

## TNO-rapport

**MON-RPT-033-DTS-2007-02842**

### Onderzoek naar het effect van retrofit roetfilters op de emissies van personenwagens met een dieselmotor

T +31 15 269 20 00  
F +31 15 269 21 11  
info-lenT@tno.nl

Datum	22 oktober 2007
Auteur(s)	R. Verbeek, TNO Industrie en Techniek R.J. Vermeulen, TNO Industrie en Techniek C.A.M. Krul, TNO Kwaliteit van Leven I.M. Kooter, TNO Bouw en Ondergrond M.M.G. Houtzager, TNO Bouw en Ondergrond  Met medewerking van: F.R. Cassee, RIVM M.E. Gerlofs-Nijland, RIVM
Opdrachtgever	Ministerie van VROM DGM/KvI/EV (IPC 650) T.a.v. K. de Witte en H. Baarbé
Projectnummer	033.15675
Aantal pagina's Aantal bijlagen	34 (incl. bijlagen)

Alle rechten voorbehouden. Niets uit dit rapport mag worden vermenigvuldigd en/of openbaar gemaakt door middel van druk, fotokopie, microfilm of op welke andere wijze dan ook, zonder voorafgaande schriftelijke toestemming van TNO.

Indien dit rapport in opdracht werd uitgebracht, wordt voor de rechten en verplichtingen van opdrachtgever en opdrachtnemer verwezen naar de Algemene Voorwaarden voor onderzoeksopdrachten aan TNO, dan wel de betreffende terzake tussen de partijen gesloten overeenkomst.

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

## Samenvatting

Het ministerie VROM heeft, in het kader van het beleid om de fijnstofconcentraties in Nederland te reduceren, subsidieregelingen ingesteld om de roetemissie van personenwagens met dieselmotor te reduceren. Er is een regeling voor affabriek<sup>1\*)</sup> roetfilters (sinds 2005) en een regeling voor retrofit roetfilters (sinds medio 2006). De laatste categorie, met een deeltjesreductie van minimaal 30% op massabasis, wordt geïnstalleerd op gebruikte voertuigen.

De retrofit roetfilters worden ook wel “open” of “halfopen” filters genoemd, omdat een deel van de uitlaatgassen ongefilterd door het filter kan stromen. Het monteren van een volledig gesloten filter met een hoog rendement in een gebruikte auto is in de praktijk niet haalbaar of te kostbaar. Mede door de van gesloten filters afwijkende technologie is door enkele specialisten, nationaal en internationaal, in de media bezorgdheid uitgesproken over mogelijke ongewenste neveneffecten van de open filters. De toepassing van de door VROM gesubsidieerde retrofit filters zouden kunnen leiden tot:

- 1) Een hogere en/of extra uitstoot van toxische componenten zoals polycyclische aromatische koolwaterstoffen (PAK) waarbij vooral aan de oxy-PAK en nitro-PAK een mutagene en/of kankerverwekkende werking toegeschreven zou kunnen worden, en
- 2) een toename van het aantal deeltjes die ook nog eens kleiner in afmeting zouden zijn in vergelijking tot ongefilterde uitstoot.

De emissies van dieselmotoren worden al jaren uitvoerig bestudeerd. De aandacht ging aanvankelijk uit naar de kankerwekkende eigenschappen door langdurige blootstelling. De laatste jaren wordt ook gekeken naar effecten van een paar uur blootstelling aan relatief hoge, maar zeker geen onrealistische concentraties. Daarbij wordt bij gezonde proefpersonen een nadelig effect op hart en bloedvaten gevonden, dat overigens ook snel weer verdwijnt. Toch is niet goed bekend waardoor die toxiciteit precies veroorzaakt wordt: is er een relatie met de grootte van de deeltjes of is het de chemische samenstelling van de deeltjes of de combinatie hiervan met de gasvormige componenten die de toxiciteit bepaalt? Of is het de "cocktail" van emissies inclusief NO<sub>2</sub> die de toxiciteit bepaalt? Kortom er zijn veel onzekerheden in de beoordeling van gezondheidsaspecten en risico's van emissies van dieselmotoren.

Om de vragen bij retrofit roetfilters te beantwoorden is in de periode mei-september 2007 een experimenteel wetenschappelijk onderzoek uitgevoerd. Het onderzoek is uitgevoerd door specialisten op het gebied van gezondheidsaspecten, deeltjesfilters en chemische analyses van TNO en het RIVM. Daarnaast waren deze expertises ook aanwezig in het adviespanel, gevormd door specialisten van de TU-Delft, UMC St Radboud en de GGD Amsterdam.

---

<sup>1\*)</sup> Affabriek filter: dit is een door de fabrikant geïnstalleerd “gesloten” filter, waarbij het motormanagement zorg draagt voor regeneratie (verbranding van het roet).

Het onderzoek bestond uit vergelijkende metingen aan 3 voertuigen met 3 verschillende typen retrofit roetfilter. Daarnaast is ter vergelijking een voertuig met affabriek filter gemeten.

De testen zijn uitgevoerd op een rollenbank, waarbij elk voertuig een gestandaardiseerde ritcyclus reed die bestond uit een koude start, gevolgd door een route door de stad, een landelijk gebied en de snelweg. De meetopstelling bestond uit standaard emissiemetapparatuur, deeltjesgrootte meetapparatuur en verschillende monsternamesystemen voor chemische componenten en voor het *in vitro* onderzoek. In het totaal zijn ca. 80 chemische componenten geanalyseerd bestaande uit lichte en zware koolwaterstoffen, aldehyden en PAK verbindingen (waaronder enkele oxy-PAK en nitro-PAK). De componenten zijn op te splitsen in gasvormige en deeltjesgebonden componenten.

Het *in vitro* toxiciteitonderzoek bestond uit testen ter bepaling van de mutagene activiteit (Ames test), celschade (celtoxiciteit), een test waarmee het verbruik van anti-oxidanten wordt gemeten (anti-oxidant verbruik), en een test waarmee de reactiviteit van organische verbindingen kan worden bepaald (DTT test). Het onderzoek richtte zich alleen op roetdeeltjes en deeltjesgebonden stoffen en niet op de gasvormige verontreinigingen.

Het uitgevoerde onderzoek kan bestempeld worden als onderzoek, waarbij op innovatieve wijze de koppeling is gelegd tussen emissiemetingen en *in vitro* onderzoek. Toch is vanwege de beschikbare tijd het aantal testvoertuigen tot een drietal beperkt. Ook in gezondheidskundig opzicht is het een onderzoek van beperkte omvang. De effecten op toxiciteit/mutageniteit van de kleinste fractie van ultrafijne deeltjes (<20 nm) is bijvoorbeeld maar beperkt onderzocht. De gegevens van dit onderzoek kunnen voor wat betreft de gezondheidseffecten dan ook slechts als indicatie gezien worden. De uitkomsten leiden niet tot harde conclusies over toe- of afname van risico's voor de volksgezondheid.

Met inachtneming van de beperkingen van het onderzoek kunnen de volgende conclusies met betrekking tot de toepassing van retrofit roetfilters op personenwagens met dieselmotor worden getrokken:

- 1) Extra vorming van PAK door toepassing van een retrofit roetfilter is niet aangetoond. De metingen wijzen juist op een afname. De gemeten afname in emissies geldt voor vrijwel alle onderzochte chemische componenten en voor de gemiddelde oxy-PAK en nitro-PAK emissies.
- 2) Onderzoek gericht op schadelijke effecten van de deeltjesvormige emissie voor de mens onderschrijft de meetresultaten van de chemische componenten: er is geen stijging aangetoond van reactieve organische en/of mutagene componenten, en een toename van mutaties in het bacterieel DNA is vrijwel uitgesloten.
- 3) Er is geen stijging aangetoond van het totaal aantal deeltjes. De metingen wijzen op een afname van het totaal aantal deeltjes en een min of meer constante hoeveelheid ultrafijne deeltjes (< 100 nm), alhoewel bij 1 voertuig het aantal ultrafijne deeltjes licht toeneemt en de grootte afneemt.

- 4) Er is geen stijging aangetoond van de NO<sub>2</sub> emissie. De metingen wijzen juist op een afname.
- 5) De deeltjesmassa-emissie daalde met gemiddeld 37% tijdens de MVEG cyclus (typekeuringcyclus) en ook met gemiddeld 44% tijdens de meer praktijk gerichte CADC cyclus door toepassing van het retrofit roetfilter op de onderzochte voertuigen. Hierbij wordt opgemerkt dat regeneratie van de retrofit roetfilters niet apart is onderzocht. Er bestaat een kans dat een deel van de gefilterde deeltjes op een ander tijdstip alsnog wordt uitgestoten

Samenvattend kan gesteld worden dat de uitlaatgassen van een drietal personenwagens met dieselmotoren, zonder en met retrofit roetfilter, op een aantal facetten zijn onderzocht en dat hierbij geen indicaties naar voren zijn gekomen dat bij toepassing van het retrofit roetfilter de toxiciteit van de uitlaatgassen zal toenemen. Op basis van dit verkennend onderzoek is voor als nog geen toename te verwachten van de negatieve effecten van dieselmotoruitstoot op de volksgezondheid door toepassing van de door VROM gesubsidieerde retrofit roetfilters.

# Inhoudsopgave

	<b>Samenvatting.....</b>	<b>2</b>
<b>1</b>	<b>Inleiding.....</b>	<b>6</b>
1.1	Achtergrond dieselemissies .....	6
1.2	Doelstelling.....	7
1.3	Plan van aanpak .....	7
<b>2</b>	<b>Onderzoeksopzet.....</b>	<b>9</b>
2.1	Testvoertuigen en meetprogramma.....	9
2.2	Meetopstelling .....	10
2.3	Gemeten componenten .....	11
2.4	<i>In vitro</i> toxiciteitonderzoek.....	12
<b>3</b>	<b>Resultaten .....</b>	<b>15</b>
3.1	Voertuigconditie en resultaten tijdens de typegoedkeuringstest.....	15
3.2	Gereguleerde uitlaatgascomponenten tijdens CADAC.....	15
3.3	Chemische componenten .....	16
3.4	Deeltjesgrootteverdeling.....	19
3.5	<i>In vitro</i> toxiciteitonderzoek .....	21
<b>4</b>	<b>Discussie.....</b>	<b>24</b>
4.1	Implicaties van de resultaten voor de onderzoeksvraag.....	24
4.2	Opmerkingen rond de meetmethode.....	25
<b>5</b>	<b>Conclusies .....</b>	<b>27</b>
<b>6</b>	<b>Aanbevelingen.....</b>	<b>28</b>
	<b>Bijlage(n)</b>	
	A Samenstelling van de technische adviesgroep	
	B Lijst met gemeten chemische componenten	
	C Overzicht testcycli	

# 1 Inleiding

Medio 2006 heeft het ministerie van VROM een subsidieregeling geïntroduceerd voor het aanbrengen van retrofit roetfilters op personenauto's. Deze roetfilters moeten de deeltjes- of roetemissie met minimaal 30% op massabasis verminderen. De retrofit roetfilters worden ook wel 'open' of 'halfopen' filters genoemd, omdat een deel van de uitlaatgassen ongefilterd door het filter kan stromen. Ook is het niet uitgesloten, dat afhankelijk van de constructie van het open filter, een deel van de deeltjes "losbreekt" en alsnog naar buiten stroomt.

