and Sen's slope estimates - The Excel template application MAKESSENS [Report] : Publications on air quality / Finnish Meteorological Institute. - Helsinki : [s.n.], 2002. - 31.

Vanderstraeten Peter F., Wauters Eric L. and Verduyn Geert E. Tunnel air quality [Journal] // Staub-Reinhaltung der Luft 51. - 1991. - pp. 83-90.

Vanderstraeten Peter F. Luchtkwaliteit in de Leopold II-tunnel 2006, technisch rapport, Brussels Instituut voor Milieubeheer.