Aan het begin van dit jaar hebben enkele wetenschappers in de media hun zorgen geuit over mogelijke negatieve bijverschijnselen van deze nieuwe typen retrofit roetfilters. De mogelijke negatieve effecten die genoemd worden zijn:

1. Een hogere en/of extra uitstoot van toxische componenten zoals polycyclische aromatische koolwaterstoffen (PAK) waarbij vooral aan de oxy-PAK en nitro-PAK een mutagene en/of kankerverwekkende werking toegeschreven zou kunnen worden, en
2. een toename van het aantal deeltjes die ook nog eens kleiner in afmeting zouden zijn in vergelijking tot ongefilterde uitstoot.

Naar aanleiding van de media aandacht rondom retrofit roetfilters zijn eind maart 2007 in de 2<sup>e</sup> Kamer vragen gesteld aan de Minister van VROM. Zij heeft hierop TNO en het RIVM opdracht gegeven een onderzoek op te zetten dat beschreven wordt in dit rapport.

## 1.1 Achtergrond dieselemissies

Epidemiologisch onderzoek van de laatste jaren heeft laten zien dat er een associatief verband is tussen de concentraties van luchtverontreiniging en diverse gezondheidseffecten zoals vervroegde sterfte, verergering ziekten zoals astma, chronische bronchitis, luchtweginfecties, hartziekten en beroerte. Van het gemotoriseerde verkeer draagt de uitstoot van dieselmotoren aanzienlijk bij aan de luchtverontreiniging in stedelijke gebieden. Het betreft hier zowel gassen zoals stikstofoxiden als fijn stof. De uitstoot van dieselmotoren wordt al jaren uitvoerig bestudeerd. De aandacht ging aanvankelijk uit naar de kankerverwekkende eigenschappen door langdurige blootstelling. De laatste jaren wordt ook gekeken naar effecten van een paar uur blootstelling aan relatief hoge, maar zeker geen onrealistische concentraties. Acute gezondheidseffecten van blootstelling aan dieselmotoruitstoot leidt tot irritatie van neus en ogen, verminderde longfunctie, hoofdpijn, vermoeidheid en misselijkheid. Naast deze symptomen blijkt uit onderzoek met vrijwilligers dat er ook ontstekingsreactie in de luchtwegen kunnen optreden. Er zijn waarnemingen dat dieselmotoruitstoot mogelijk bijdraagt aan allergieën, bijvoorbeeld als drager voor een allergeen.

Meer recent wordt ook onderzocht in hoeverre het inhaleren van de dieselmotoruitstoot kan leiden tot een nadelig effect op hart en bloedvaten. Dit blijkt inderdaad het geval te zijn, hoewel de nadelige gezondheidseffecten ook snel weer verdwijnen. Veel van het experimentele onderzoek is uitgevoerd bij relatief hoge concentraties of zeer kortdurende blootstellingen en niet eenvoudig te vertalen naar effecten in de populatie. Er is weinig bekend waardoor die toxiciteit precies veroorzaakt wordt: is het gerelateerd aan de grootte van de deeltjes of de chemische eigenschappen?

Of is het de "cocktail" van emissies inclusief NO<sub>2</sub>? Kortom er zijn veel onzekerheden in de beoordeling van gezondheidsaspecten en risico's van emissies van dieselmotoren.

Onderzoek met behulp van meetfilters draagt bij aan het bepalen welke stoffen welk soort effect veroorzaken en dus wat de rol van het (roet)deeltjes in het geheel is. Deeltjes worden ook wel beschreven als elementair koolstof, echter, wel met een groot aantal chemische componenten die aan het oppervlak van de deeltjes zijn geadsorbeerd. Hoewel deeltjes op zich zelf ook kunnen leiden tot gezondheidseffecten, gaat de zorg toch vooral uit naar deze chemische stoffen.

Een belangrijke groep onder de chemische componenten zijn de polycyclische aromatische koolwaterstoffen. Vooral voor de oxy-PAK en de nitro-PAK was voor de start van de studie de verdenking aanwezig dat ze zouden kunnen toenemen door toepassing van het retrofit roetfilter. PAK ontstaat onder andere door incomplete verbranding of pyrolyse van koolstof bevattende materialen (organisch materiaal en fossiele brandstof) en kunnen zich zowel in de vaste als ook in de gasfase bevinden. Vanwege hun potentiële mutagene en/of carcinogene eigenschappen zijn zij veelvuldig bestudeerd. Zogenaamde oxy-PAK en nitro-PAK kunnen uit hun moedercomponenten ontstaan tijdens verbrandingsprocessen, of in de atmosfeer door de daar aanwezige oxidanten (OH·, NO<sub>3</sub>·, O<sub>3</sub>). In tegenstelling tot de moedercomponenten die voor hun carcinogeniteit in het lichaam gemetaboliseerd moeten worden door enzymen tot zeer reactieve stoffen, worden de oxy-PAK en nitro-PAK verondersteld direct mutagene en carcinogene eigenschappen te bezitten. Deze componenten kunnen een orde 3 – 300 keer meer mutageen zijn dan de bijbehorende moedercomponenten. Echter, uitgebreide gedetailleerde informatie over het ontstaan, de aanwezigheid in omgevingslucht en schadelijkheid van de nitro-PAK, en met name de oxy-PAK is nog niet voorhanden.

In het eerste kwartaal van 2007 heeft TNO een literatuurstudie uitgevoerd naar de vermeende negatieve effecten van retrofit roetfilters door na te gaan welke stoffen er mogelijk vrij komen bij passage door een retrofit roetfilter [TNO 2007]. Hierin werd geconcludeerd dat er geen duidelijke aanwijzingen waren dat er meer of andere chemische componenten vrijkomen door toepassing van een retrofit roetfilter, maar dat er ook nog maar heel weinig informatie over de toxiciteit van de uitstoot beschikbaar was. Met die achtergrond heeft het Ministerie van VROM opdracht gegeven tot een verkennend experimenteel onderzoek naar de toxiciteit van emissies van personenwagens met een retrofit roetfilter.

## **1.2 Doelstelling**

Het uitgevoerde onderzoek heeft tot doel vast te stellen of het installeren van retrofit roetfilters op personenwagens aanleiding zou kunnen geven tot een verhoogde emissie van toxische componenten. In het bijzonder wordt daarbij gelet op de emissie van oxy-PAK en nitro-PAK, mutagene en/of kankerverwekkende stoffen, chemische reactiviteit van het roet en op grootte en aantallen van de deeltjes.

## **1.3 Plan van aanpak**

Dit rapport beschrijft de resultaten van een experimenteel, wetenschappelijk onderzoek uitgevoerd in de periode van mei tot september 2007. In dit onderzoek zijn metingen verricht aan 3 voertuigen met 3 verschillende typen retrofit roetfilters. Ter vergelijking is tevens één voertuig met affabriek roetfilter gemeten.

De emissies van de 4 voertuigen zijn gemeten in het laboratorium op de rollenbank van TNO in Delft. De metingen omvatten zowel een typekeuringsritcyclus als een ritcyclus die de praktijk veel beter benaderd. Tijdens de laatstgenoemde cyclus is een groot aantal chemische componenten in het uitlaatgas bemonsterd. De monsters zijn gebruikt voor chemische analyses en toxicologisch onderzoek bij TNO Bouw en Ondergrond, TNO Kwaliteit van Leven evenals bij het RIVM.

Het onderzoek is uitgevoerd door TNO en RIVM, in nauwe afstemming met een technische adviesgroep. Deze bestaat uit wetenschappers met expertise op het gebied van toxicologie, chemie, roetfilters en meetmethoden. Zie Bijlage A voor een overzicht van de leden van de technische adviesgroep.

Het onderzoek kan bestempeld worden als een onderzoek van beperkte omvang omdat de door de overheid toegestane onderzoeksperiode geen uitgebreider onderzoek toeliet. Een uitputtende bepaling van de toxiciteit ten behoeve van een risicobeoordeling was niet mogelijk. Het accent is daarom gelegd op het fysisch-chemisch karakteriseren van de uitstoot met daarnaast een beperkte analyse van de toxiciteit. In de laatstgenoemde analyse is onderzocht hoe schadelijk de deeltjesvormige stoffen ('roet') waren in testsystemen, wat betreft 1) mutaties in bacterieel DNA (Ames test), 2) de toxiciteit op gekweekte longcellen (celtoxiciteit) en 3) de chemische reactiviteit (DDT test) en uitputting van anti-oxidanten als indicatie voor toxicologische potentie.

Dit document is een samenvattend rapport. Daarnaast wordt een uitgebreide Engelstalige versie uitgebracht met meer gedetailleerde informatie over de meetmethodes en de meetresultaten.



## 2 Onderzoeksopzet

Op basis van de hierboven beschreven doelstelling en de beschikbare tijd en middelen, is in overleg met de adviesgroep de hieronder omschreven onderzoeksopzet gekozen.

### 2.1 Testvoertuigen en meetprogramma

De emissies van de 4 voertuigen zijn gemeten in het laboratorium op de rollenbank van TNO in Delft. De 3 voertuigen met retrofit roetfilter zijn gemeten in de originele configuratie en met retrofit roetfilter. De voertuigen zijn in elke configuratie eenmaal gemeten over de MVEG-B cyclus (typekeuringscyclus) en tweemaal (in duplo) over de praktijkgerichte CADC cyclus, zie hieronder en ook Bijlage C voor gegevens van de testcycli:

- EDC cyclus (ook wel MVEG-B cyclus genoemd): dit is de formele typekeuringsritcyclus. Deze is gebruikt om de conditie van het voertuig te bepalen en om de deeltjesmassa-afname tijdens deze cyclus te meten.
- CADC ofwel Common Artemis Driving Cycle: dit is een Europese ritcyclus die veel beter de praktijkrijtsituatie nabootst. Deze ritcyclus is gebruikt voor de uitgebreide emissiemetingen inclusief chemische componenten, deeltjesgrootteverdeling en *in vitro* onderzoek. Deze ritcyclus is in duplo uitgevoerd.

Zowel de MVEG-B en de CADC beginnen met een koude start van de motor bij ongeveer 20°C. De CADC heeft een lengte van ongeveer 52 minuten en is opgebouwd uit een stad-, buitenweg- en snelwegdeel. De MVEG-B heeft een stadsdeel en een gecombineerd buitenweg-snelwegdeel. De gereguleerde (standaard) componenten inclusief deeltjesmassa worden gemeten per cyclusdeel. De monsternamen voor de chemische componenten en het *in vitro* onderzoek is alleen geïntegreerd gemeten over de drie representatieve delen van de CADC.

De keuze van het merk en type voertuig is vooral gebaseerd op de beschikbaarheid van meerdere filtertypen voor een bepaald voertuigtype. Op basis van de typegoedkeuringslijst van SenterNovem is daardoor de keuze op Volkswagen gevallen. Daarnaast is als voorwaarde gesteld dat de voertuigen minimaal 50.000 km hadden gereden, waarvan minimaal 10.000 km met het retrofit roetfilter. In Tabel 1 is een overzicht van de testvoertuigen gegeven.

De voertuigen 1, 2 en 4 zijn in de originele configuratie en met retrofit roetfilter gemeten. Voertuig 3 is alleen met fabriek roetfilter gemeten. Het is technisch complexer en verder ook niet erg relevant om dat voertuig ook zonder roetfilter te meten.

Het fabriek roetfilter onderscheidt zich hoofdzakelijk op 2 punten van de retrofit roetfilters:

- 1) Al het uitlaatgas moet door een poreuze wand stromen; het filter wordt ook wel “gesloten” of “wall-flow” filter genoemd, en
- 2) het motormanagement initieert periodiek en afhankelijk van parameters zoals tegendruk, tijd en uitlaatgastemperatuur een actieve regeneratie van het filter. Hierbij wordt de temperatuur in het filter verhoogd naar ca 600°C zodat het roet (volledig) verbrandt.

Bij het retrofit roetfilter wordt vertrouwd op een passieve regeneratie waarbij het roet wordt verbrand vanaf een lagere temperatuur van het filter (ongeveer 270 °C).

Tabel 1: overzicht testvoertuigen.

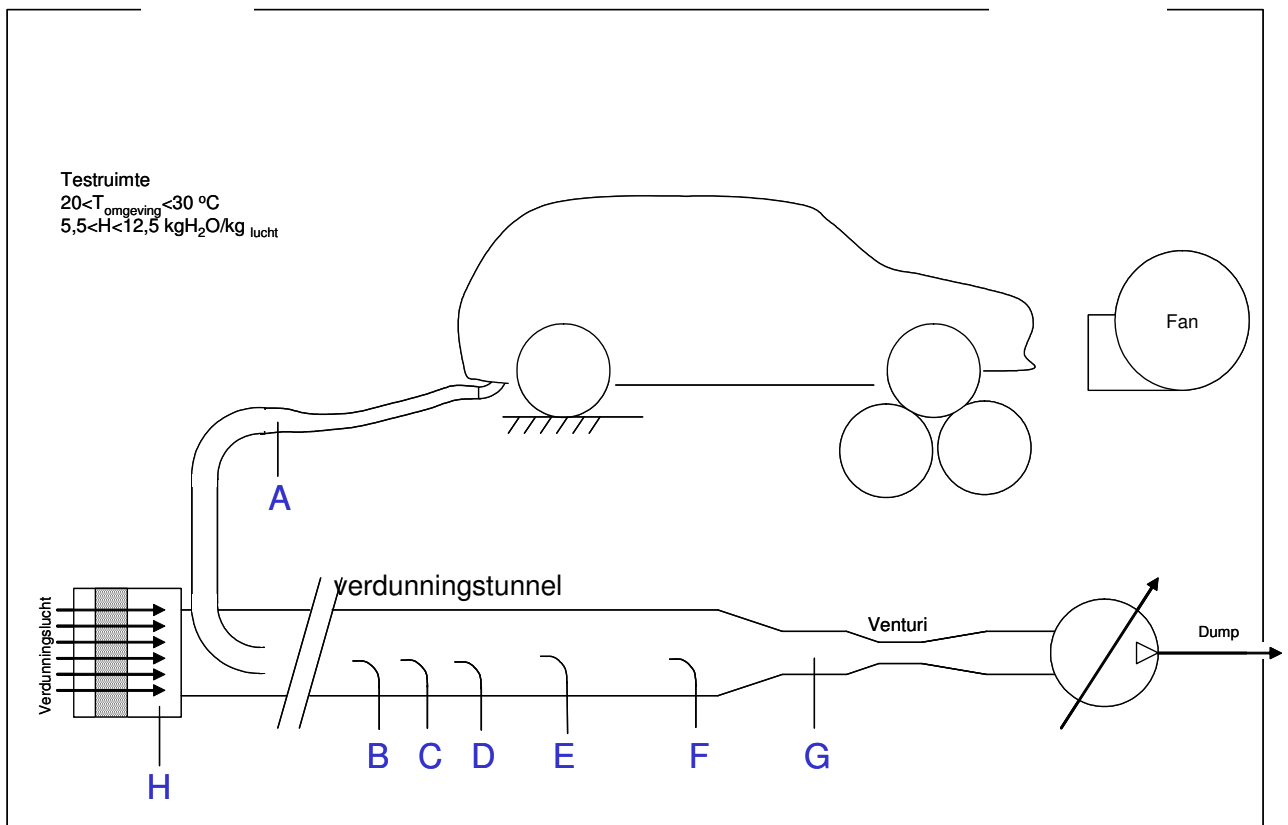
Nr	Voertuig	Euroklasse	Deeltjesfilter
1	Passat	Euro 4	retrofit filter 1
2	Golf	Euro 3	retrofit filter 2
3	Passat	Euro 4	affabriek filter
4	Passat	Euro 3	retrofit filter 3

## 2.2 Meetopstelling

De metingen zijn uitgevoerd op een rollenbank waarbij de uitlaatgassen door een “verdunningstunnel” worden geleid, zie Figuur 1. In de verdunningstunnel worden de uitlaatgassen van het voertuig sterk verdund. Hiermee wordt de deeltjesvorming nagebootst zoals deze ook in de buitenlucht plaats zou kunnen vinden. Uit de verdunningstunnel worden de monsters genomen voor de analyse van de chemische componenten en voor de (roet)deeltjes.

De volgende monsternamesystemen zijn gebruikt (zie Figuur 1):

- A: Aansluiting voor de momentane, simultane meting van NO<sub>x</sub> en NO t.b.v. de bepaling van de NO<sub>2</sub> emissie.
- B: Aansluiting voor de ELPI (Electrical Low Pressure Impactor) voor de deeltjesgrootte metingen
- C: deeltjesmonstername voor bepaling van de elementaire koolstof (EC) en organische koolstof (OC) op quartz filters.
- D: monstername voor C<sub>6</sub>-C<sub>12</sub> koolwaterstoffen en aldehyden
- E: monstername voor deeltjes op teflon gecoate filters, in serie geschakelde met een buis met buis met XAD-2 adsorbens ten behoeve van vluchtige en semi-vluchtige componenten. Deze monstername wordt ook gebruikt voor de chemische analyse van PAK en voor de Ames test (*in vitro* onderzoek).
- F: Aansluiting voor VACES biosampler systeem. Hierbij vindt extra verdunning plaats en worden de deeltjes en daaraan gehechte chemische stoffen voorzien van een watermantel. De gevormde druppeltjes worden via impactie verzameld in een buis (Biosample)
- G en H: de monsternamepunten voor respectievelijk de verdunde uitlaatgassen en de verdunningslucht, ten behoeve van de analyse van de gasvormige standaard te meten uitlaatgascomponenten.



Figuur 1: Meetopstelling voor emissiemetingen, met de verschillende monsternamepunten.

### 2.3 Gemeten componenten

De metingen aan de voertuigen omvatten gereguleerde uitlaatgascomponenten, een reeks aanvullende chemische componenten en deeltjesgrootte. De gereguleerde componenten zijn de componenten waaraan via de EU typekeuring van het voertuig eisen worden gesteld. Deze componenten zijn:

- $\text{NO}_x$ : stikstofoxiden
- CO: koolmonoxide
- HC: onverbrande koolwaterstoffen
- PM: Particulate Matter ofwel (roet)deeltjes (op massabasis).

In het totaal zijn ca. 80 chemische componenten gemeten. De lijst is opgenomen in Bijlage B. De meetmethode is omschreven in [TNO 2005]. In Tabel 2 zijn de componenten gegroepeerd en de belangrijkste componenten genoemd waarvan het vermoeden bestaat dat ze mogelijk toxisch zijn. Voor sommige componenten is er een Europese grenswaarde voor de concentratie in de buitenlucht (dit geldt voor benzo(a)pyreen, benzeen, formaldehyde en  $\text{NO}_2$ ).

Daarnaast is een fysisch / chemische deeltjeskarakterisering uitgevoerd bestaande uit:

- Een analyse van de deeltjesgrootteverdeling en deeltjesaantallen (m.b.v. ELPI<sup>2</sup>).
- Bepaling van het aandeel elementaire koolstof (EC) en organische koolstof (OC).

<sup>2</sup> ELPI staat voor "Electric Low Pressure Impactor"

Tabel 2: overzicht van de gemeten componentenreeksen.

Componentenreeks	voorbeelden
C <sub>1</sub> – C <sub>5</sub> koolwaterstoffen	1, 3- butadieen
C <sub>6</sub> – C <sub>12</sub> koolwaterstoffen	BTEX, benzeen, toluen, ethylbenzeen en xyleen
Aldehyden	formaldehyde, acetaldehyde and acroleine
PAK: US-EPA lijst van 16 Polycyclische Aromatische Koolwaterstoffen	Benzo(a)pyreen
Oxy-PAH	benzanthrone
Nitro- PAH	1-nitropyreen
NO <sub>x</sub>	NO <sub>2</sub>

## 2.4 *In vitro* toxiciteitonderzoek

Om de eventuele toxiciteit (giftigheid) van de dieseluitlaatgassen te beoordelen zijn een aantal parameters gemeten. Het dient opgemerkt te worden dat dit een beperkte set testen is geweest, waarmee dan ook in beperkte mate de gezondheidseffecten in kaart kunnen worden gebracht. Daarnaast heeft het onderzoek plaatsgevonden door middel van *in vitro* systemen (en dus niet aan levende wezens), waardoor extrapolatie naar de mens met voorzichtigheid gedaan moet worden.

Vier verschillende testen zijn uitgevoerd, te weten:

- Ames test: met deze test kan gemeten worden in welke mate een specifieke genmutatie (schade aan het erfelijk materiaal) kan worden geïnduceerd in bacteriestammen. Ter aanvulling naast genmutaties, zijn er ook andere type DNA schade, zoals oxidatieve schade die kan leiden tot chromosoom afwijkingen. Deze is in de Ames test niet gemeten.
- Celtoxiciteits test: ook wel cytotoxiciteit test genoemd, met deze test wordt de directe schade gemeten: celdood
- DDT test: met deze test kan de chemische reactiviteit van organische stoffen worden gemeten
- Anti-oxidant verbruik: met deze test kan het verbruik van anti-oxidanten gemeten worden.

De celtoxiciteit, anti-oxidant verbruik en DTT testen maken gebruik van het VACES biosampler systeem (Kim, S., et.al., 2001, Li, N., 2003). Voor elke CADC test worden twee monster opgevangen. Eén monster bevat alleen de fractie met ultrafijne (<0,1 µm) deeltjes (UF) suspensie en het andere de ultrafijne plus fijne fractie van de deeltjes (alle deeltjes < 2,5 µm, UF+F). Vervolgens werden de monsters gesplitst voor de celtoxiciteit test (uitgevoerd door TNO) en het anti-oxidant verbruik en de DTT test (uitgevoerd door RIVM).

### 2.4.1 *Mutageniteit –Ames test*

Vooronderzoek liet zien dat de verzamelde biosamples geen effecten lieten zien in de Ames test, daarom is verder gebruik gemaakt van extracten die met name bestemd waren voor de analyse van chemische componenten.

Deze extracten zijn verkregen door extraheren van de filters en de XAD-adsorbens waarop de verdunde uitlaatgassen uit de verdunningstunnel zijn opgevangen (E in Figuur 1) gedurende de totale rit cyclus (CADC). De filters zijn geëxtraheerd met het organisch oplosmiddel toluen, dat vervolgens is droog gedampt en is opgenomen in DMSO (dimethylsulphoxide) een oplosmiddel dat kan worden toegepast in Ames test.

De extracten bevatten dus geen vluchtige componenten meer, maar wel gedeeltelijk semi-vluchtige componenten en alle deeltjes gebonden componenten. In de Ames test is gebruikt gemaakt van een Salmonella bacterie (stam YG1024). Deze bacterie stam is zodanig gemodificeerd dat deze alleen kan groeien en een kolonie kan vormen wanneer de blootgestelde stof een (terug)mutatie veroorzaakt door interactie met het DNA. Het aantal kolonies (revertanten) is een maat voor mutageniteit (de potentie tot induceren van DNA schade). De extracten zijn getest op aan- en afwezigheid van een metabool activerend systeem (S9-mix). Dit systeem bootst de leverfunctie na en zorgt ervoor dat stoffen omgezet kunnen worden naar hun actieve metabool. De S9-mix is bijvoorbeeld nodig voor PAK verbindingen zoals benzo(a)pyreen. Deze PAK verbindingen moeten eerst gemetaboliseerd worden alvorens ze een mutagene reactie kunnen veroorzaken. Andere stoffen zoals nitro- en oxy-PAKs zijn direct werkend en hebben geen S9-mix nodig (deze worden dus gedetecteerd zonder S9-mix). De bepaling is in triplo uitgevoerd, de uitkomsten van de twee ritten zijn gemiddeld. De resultaten worden uitgedrukt in revertanten (mutaties) per 60 microliter extract. De hoeveelheid extract is steeds constant geweest en komt overeen met een bepaalde hoeveelheid verdund uitlaatgas (van de verdunningstunnel).

#### 2.4.2 Cytotoxiciteit

In de celtoxiciteit test, ook wel cytotoxiciteit test genoemd, wordt de overleving van een cel aangetoond na 24 uur blootstelling aan een biosample, beide fracties ultrafijn en ultrafijne plus fijne fractie zijn getest (UF en UF+F, respectievelijk). De celtoxiciteits test is uitgevoerd met twee typen cellen, A549 cellen (afkomstig van epitheel) en 3T3 fibroblast (bindweefsel cel). Na 24 uur blootstelling is de viabiliteit 'levensvatbaarheid' gemeten door te bepalen in welke mate een cel in staat is een kleurstof (neutral red) op te nemen; levende cellen zijn in staat de kleurstof op te nemen, dode cellen niet. De mate van viabiliteit wordt uitgedrukt in % ten opzichte van de controle (niet blootgestelde cellen). De bepaling is in triplo uitgevoerd, de twee ritten zijn gemiddeld.

#### 2.4.3 Chemische reactiviteit

Dit type testen geeft een indruk hoe een stof kan reageren in een biologisch systeem zoals de longen waarbij oxidatieve stress wordt geïnduceerd. Chemische reactiviteit is gerelateerd aan toxiciteit maar niet een directe maat voor toxiciteit. Het lichaam heeft daar afweersystemen voor zoals anti-oxidanten. Bij gebrek aan anti-oxidanten kan oxidatieve stress leiden tot cel- en DNA-schade.

a) In de DTT test katalyseren reactieve componenten (voornamelijk organische stoffen) de reductie van zuurstof naar superoxide, waarbij dithiothreitol (DTT) geoxideerd wordt. In de a-cellulaire DTT test wordt de afname van DTT in de tijd bepaald na toevoegen van een vaste hoeveelheid deeltjes. Met deze kwantitatieve meting wordt het vermogen om radicalen te produceren onderzocht [Kumagai et al Chem Res Toxicol 2002]. Voor de DTT test zijn beide biosample fracties gebruikt (UF en UF+F). De DTT assay geeft een goede indruk van de reactiviteit van de totale koolstoffractie<sup>3</sup> in fijn stof [Ntziachristos et al, 2007].

De chemische reactiviteit wordt gewoonlijk uitgedrukt in nmol DTT/min\* $\mu$ g. De bepaling is in duplo uitgevoerd. De uitkomsten van deze test zijn gecorrigeerd voor de concentratie in de verdunningstunnel en worden uitgedrukt in nmol DDT\*min<sup>-1</sup>\*m<sup>-3</sup> verdund uitlaatgas. De range en de mediaan van alle ritten met of zonder retrofit roetfilter (n=6) is berekend.

---

b) Anti-oxidanten zijn in staat om schadelijke radicalen te neutraliseren. Het verbruik van anti-oxidanten kan gemeten worden en het monster is reactiever naarmate er meer anti-oxidanten verbruikt worden. Beide biosample fracties (UF en UF+F) worden afzonderlijk geïncubeerd in een oplossing met fysiologische anti-oxidant concentraties en na incubatie wordt de anti-oxidant concentratie bepaald waarna het verbruik kan worden vastgesteld [Mudway et al Arch Biochem Biophys 2004]. Het anti-oxidant verbruik wordt gewoonlijk uitgedrukt in  $\text{nmol}/\text{sec} \cdot \mu\text{g}$ . De bepaling is in duplo uitgevoerd. De uitkomsten van deze test zijn gecorrigeerd voor de concentratie in de verdunningstunnel en worden uitgedrukt in  $\text{nmol} \cdot \text{sec}^{-1} \cdot \text{m}^{-3}$  verdund uitlaatgas. De range en de mediaan van alle ritten met of zonder retrofit roetfilter (n=6) is berekend.

## 3 Resultaten

### 3.1 Voertuigconditie en resultaten tijdens de typegoedkeuringstest

De voertuigconditie is gemeten over de ritcyclus die gebruikt wordt voor typegoedkeuringstest type I (volgens richtlijn 70/220/EC en amendementen) in de configuratie zonder het retrofit roetfilter en voertuig 3 met affabriek filter. Hieruit blijkt het volgende:

- Voertuig 2 en 3: voldoen aan typekeuringslimieten
- Voertuig 1 overschrijdt de NO<sub>x</sub> limiet met 15%
- Voertuig 4 overschrijdt de PM-massa limiet met 100%

Deze overschrijdingen worden niet als buitensporig gezien. Het zijn voertuigcondities die in de praktijk voorkomen en waarin voertuigen worden voorzien van een retrofit roetfilter.

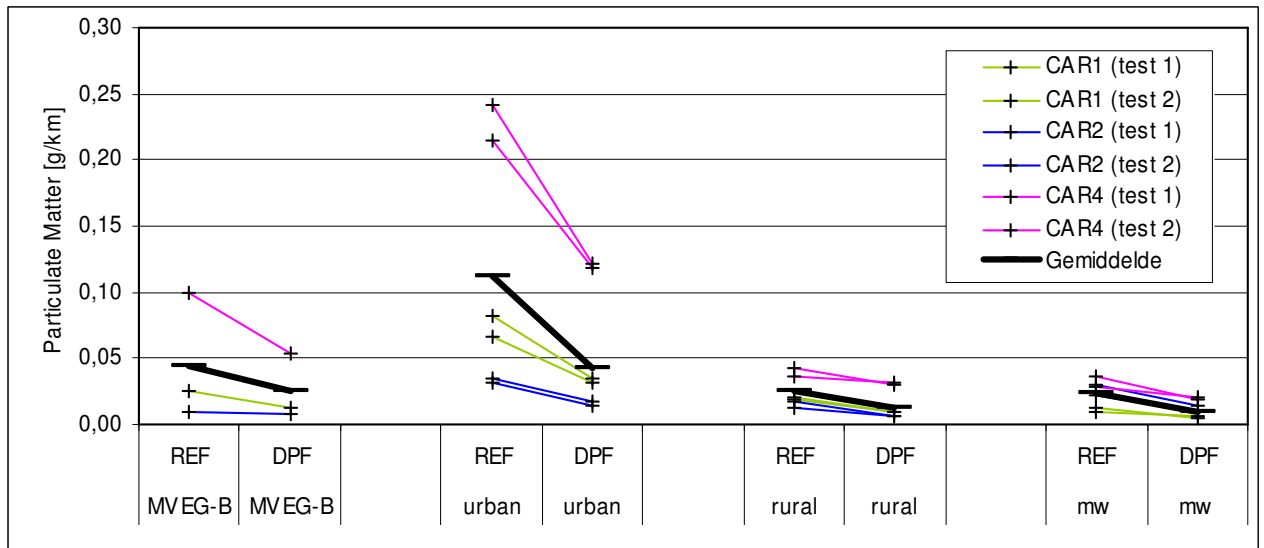
De invloed van het retrofit roetfilter op de deeltjesmassa is gemeten. De typekeuringseis voor de retrofit roetfilters is een minimale afname van de deeltjesmassa-emissie van 30%. De gemeten deeltjesvermindering van de 3 voertuigen tijdens de MVEG-B varieerde van 20% tot 48%. Het gemiddelde was 37%. Uit de metingen per cyclusdeel blijkt dat één van de voertuigen tijdens het stadsdeel een stijging van de deeltjesemissie laat zien. Dit geldt voor een ander voertuig tijdens het buitenweg-snelwegdeel. Dit verschijnsel kan een paar oorzaken hebben: roetdeeltjes die in het retrofit roetfilter zijn opgeslagen komen weer vrij, of de motor van het voertuig zelf reproduceert niet goed, of de meting reproduceert niet goed vanwege de toch al lage niveaus voor de betreffende voertuigen en cyclusdelen, of het is een combinatie van de genoemde oorzaken.

### 3.2 Gereguleerde uitlaatgascomponenten tijdens CADC

Vergelijking van de resultaten van de 3 voertuigen zonder en met retrofit roetfilter tijdens de CADC levert het volgende beeld op (zie ook Tabel 4):

- De NO<sub>x</sub> verandert niet.
- De CO en HC niveaus liggen heel laag (1-10 ppm in het verdunde uitlaatgas). Er is gemiddeld een daling van ca 25% maar gezien de meetnauwkeurigheid en spreiding in resultaten is deze daling statistisch gezien niet relevant.
- De deeltjesmassa (PM) laat een consistente, goed meetbare daling zien bij toepassing van het retrofit roetfilter, zie Figuur 2. De gemiddelde afname van de deeltjesmassa tijdens de CADC is 44%. De afname varieert van 38% tot 54% over de CADC en de drie voertuigen. Ook over de verschillende delen van de CADC, stad, buitenweg en snelweg, wordt steeds een afname geconstateerd. Over de MVEG-B varieert de afname van 20 tot 48%, gemiddeld is de afname 37%. Opgemerkt moet worden dat de regeneratie van het filter niet is beoordeeld. Het kan zijn dat deeltjes alleen opgeslagen worden en na verloop van tijd toch geëmitteerd worden in de vorm van (veel) grotere geagglomerde deeltjes. Als dit tijdens de test gebeurt dan is het onzeker of dit in de massameting wordt meegenomen (dit is afhankelijk van de mate van agglomeratie).

Echter, omdat tijdens het motorway deel van de CADC een uitlaatgastemperatuur van 400 °C wordt bereikt is het waarschijnlijk dat tijdens deze test een groot deel van de deeltjes wordt geregenereerd.



Figuur 2: de deeltjesemissie tijdens de MVEG-B en de delen van de CADC voor de verschillende ritcycli en testen met en zonder retrofit filter en het gemiddelde van de drie auto's. REF is de standaard uitvoering, DPF is met retrofit roetfilter.

### 3.3 Chemische componenten

In het totaal zijn ca. 80 chemische componenten gemeten. De lijst is opgenomen in Bijlage B. Voor een aantal componenten geldt dat ze niet (meetbaar) in dieseluitletgas aanwezig zijn. Dit geldt vooral voor veel C<sub>1</sub>-C<sub>5</sub> koolwaterstoffen, voor de zwaardere aldehyden en voor veel nitro-PAK. In Tabel 3 is de range gegeven waarin deze componenten voorkomen. Voor enkele componentengroepen geldt dat slechts enkele componenten daadwerkelijk in een goed meetbare hoeveelheid voorkomen. Voor C<sub>1</sub>-C<sub>5</sub> is dat bijvoorbeeld etheen en in mindere mate methaan. Voor C<sub>6</sub>-C<sub>12</sub> is dat benzeen, voor de aldehyden is dat vooral formaldehyde en acetaldehyde, tenslotte voor de PAK is dat vooral naftaleen. Ter vergelijking is ook een kolom met waarden gegeven voor dieselveertuigen uit een eerdere TNO studie [TNO 2003].

Voor de meeste componenten geldt dat het niveau vergelijkbaar is of valt in de range van de 2003 TNO studie. Verder geldt dat de maximale waarden voor de voertuigen met roetfilter steeds gelijk of lager zijn dan die van het voertuig zonder roetfilter.



Tabel 3: range waarin componenten voorkomen in de dieseluitletgasen tijdens CADC.

Component(groep)	Range per component		
	zonder roetfilter	met retrofit roetfilter	2003 TNO studie*
C1 – C5 koolwaterstoffen 1,3 Butadien [mg/km]	0 - 3 <0,5	0 - 3 <0,5	0 - 8 <0,5
C6 – C12 [mg/km] inclusief BTEX	0 - 0,3	0 - 0,3	0 - 0,7
aldehyden [mg/km]	0 - 4,4	0 - 2,3	0 - 4,8
PAK benzo(a)pyrene [ug/km]	0 - 90 0 - 1	0 - 20 0 - 1	0 - 40 0 - 1,3
oxy-PAK [ug/km]	0 - 73	0 - 30	niet gemeten
nitro- PAK [ug/km]	0 - 1	0 - 1	niet gemeten
elementaire koolstof (EC) [mg/km]	20 – 47	11 – 31	11-30
organische koolstof (OC) [mg/km]	0 – 9	0 – 5	0 - 22

\* range op basis van een CADC met een koude start bij 9°C

In Tabel 4 zijn de gemiddelde percentages verandering gegeven bij toepassing van het retrofit roetfilter: gemiddeld per voertuig en het gemiddelde van de 3 voertuigen (het procentuele verschil tussen het absolute gemiddelde van de drie auto's met en zonder filter). Als statistisch hulpmiddel bij het beoordelen van de resultaten is de t-test voor gepaarde waarnemingen toegepast (een 'paar' is hier een test met filter en een test zonder filter).

Uit Tabel 4 kan geconcludeerd worden dat er sprake is van een aanzienlijke consistentie in de resultaten. De meeste chemische componenten laten globaal dezelfde daling zien als die van de deeltjesmassa.

Uit de resultaten blijkt dat alle gemeten nitro-PAK componenten lager zijn met retrofit roetfilter. Voor de totale gemeten nitro-PAK emissie is een daling gemeten van 35 tot 56 %, afhankelijk van het voertuig. Deze afname geldt ook voor de totale oxy-PAK emissie. Hier is een daling gemeten van 7 to 46% afhankelijk van het voertuig. Op één na dalen alle oxy-PAK verbindingen. 1,4-naphthoquinone is de enige oxy-PAK die door toepassing van het retrofit roetfilter stijgt. Voor voertuig 1, 2, en 4 is dit een toename van respectievelijk 56, 217, en 2 %. Het concentratieniveau is echter heel laag.

De NO<sub>2</sub> emissies van voertuig 1 en 2 zijn lager met het retrofit roetfilter. Van voertuig 4 zijn geen goede meetresultaten voorhanden. Een waarschijnlijke verklaring voor de lagere NO<sub>2</sub> emissie met retrofit roetfilter is dat de NO<sub>2</sub> reageert met de deeltjes tot NO. Dit is namelijk de belangrijkste reactie in een retrofit roetfilter. Er is overigens geen significante verandering gemeten van de totale NO<sub>x</sub> emissie.

Vermeld dient te worden dat hier wel sprake is van relatief nieuwe retrofit roetfilters (ca. 10.000 km). Met de vervanging van de oxidatiekatalysator door een nieuwe oxidatiekatalysator zou wellicht ook een deel van de verbetering bereikt kunnen worden.

Tabel 4: overzicht verandering van de emissies bij toepassing van een retrofit roetfilter.

Component	Voertuig 1	Voertuig 2	Voertuig 4	Gemiddelde afwijking	Statistische relevantie <sup>1)</sup>
	[%]	[%]	[%]	[%]	
CO	10	-10	-40	-30	<
CO <sub>2</sub>	1	-4	3	0	
HC	40	140	-80	-20	<
NO <sub>x</sub>	1	4	0	1	
NO <sub>2</sub>	-12	-39	n.b.	-20	
PM	-51	-54	-38	-44	**
EC (Elementaire koolstof)	-42	-63	-34	-44	**
OC (Organische koolstof)	-46	-55	-50	-50	**
1,3-butadiene	-	-	-	-	
Som BTEX	-27	2	-18	-19	
Som 3 Lichte Aldehydes	-59	-48	-70	-66	*
BaP	-100	-65	-16	-29	*
Som 2A PAK (3st.)	-64	-64	-40	-46	**
Som 2B PAK (3st.)	-51	-80	-50	-55	*
Som Nitro-PAK (9st.)	-35	-41	-56	-45	**
Som-Oxi-PAK (7st.)	-10	-7	-46	-30	
1,4-Napthoquinone	56	217	2	62	*
Som Oxi-PAK minus 1,4-Napthoquinone	-30	-44	-53	-47	**

<sup>1)</sup> \*\* goed (p< 0.05), \* voldoende (p<0.10) , n.b. = niet bepaald, < = waarde rond meetlimiet.

### 3.4 Deeltjesgrootteverdeling

De deeltjesgrootteverdeling is gemeten met de ELPI (Electric Low Pressure Impactor). Deze classificeert de deeltjes in een aantal grootteklassen. Vanwege de grilligheid van de vorm van de deeltjes is de scheiding niet erg exact en kunnen gemakkelijk deeltjes van een bepaalde klasse in een andere klasse meegeteld worden. Verbrandingsmotoren emitteren vooral deeltjes in de range van ca. 5 tot 400 nm.

De range van 5-20 nm wordt meestal niet gemeten en is voor dit onderzoek ook niet gemeten. Hier kunnen condensaten in voorkomen (vloeistofdruppeltjes) of eventueel (niet aan roetdeeltjes gebonden) metaaloxide deeltjes.

Voor dieselmotoren kan de grootterange opgesplitst worden in 2 klassen:

- Ultrafijn: < 100 nm
- Fijn: > 100 nm

In beperkte mate zouden er ook grotere deeltjes kunnen vrijkomen, maar dat komt dan door agglomeratie in het uitlaatsysteem of eventueel in het retrofit roetfilter zelf.

De metingen aan de 3 testvoertuigen tijdens de CADC zonder en met retrofit roetfilter laten de volgende resultaten zien:

- Een daling van het totaal aantal deeltjes (ultrafijn + fijn) met 4% tot 32%
- Een variatie van het aantal ultrafijne deeltjes van 25% daling tot 5% stijging en
- Een daling van het aantal fijne deeltjes met 28% tot 54%

Voor het aantal deeltjes, opgesplitst naar de drie cyclusdelen van de CADC en gemiddeld over de 3 voertuigen geldt:

- Dat de fijne deeltjes een daling van resp. 30%, 30% en 43% tijdens het stad-, buitenweg- en snelwegdeel laten zien en
- Dat de ultrafijne deeltjes een stijging van 6% tijdens het stadsdeel en een daling van resp. 1% en 32% tijdens het buitenwegdeel en het snelwegdeel laten zien.

Tabel 5: het gemiddelde effect op de deeltjesaantallen, opgesplitst naar deeltjesfractie (ultrafijn, fijn en ultrafijn + fijn) en cyclusdeel (stad, buitenweg en snelweg)

	urban	rural	motorway	CADC totaal
Ultrafijn + fijn	-28 tot 7%	-29 tot 4%	-4 tot -44%	-4 tot -32%
Ultrafijn (<100nm)	-22 tot 17%	-23 tot 11%	-48 tot 3%	-25 tot 5%
Fijn (>100nm)	-26 tot -47%	-22 tot -52%	-27 tot -59%	-28 tot -54%

Gezien de meetmethode en de spreiding van de resultaten die ook optreedt tussen herhalingsmetingen zit een onzekerheidsmarge op de genoemde percentages en moeten de resultaten met de nodige voorzichtigheid beoordeeld worden. De massa van de deeltjes wordt hoofdzakelijk door de (grotere) fijne deeltjes bepaald. Hierbij is een goede correlatie geconstateerd tussen de afname van de fijne deeltjes (28% tot 54%) en de afname van de deeltjesmassa (gemiddeld ca. 44%).

Samenvattend kan gesteld worden dat er in ieder geval geen significante stijging is aangetoond van het totaal aantal deeltjes. De metingen wijzen op een afname van het totaal aantal deeltjes en op een min of meer constante hoeveelheid ultrafijne deeltjes. Hierbij dient wel opgemerkt te worden dat er niet over de hele linie een daling optreedt; enkele combinaties van voertuig en cyclusdeel laten een stijging zien, die in het gemiddelde gecompenseerd wordt door dalingen in andere cyclusdelen. Met name voertuig 1 geeft gemiddeld over de CADC cyclus een lichte stijging in de hoeveelheid ultrafijne deeltjes te zien.

### 3.5 *In vitro* toxiciteitonderzoek

#### 3.5.1 *Mutageniteit-Ames test*

Uit resultaten van de test waarmee de mutagene potentie, verandering aan erfelijk materiaal (bacterieel DNA), kan worden gemeten (Ames test) blijkt dat de absolute inductie van het aantal revertanten (de mutagene response)<sup>4</sup> bij voertuigen zonder retrofit roetfilters hoger is dan bij voertuigen met retrofit roetfilter (zie Figuur 3 en Figuur 4). Dit geldt voor zowel de bepaling met als zonder metabole activatie (S9 mix). Het is bekend dat uitlaatgassen kankerverwekkend kunnen zijn en een effect induceren in deze test. Aangezien de uitstoot (emissie) van deeltjesmassa (PM) lager is bij gebruik van retrofit roetfilters is te verwachten dat de absolute response in de Ames test lager is bij gebruik van retrofit roetfilters in vergelijking met voertuigen zonder retrofit roetfilter. Echter, het zou kunnen zijn dat de componenten die overblijven een hogere mutagene response leveren dan op basis van massa verwacht kan worden, dus dat de relatieve toxiciteit toeneemt. Echter als hiervoor gecorrigeerd wordt, neemt de mutagene response per deeltjesmassa (op basis van massa per kilometer) niet toe, maar wijst eerder op een afname (bij 2 van de 3 voertuigen).

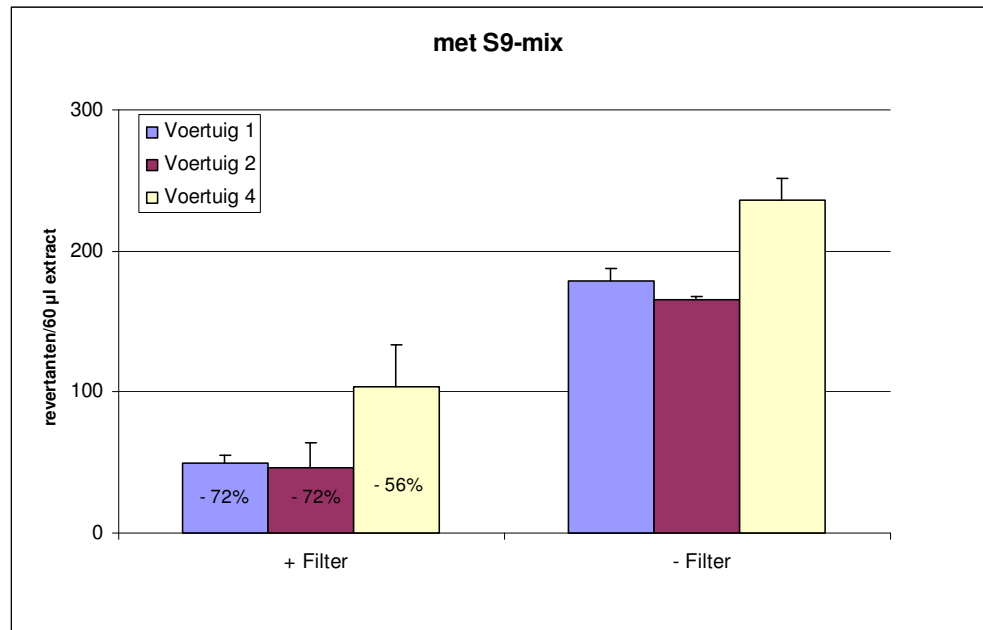
Samenvattend kan dus gesteld worden dat:

- 1) De mutageniteit per volume extract afneemt (absoluut gezien omdat de deeltjesmassa per km afneemt), als ook
- 2) de relatieve mutageniteit uitgedrukt per mg/km bij 2 van de 3 voertuigen afneemt (bij het derde voertuig blijft de relatieve mutageniteit gelijk)

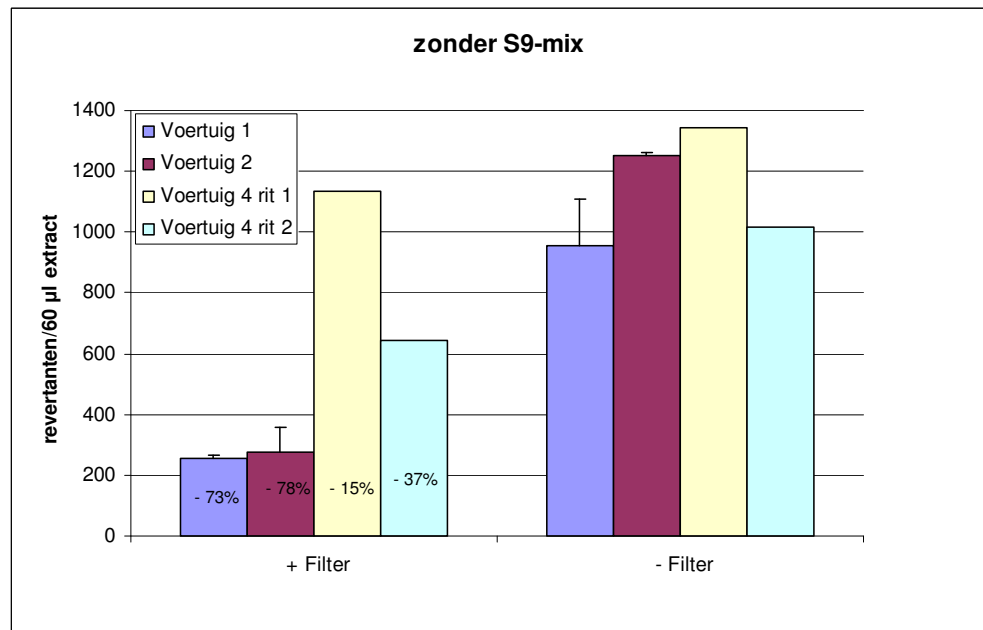
Bij het voertuig waar een affabriek filter in is gemonteerd (voertuig 3) heeft tijdens één van de ritten een actieve regeneratie plaatsgevonden. Dit leverde een opvallend hoge inductie van het aantal revertanten (mutaties) op in de test terwijl de deeltjesuitstoot nog steeds relatief laag was. Bij voertuig 4 zijn de twee ritten afzonderlijk weergegeven (zonder S9-mix) ivm de relatief grote verschillen in mutagene response. Het is aan te bevelen te onderzoeken bijvoorbeeld met behulp van geavanceerde statistische analyse methode of deze verschillen geassocieerd zijn met de aanwezigheid van een of combinatie van chemische componenten

---

<sup>4</sup> Met "absolute" wordt hier bedoeld de mutagene response bij blootstelling aan een hoeveelheid extract overeenkomend met een bepaalde hoeveelheid verdund uitlaatgas, dus niet gecorrigeerd naar de hoeveelheid deeltjes in het uitlaatgas.



Figuur 3: De mutagene responsie van het extract (afkomstig van filters en XAD korrels) met S9 mix, is uitgedrukt in aantal revertanten per 60 microliter (mutaties). Het gemiddelde van twee ritten is weergegeven.



Figuur 4: De mutagene responsie van het extract, (afkomstig van filters en XAD korrels) zonder s9 mix, is uitgedrukt in aantal revertanten per 60 microliter (mutaties). Het gemiddelde van twee ritten is weergegeven (m.u.v. van voertuig 4, hiervoor zijn de resultaten van rit 1 en 2 afzonderlijk weergegeven).

### 3.5.2 Celtoxiciteit

Uit de resultaten van de celtoxiciteit test blijkt dat het biosample met ultrafijne en fijne deeltjes meer celdood veroorzaakt dan de fractie met alleen de ultrafijne deeltjes. Celdood is alleen waargenomen indien er geen retrofit roetfilter is toegepast.

De trend in beide cellijnen is gelijk. Opgemerkt dient te worden dat toxiciteit pas optreedt indien 85% van het groeimedium van de cellen bestaat uit het biosample. Bij toepassing van retrofit roetfilter bij voertuig 1 en 2 neemt de celtoxiciteit van de biosamples niet toe (er is geen celdood waargenomen). Bij voertuig 4 is zowel zonder als met filter geen toxiciteit waargenomen bij de hoogst mogelijke concentraties in deze test. Bij voertuig 3 (met affabriek filter) werd ook geen toxiciteit waargenomen.

### 3.5.3 Chemische reactiviteit

a) Uit de resultaten van de DTT test blijkt dat de reactiviteit ( $\text{nmol DTT} \cdot \text{min}^{-1}$ ) per  $\text{m}^3$  verdund uitlaatgas bij voertuigen zonder retrofit roetfilter in dezelfde grote orde ligt als bij voertuigen met retrofit roetfilter. Zowel de range in reactiviteit als de mediaan wijzen op een afname van de reactiviteit bij toepassen van een retrofit roetfilter bij zowel de ultrafijn plus fijne als de ultrafijne fractie. Daarnaast is de maximale reactiviteit per  $\text{m}^3$  verdund uitlaatgas hoger in de gecombineerde ultrafijne plus fijne fractie en daarmee het vermogen om radicalen te produceren die zouden kunnen leiden tot schade aan het lichaam. Uit tabel 6 blijkt dat een retrofit roetfilter per saldo in ieder geval niet zorgt voor een toename aan reactiviteit van de deeltjesvormige emissie door organische componenten. Het toepassen van retrofit roetfilters leidt niet tot een toename in de met de koolstof fractie geassocieerde chemische reactiviteit van de uitstoot.

Tabel 6: Chemische reactiviteit gemeten als DTT verbruik per  $\text{m}^3$  verdund uitlaatgas.

Chemische reactiviteit ( $\text{nmol DTT} \cdot \text{min}^{-1}$ ) per $\text{m}^3$ verdund uitlaatgas				
	Ultrafijne + fijne fractie		Ultrafijne fractie	
	Range	Mediaan	Range	Mediaan
Zonder retrofit roetfilter	0-421	54	0-206	93
Met retrofit roetfilter	0-247	34	0-184	47

De range en de mediaan hebben betrekking op alle ritten voor auto's met en zonder retrofit roetfilter (n=6).

b) De analyse waarin het anti-oxidant verbruik wordt bepaald (zie tabel 7) laat een minder consistent beeld zien dan de DTT test en beide testen geven een indicatie voor de chemische reactiviteit. Voor de ultrafijne plus fijne fractie is er een afname van reactiviteit door toepassing van het retrofit roetfilter, terwijl bij de ultrafijne fractie hier geen sprake van lijkt te zijn.

Tabel 7: Chemische reactiviteit gemeten als anti-oxidant verbruik per  $\text{m}^3$  verdund uitlaatgas.

Chemische reactiviteit ( $\text{nmol ascorbaat} \cdot \text{sec}^{-1}$ ) per $\text{m}^3$ verdund uitlaatgas				
	Ultrafijne + fijne fractie		Ultrafijne fractie	
	Range	Mediaan	Range	Mediaan
Zonder retrofit roetfilter	1842-10211	2482	1436-8403	2344
Met retrofit roetfilter	840-9192	1568	467-9185	2548

De range en mediaan hebben betrekking op alle ritten voor auto's met en zonder retrofit roetfilter (n=6).

Hoewel van het VACES-Biosampler systeem in diverse studies is aangetoond dat de massabalans zeer goed is, zit de beperking vooral in het gebied onder de 20 nm. We kunnen niet uitsluiten dat hier de meest toxische componenten in zitten dan wel dat in de chemische analyses bepaalde componenten niet zijn meegenomen zoals deeltjes gebonden waterstofperoxide [Arellanes et al, 2006].

## 4 Discussie

### 4.1 Implicaties van de resultaten voor de onderzoeksvraag

In het uitgevoerde onderzoek is de koppeling gelegd tussen emissiemetingen en *in vitro* onderzoek. Toch is het vanwege de beschikbare tijd een onderzoek van geringe omvang en duur: er is een beperkt aantal voertuigen getest en er zijn een beperkt aantal parameters in het *in vitro* onderzoek gemeten, met name de eventuele oxidatieve schade is in de huidige opzet niet voldoende aan bod gekomen. De chemische componenten zijn wel uitgebreid gemeten. Door de beperkte omvang van het *in vitro* onderzoek geven de resultaten slechts een indicatie voor de toxiciteit en leidt het onderzoek niet tot definitieve conclusies m.b.t. de risico's voor de volksgezondheid. In het algemeen kan gesteld worden dat er relatief weinig onderzoek gedaan wordt naar de directe effecten van uitlaatgassen op biologische systemen (cellen, organen etc.) en daaruit voortvloeiend de gezondheidsaspecten voor mens en milieu ten gevolge van blootstelling aan uitstoot van voertuigen.

De aanleiding van dit onderzoek was dat toepassing van de retrofit roetfilter zou kunnen leiden tot:

1. Een hogere en/of extra uitstoot van toxische componenten zoals polycyclische aromatische koolwaterstoffen (PAK) waarbij vooral aan de oxy-PAK en nitro-PAK een mutagene en/of kankerverwekkende werking toegeschreven zou kunnen worden, en
2. een toename van het aantal deeltjes die ook nog eens kleiner in afmeting zouden zijn in vergelijking tot ongefilterde uitstoot.

Over het algemeen laten de resultaten van dit onderzoek een consistent beeld zien. Zowel de deeltjesmassa en de chemische componenten laten zien dat de uitstoot van ongewenste componenten daalt en het *in vitro* onderzoek laat zien dat ook de toxiciteit afneemt. Alleen het aantal ultrafijne deeltjes bevestigen dit beeld niet. Deze blijven ongeveer constant, terwijl het aantal fijne deeltjes wel daalt. In ieder geval is er geen toename vastgesteld van het totaal aantal deeltjes.

Voor de oxy-PAK en nitro-PAK is vastgesteld dat er een consistente daling is bij toepassing van het retrofit roetfilter. De meest schadelijke componenten zijn de nitro-PAK verbindingen, waarvan alle gemeten verbindingen een daling laten zien. Bij de oxy-PAK dalen alle gemeten verbindingen op 1,4-naphthoquinone na. Berekening wijzen echter uit dat op basis van de gemeten niveaus de concentratie van de verkeersbijdrage van 1,4-naphthoquinone in dezelfde grootte orde ligt als die van gerapporteerde buitenlucht concentraties voor oxy-PAK, namelijk in het  $\text{ng/m}^3$  bereik. Gerapporteerde buitenlucht concentraties van oxy-PAK liggen in dezelfde grootte orde als die van PAK ( $\text{ng/m}^3$ ), terwijl die voor nitro-PAK een grootte orde een twee lager zijn ( $10\text{-}100 \text{ pg/m}^3$ ) [Albinet, 2007; EHC229]. In een studie begin jaren 80, is met behulp van een Ames test, een mutageniteits test bij bacteriën, bepaald dat nitro-PAK in diesel deeltjes de grootste bijdrage leveren aan de totale mutageniteit [Schuetzle 1983]. Andere studies laten eveneens zien dat niet alle nitro-PAKs gelijkwaardig zijn en dat sommige, onder andere 1-nitropyreen, 1,3-, 1,6-, 1,8-dinitropyreen en de groep nitrohydroxypyreen, meer mutageen zijn dan andere [McDonald EHP 2004].



De *in vitro* resultaten geven aan dat een toename aan toxische stoffen onwaarschijnlijk is. Door het toepassen van retrofit roetfilters is in dit onderzoek een lagere mutagene response gemeten van de dieseluitlaatgassen. Ook celtoxiciteit en de chemische reactiviteit laten eerder een daling dan een stijging zien bij toepassing van het retrofit roetfilter. De chemische reactiviteit gemeten als antioxidant verbruik per m<sup>3</sup> verdund uitlaatgas is in beide fracties redelijk hoog, maar voor de ultrafijne fractie is er geen afname van het anti-oxidant verbruik bij toepassing van een retrofit roetfilter. Een mogelijke verklaring hiervoor is dat het materiaal van de ultrafijne fractie wat niet door een retrofit roetfilter wordt afgevangen, leidt tot het verbruik van antioxidanten. Voor de testen geldt wel een relatief grote onzekerheid vanwege de geringe hoeveelheden aan deeltjes die via het VACES- Biosampler systeem is verzameld. Gegeven de condities kon er maar beperkt onderzoek uitgevoerd worden. In hoeverre nu echt oxidatieve schade veroorzaakt zou kunnen worden door de uitstoot die nog wel een retrofit roetfilter passeert dan wel erin worden gevormd (metaaloxidedeeltjes) dient nader onderzocht te worden.

#### 4.2 Opmerkingen rond de meetmethode

Het uitgevoerde onderzoek is bijzonder in de combinatie van experimentele technieken en analysemethoden die zijn toegepast; er zijn wereldwijd maar weinig van dit soort onderzoeken gedaan aan uitlaatgasemissies. Met betrekking tot de metingen kunnen echter nog enkele opmerkingen gemaakt worden rond de beperkingen die het onderzoek kent, en suggesties voor nader onderzoek worden gedaan.

##### *Ultrafijne deeltjes*

De ultrafijne deeltjes met een diameter kleiner dan ca 20 nm kunnen met de gebruikelijke apparatuur niet gemeten worden en worden dus niet in de deeltjesaantallen analyse meegenomen. Het is niet met zekerheid te zeggen of de ultrafijne deeltjes wel worden meegenomen in de monsternamen voor de chemische componenten en het *in vitro* mutageniteit onderzoek (Ames test). Bij deze monsternamen wordt gebruik gemaakt van de meetfilters en XAD. Zeer fijne nano-deeltjes worden ook door de hier gebruikte filters niet afgevangen. Het is echter waarschijnlijk dat in de meetopstelling coagulatie (samenklontering) van ultrafijne deeltjes optreedt, waardoor ze wel in de filters terecht komen. De efficiëntie waarmee deze filters deze kleine deeltjes hebben afgevangen is niet goed vast te stellen. Voor het gebruikte VACES- Biosampler systeem is in diverse studies aangetoond dat de massabalans zeer goed is, de beperking zit vooral in het gebied onder de 20 nm. We kunnen niet uitsluiten dat hier de meest toxische componenten inzitten dan wel dat in de chemische analyses bepaalde componenten niet zijn meegenomen zoals deeltjesgebonden waterstofperoxide [Arellanes et al, 2006].

Overigens is niet goed bekend wat de schadelijkheid van ultrafijne deeltjes bepaalt. Wordt de schadelijkheid veroorzaakt doordat ultrafijne deeltjes ver doordringen in het lichaam van de mens (longen, cellen, mitochondriën etc) of wordt het veroorzaakt door de chemische samenstelling hiervan, of is het een combinatie van deeltjesgrootte en samenstelling? Hierover is nog erg weinig bekend, zeker voor het geval van voertuigemissies, en nader onderzoek op dit gebied zou gewenst zijn.

##### *Deeltjesmassameting*

De regeneratie van de roetfilters is niet apart onderzocht. Dit is met name bij de retrofit roetfilters van belang, omdat het niet zeker is dat de gefilterde deeltjes daadwerkelijk volledig geoxideerd worden (omgezet naar CO<sub>2</sub> en water).

Door de filterstructuur van het retrofit roetfilter kunnen geagglomereerde deeltjes op enig moment losbreken en toch weer geëmitteerd worden. Of dit tijdens de officiële testcycli gebeurd is, is onzeker en derhalve is het ook niet zeker of dit in de massameting is meegenomen. Het gevolg hiervan is dat de deeltjesmassa reductie in de praktijk minder gunstig zou kunnen zijn dan de hier gemeten percentages..

#### *Metalen*

Naast de koolstof fractie of organische componenten zijn metalen ook componenten die een bepaalde vorm van toxiciteit kunnen veroorzaken. Dit is vooral het geval bij de ionaire (niet geoxideerde) metalen die verschillende valenties kunnen aannemen zoals  $Fe^{2+}$  en  $Fe^{3+}$ . Ook hiervoor geldt dat ze een ongewenste oxidatieve stress reactie in de longen kunnen veroorzaken. Een analyse op het vermogen om anti-oxidanten uit te putten laten zien dat ook dit proces zal optreden door de uitstoot van roet [Behndig et al, 2006] en dat een filter dit effect kan reduceren. In dit onderzoek is verder geen aandacht geschonken aan de rol van metalen anders dan de uitputting van de anti-oxidanten.

#### *Gasvormige fractie*

Een andere beperking bij de monsters voor het *in vitro* onderzoek is dat de gasvormige fractie niet is meegenomen. In de opwerking van de monsters voor de Ames test, middels het indampen van het extractiemiddel (tolueen), vervliegen de gasvormige componenten en een deel van de vluchtige, vaste en vloeibare componenten. Hierbij kunnen mogelijksemis vluchtige PAK en PAK derivaten verloren gaan. Ook in de biosamples, gebruikt voor redox activiteit en cytotoxiciteit, worden gasvormige componenten niet meegenomen. Nader onderzoek rond de gasvormige fracties is derhalve gewenst, bijvoorbeeld door middel van inhalatie onderzoek.

#### *Agglomeratie*

Voor het *in vitro* onderzoek geldt dat het niet zeker is dat de gemeten toxiciteit hetzelfde is als in de buitenlucht, aangezien de mate van agglomeratie die plaats vindt *in vitro* kan afwijken van wat optreedt in de buitenlucht. De toxische eigenschappen kunnen hierdoor veranderen, zowel in positieve als in negatieve zin.

#### *Regeneratie*

Een interessante bevinding is dat het monster dat genomen is tijdens de regeneratie van het affabriek filter een onverwachte hoge mutagene reactie veroorzaakte. De duur van regeneratie is relatief kort. De combinatie van duur, toxiciteit en feitelijke blootstelling (dosis) bepaald uiteindelijk het gezondheidsrisico. Het voert echter hier te ver om daar uitspraken over te doen. Nader onderzoek zou inzicht moeten opleveren over de chemische processen en toxicologische consequenties die zich afspelen tijdens een regeneratie.

## 5 Conclusies

Er is onderzoek verricht naar chemische samenstelling en de toxische eigenschappen van de uitlaatgassen van personenwagens met een dieselmotor al dan niet voorzien van retrofit roetfilter. Op basis van het onderzoek aan 3 voertuigen met 3 verschillende typen retrofit roetfilters wordt het volgende geconcludeerd:

1. Extra vorming van PAK door toepassing van een retrofit roetfilter is niet aangetoond. De metingen wijzen juist op een afname. De gemeten afname in emissies geldt voor vrijwel alle onderzochte chemische componenten en voor de gemiddelde oxy-PAK en nitro-PAK emissies.
2. Onderzoek gericht op schadelijke effecten voor de mens onderschrijft de meetresultaten van de chemische componenten: er is geen stijging aangetoond van reactieve organische en/of mutagene componenten, en een toename van mutaties in het bacterieel DNA is vrijwel uitgesloten.
3. Er is geen stijging aangetoond van het totaal aantal deeltjes. De metingen wijzen op een afname van het totaal aantal deeltjes en een min of meer constante hoeveelheid ultrafijne deeltjes (< 100 nm), alhoewel bij 1 voertuig het aantal ultrafijne deeltjes licht toeneemt en de grootte afneemt.
4. Er is geen stijging aangetoond van de NO<sub>2</sub> emissie. De metingen wijzen juist op een afname.
5. De deeltjesmassa-emissie daalde met gemiddeld 37% tijdens de MVEG cyclus (typekeuringcyclus) en ook met gemiddeld 44% tijdens de meer praktijk gerichte CADC cyclus door toepassing van het retrofit roetfilter op de onderzochte voertuigen. Hierbij wordt opgemerkt dat regeneratie van de retrofit roetfilters niet apart is onderzocht. Er bestaat een kans dat een deel van de gefilterde deeltjes op een ander tijdstip alsnog wordt uitgestoten.

Samenvattend kan gesteld worden dat de uitlaatgassen van een drietal personenwagens met dieselmotoren, zonder en met retrofit roetfilter, op een aantal facetten zijn onderzocht en dat hierbij geen indicaties naar voren zijn gekomen dat bij toepassing van het retrofit roetfilter de toxiciteit van de uitlaatgassen zal toenemen. Op basis van dit onderzoek is er geen toename te verwachten van de negatieve effecten van dieselmotoruitstoot op de volksgezondheid door toepassing van de door VROM gesubsidieerde retrofit roetfilters.

## 6 Aanbevelingen

Met de ervaring van dit project zou de onderzoeksmethode in de toekomst verbeterd kunnen worden. Dit geldt vooral voor de monstervoorbereiding en de keuze van de toxiciteit testen. Daarnaast zouden de uitlaatgassen in hun geheel bestudeerd kunnen worden door het doen van toxicologisch inhalatieonderzoek *in vivo*. Hierbij zou de invloed op hart en longfunctie op kortere en middenlange termijn en toxiciteit in doelorganen, inclusief mutageniteit onderzocht kunnen worden.

Tevens zou het goed zijn om te komen tot een aantal standaard, kosteneffectieve testen, die een goede indicatie geven voor een beoordeling van gezondheidsaspecten. Bij voorkeur zou hier internationaal overeenstemming over bereikt moeten worden. Daardoor kan er op termijn een database van referentiemateriaal verzameld worden en kunnen nieuwe technologieën tegen die achtergrondinformatie beoordeeld worden. Verder bevelen we aan om aandacht te besteden aan de roetbalans in de praktijk van de door VROM gesubsidieerde filters.

## Referenties

[Albinet 2007] Albinet, A., Leoz-Garzania, E., Budzinski, H. Villenave, E. Science of the Total Environment 384 (2007) 280-292

[Arellanes et al, 2006] Arellanes C, Paulson SE, Fine PM, Sioutas C. Exceeding of Henry's law by hydrogen peroxide associated with urban aerosols. Environ Sci Technol. 2006 Aug 15;40(16):4859-66

[Behndig et al, 2006] Behndig AF, Mudway IS, Brown JL, Stenfors N, Helleday R, Duggan ST, Wilson SJ, Boman C, Cassee FR, Frew AJ, Kelly FJ, Sandstrom T, Blomberg A. Airway antioxidant and inflammatory responses to diesel exhaust exposure in healthy humans. Eur Respir J. 2006 Feb;27(2):359-65.

[Durant 1996] Durant, J.L. Busby, W.F. Jr., Lafleur, A.L. Penman, B.W., Crespi, C.L. Mutation Research 371 (1996) 123-157

[EHC229] Environmental Health Criteria 229, Selected nitro- and nitro-oxy-polycyclic aromatic hydrocarbons, WHO 2003

[Kim, S., et.al., 2001] Kim, S., P. A. Jaques, M. Chang, T. Barone, C. Xiong, S. K. Friedlander and C. Sioutas. Versatile aerosol concentration enrichment system (VACES) for simultaneous *in vivo* and *in vitro* evaluation of toxic effects of ultrafine, fine and coarse ambient particles Part II: Field evaluation. Journal of Aerosol Science 2001; 32(11): 1299-1314.

[Kumagai et al Chem Res Toxicol 2002] Kumagai, Y., Koide, S., Taguchi, K., Endo, A., Nakai, Y., Yoshikawa, T., Shimojo, N. Oxidation of proximal protein sulfhydryls by phenanthraquinone, a component of diesel exhaust particles. Chem Res Toxicol 2002, 15: 483-489.

[Li, N., 2003] Li N, Sioutas C, Cho A, Schmitz D, Misra C, Sempf J, Wang M, Oberley T, Froines J, Nel A. Ultrafine particulate pollutants induce oxidative stress and mitochondrial damage. Environ Health Perspect. 2003 Apr;111(4):455-60.

[McDonald 2004] McDonald JD, Eide I, Seagrave J, Zielinska B, Whitney K, Lawson DR, Mauderly JL Environ Health Perspect. 2004 Nov;112(15):1527-38. <http://www.ncbi.nlm.nih.gov/entrez/utills/fref.fcgi?PrId=3040&itool=AbstractPlus-def&uid=15531438&db=pubmed&url=http://ehpnet1.niehs.nih.gov/members/2004/6976/6976.html> <http://www.ncbi.nlm.nih.gov/entrez/utills/fref.fcgi?PrId=3494&itool=AbstractPlus-nondef&uid=15531438&db=pubmed&url=http://www.pubmedcentral.nih.gov/articlerender.fcgi?tool=pubmed&pubmedid=15531438> Relationship between composition and toxicity of motor vehicle emission samples.

[Mudway et al 2004] Mudway IS, Stenfors N, Duggan ST, Roxborough H, Zielinski H, Marklund SL, Blomberg A, Frew AJ, Sandström T, Kelly FJ. An *in vitro* and *in vivo* investigation of the effects of diesel exhaust on human airway lining fluid antioxidants. Arch Biochem Biophys 2004, 423:200-212.

[Ntziachristos et al, 2007] Ntziachristos L, Froines JR, Cho AK, Sioutas C. Relationship between redox activity and chemical speciation of size-fractionated particulate matter. Part Fibre Toxicol. 2007 Jun 7;4:5

[Schuetzle, 1983] Dennis Schuetzle, Environmental Health Perspectives, Vol. 47, pp. 65-80, 1983

[TNO 2002] H.C. van der Burgwal et al., "Environmental and human health effects of exhaust gases from passenger cars", 23 September 2002, TNO rapport 02.OR.AT.014.1/HvdB.

[TNO 2003] P. Hendriksen, R.J. Vermeulen, "Evaluation of the environmental impact of modern passenger cars on petrol, diesel, Automotive LPG and CNG", 24 december 2003, TNO rapport 03.OR.VM.055.1/PHE

[TNO 2005] M.M.G. Houtzager, "Report on the sampling and analysis of unregulated components in exhaust of modern passenger cars on petrol, diesel, automotive LPG and CNG

[TNO 2007] R. Verbeek, E. Rabé, "Pre-study of exhaust gases of diesel engines with "open" and "wall-flow" diesel particulate filters and their toxicity", 18 April, 2007, TNO-rapport MON-RPT-033-DTS-2007-01072

## A Samenstelling van de technische adviesgroep

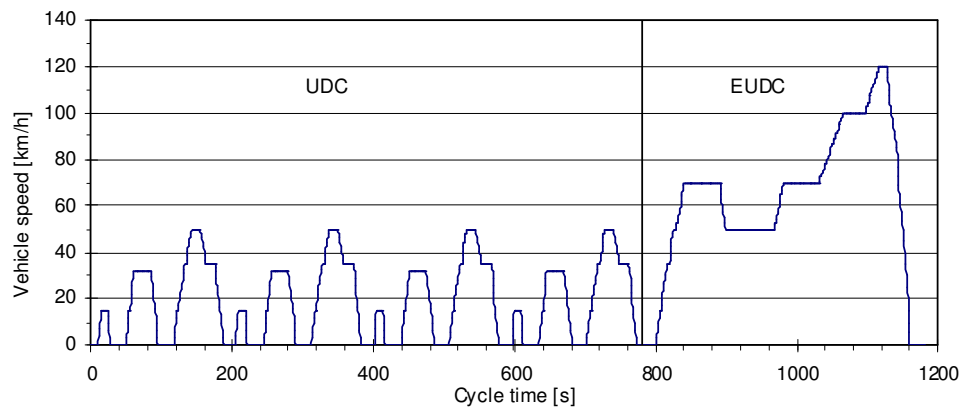
Bedrijf	Persoon	Expertise
GGD Amsterdam	dr. ir. Saskia van de Zee	Epidemiologie
TU Delft	dr. ir. Michiel Makkee dr. ir. Coen van Gulijk	Filtertechnologie Meetmethoden
UMC St Radboud	dr. Paul Scheepers	Toxicologie
VROM	ing. Henk Baarbé Klaas Krijgsheld	Filtertechnologie Gezondheidsaspecten

## B Lijst met gemeten chemische componenten

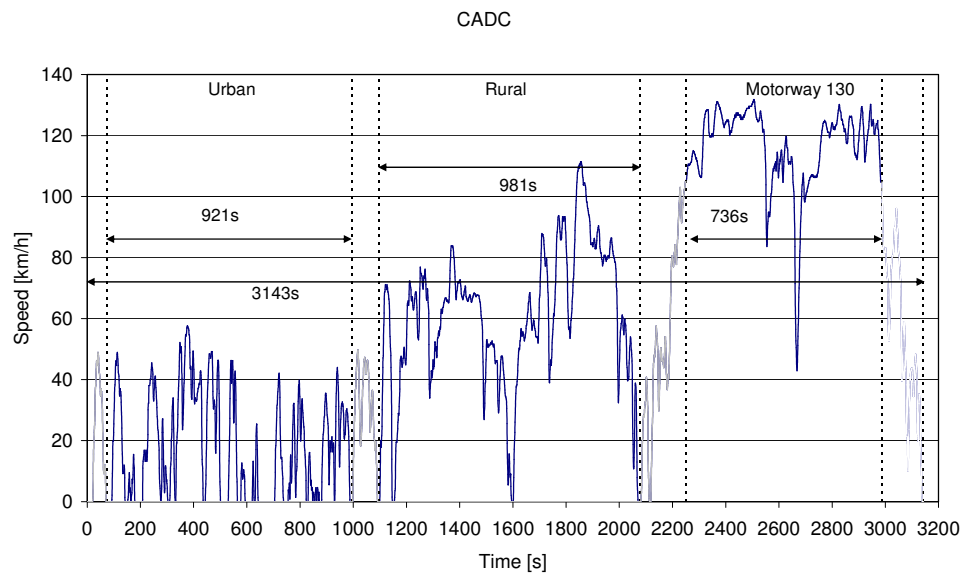
<b>C<sub>1</sub>-C<sub>5</sub> hydrocarbons</b>	<b>Aldehydes</b>	<b>Oxy- and nitro-PAH</b>
methane	formaldehyde <i>3LA</i>	1,4-naphthoquinone
ethane	aceetaldehyde <i>3LA</i>	1-naphthalenecarboxaldehyde
ethene	acroleïne <i>3LA</i>	9-fluorenone
acetylene	acetone	9,10-anthraquinone
propane	propionaldehyde	1,8-naphthalic Anhydride
propene	crotonaldehyde	9,10-phenanthrenequinone
i-butane	n-butyraldehyde/MEK	benzanthrone
n-butane	benzaldehyde	1-pyrenecarboxaldehyde
i-butene/1,3-butadiene	iso-valeraldehyde	benz[a]anthracene-7,12-quinone
i-pentane	n-valeraldehyde	1-nitronaphthalene
n-pentane	o-tolualdehyde	2-nitronaphthalene
	m-tolualdehyde	4-nitrobiphenyl
	p-tolualdehyde	2-nitrofluorene
<b>C<sub>6</sub>-C<sub>12</sub> hydrocarbons</b>	hexanal	3-nitrofluoranthene
2 methylpentane	2,5-dimethylbenzaldehyde	1-nitropyrene
3-methylpentane		6-nitrochrysene
n-hexane	<b>16 EPA PAH</b>	
methylcyclopentane	naphthalene	<b>EC/OC</b>
benzene <i>BTEX</i>	acenaphthylene	elementary carbon
2-methylhexane	acenaphthene	organic carbon
3-methylhexane	fluorene	
2,2,4-trimethylpentane	phenanthrene	<b>NO<sub>x</sub></b>
n- heptane	anthracene	NO
methylcyclohexane	fluoranthene	NO <sub>2</sub>
toluene <i>BTEX</i>	pyrene	
n-octane	benzo[a]anthracene <i>2A</i>	<b>Regulated (70/220/EC)</b>
ethylbenzene <i>BTEX</i>	chrysene	CO
p,m-xylene <i>BTEX</i>	benzo[b]fluoranthene <i>2B</i>	Total Hydrocarbons (THC)
o-xylene <i>BTEX</i>	benzo[k]fluoranthene <i>2B</i>	NO <sub>x</sub>
n-nonane	benzo[a]pyrene <i>2A</i>	PM-mass
3-ethyltoluene	indeno[123-cd]pyrene <i>2B</i>	CO <sub>2</sub> (80/1268/EC)
1,3,5-trimethylbenzene	dibenzo[ah]anthracene <i>2A</i>	
1,2,4-trimethylbenzene	benzo[ghi]perylene	
n-decane		
1,2,3-trimethylbenzene		
n-undecane		
n-dodecane		



## C Overzicht testcycli



Figuur 5: European Driving Cycle EDC, ook bekend als MVEG-B cyclus.



Figuur 6: de praktijkritcyclus CADC (Common Artemis Driving Cycle) met de drie delen urban, rural en motorway .

Tabel 8: Karakteristieken van de EDC en de CADC.

	EDC		CADC		
	UDC	EUDC	Urban	Rural	Motorway
Sub cyclus	UDC	EUDC	Urban	Rural	Motorway
Gemiddelde snelheid [km/u]	18.7	62.6	17.5	60.5	116.4
RPA* [ $m/s^2$ ] (rijdynamiek)	0.14	0.09	0.30	0.16	0.10
Afstand [m]	4052	6955	4472	16441	23792
Time [s]	780	400	921	981	736

\* Relative Positive Acceleration: een maat voor rijdynamiek

## Ondertekening

Delft, 22 oktober 2007

TNO Industrie en Techniek

A handwritten signature in blue ink, consisting of stylized initials 'B.B.' followed by a long horizontal stroke.

dr. B. Bos  
Afdelingsmanager

A handwritten signature in blue ink, consisting of stylized initials 'R.P.V.' followed by a long horizontal stroke.

ir. R.P. Verbeek  
Auteur