

RIVM rapport 650010024/2002

**Vergelijkende PM₁₀-metingen in Nederland.
deel B: Landelijke omgeving**

F.Th. van Arkel, E.M. van Putten, H.J.Th. Bloemen,
A. van der Meulen



Abstract

The PM₁₀ concentrations in the National Air Quality Monitoring Network in the Netherlands are measured with FAG-Eberline 62 I-N β -attenuation monitors. Previous measurements revealed this monitor to be underestimated with respect to the EU reference method for PM₁₀. Since then, all measured PM₁₀ concentrations have been multiplied by 1.33, a factor that to date has not been explained. The semi-volatile (ammonium) aerosol was thought to be an important factor.

Three β -dust monitors were investigated in addition to the Monitoring Network at the agricultural site of Biest-Houtakker. This site is close to several pig breeding farms stables, where high concentrations of ammonia and ammonium aerosol are expected to be present. Measurements were taken for February –May 1999. A Klein Filter Gerät KFG was operated as the PM₁₀ reference monitor to study the influence of the settings of the monitor, such as the amount of filter changes and inlet temperature. At this site and at this time of the year (February-May 1999) The β -dust monitors were found to underestimate the concentration by a factor 1.15 compared to 1.33 for the FAG-Eberline 62 I-N β -attenuation monitors.

Inhoud

Samenvatting 4

1. Inleiding 5

2. De meetmethoden 6

2.1 Het Klein Filter Gerät 6

2.2 De β -stofmeetmethode 7

2.2.1 Berekening van de fijnstofconcentratie (PM_{10}) 7

2.2.2 PM_{10} -monstername 8

2.2.3 De instellingen van de monitor 8

2.3 De TEOM 11

2.3.1 Berekening van de stofconcentratie 11

2.3.2 Vaststelling van het debiet 11

3. De invloed van de monitor instellingen 13

3.1 Opzet 13

3.2 Resultaten 14

3.2.1 Invloed van filterwissels 14

3.2.2 Invloed van de inlaattemperatuur 15

4. Vergelijking van drie fijnstofmeetmethoden 17

4.1 Vergelijking van de β -stofmonitor met het KFG 17

4.1.1 Inleiding 17

4.1.2 Materiaal en methode 18

4.1.3 Resultaten 18

4.1.4 Conclusies 20

4.2 Vergelijking van de TEOM met het KFG 21

4.2.1 Inleiding 21

4.2.2 Resultaten 21

4.2.3 Discussie 22

4.3 Invloed van andere factoren op fijnstofmetingen 23

4.3.1 Inleiding 23

4.3.2 Materiaal en methode 23

4.3.3 Resultaten 24

4.3.4 Conclusie 25

5. Discussie 27

6. Conclusies en Aanbevelingen 28

Literatuur 30

BIJLAGE 1-12 32-43

Samenvatting

De fijne stofdeeltjes PM₁₀ (met afmetingen kleiner dan 10 µm) worden momenteel op 19 locaties in Nederland met behulp van β-stofmonitoren gemeten.

Uit een vergelijkend onderzoek tussen de β-stofmonitor en referentiemethode voor PM₁₀ in 1990 blijkt dat de β-stofmonitor een onderschatting geeft van ongeveer 25%. Daarom worden sindsdien alle gemeten PM₁₀-concentraties vermenigvuldigd met een correctiefactor van 1,33. In dit onderzoek is nagegaan of er nog steeds sprake is van deze onderschatting, en hoe een eventuele onderschatting kan worden verklaard.

Daartoe heeft in de periode februari t/m mei 1999 te Biest-Houtakker een vergelijkend onderzoek plaats gevonden van β-stofmonitor t.o.v. de PM₁₀-referentiemethode (Klein Filter Gerät KFG).

Aanvullend is nagegaan of bij de TEOM meetmethodiek de PM₁₀-concentratie onderschat door verwarming (van inlaat en meetkamer) tot 50°C, waardoor (met name semi-vluchtige ammonium) componenten kunnen vervluchtigen.

De referentiemethode en de LML β-stofmonitor komen redelijk goed met elkaar overeen, althans gedurende deze specifieke veldexercitie. Op basis van deze dataset lijkt een vermenigvuldigingsfactor van 1,15 passender.

Het veranderen van de instellingen van de monitor, zoals bijvoorbeeld de inlaattemperatuur en het aantal filterwissels heeft geen verklaring voor de factor opgeleverd.

De TEOM onderschat de fijnstofconcentratie, doordat er deeltjes vervluchtigen. De verwarming tot 50°C is bij de TEOM zodanig dat de 50°C daadwerkelijk wordt bereikt, dit in tegenstelling tot de verwarming bij de β-stofmonitor.

Aanvullend onderzoek bij een andere locatie en bij hogere fijnstofconcentraties is van belang om na te gaan of er sprake is van een mogelijke locatie en seizoensgebonden invloed bij het vaststellen van een correctiefactor.

Het vaststellen van de reproduceerbaarheid van de dataset is hierbij van enig belang. Het is dan ook aan te bevelen de referentiemethode in meervoud (duplo) in te zetten, teneinde de nauwkeurigheid van de meetgegevens in belangrijke mate te verbeteren.

1. Inleiding

Middels Algemene Maatregel van Bestuur is vastgelegd dat de PM_{10} -concentratie (fijne stofdeeltjes met afmetingen kleiner dan $10\ \mu\text{m}$) dient te worden vastgesteld. Om dit te realiseren zijn in Nederland in het Landelijke Meetnet Luchtkwaliteit LML β -stofmonitoren geplaatst die momenteel op 19 locaties continu en on-line de PM_{10} -concentratie bepalen. De β -stofmonitor heeft als principe dat de verzwakking van de β -straling door het aanwezige stof op het filter een maat is voor de stofmassa en dus de concentratie fijn stof.

Het doel van dit onderzoek is na te gaan hoe de in 1990 gevonden onderschatting van ongeveer 25% door de β -stofmonitoren vergeleken met een PM_{10} -referentiemethode kan worden verklaard. Ook veelvuldig toegepaste TEOM monitoren vertonen een systematische onderschatting t.o.v. de referentiemethodiek. Vervluchtiging door verwarming van semi-vluchtig ammoniumaërosol tijdens aanzuigen en in de meetkamer worden geacht hierin een belangrijke rol te vervullen.

Uit voorgaand laboratoriumonderzoek (Van Arkel, 2002) is gebleken dat de verwarming van de β -stofmonitor en de TEOM een verschillende invloed zullen hebben op de onderschatting van de ware fijnstofconcentratie. Doordat de effectiviteit van de verwarming verschilt (met name in de meetkamer van β -stofmonitor dan wel TEOM) zal een verschillend percentage aan vluchtige componenten verdampen. Verder is het mogelijk dat afhankelijk van de verwarming die wordt toegepast, bij de β -stofmonitor een extra bijdrage van $3\text{-}4\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ wordt waargenomen door een (conditionerings)effect van vocht op het filter.

Dit onderzoek is erop gericht om het gedrag van de onderschatting na te gaan door onder veldomstandigheden de β -stofmonitor (en TEOM) te vergelijken met een referentiemethode (Klein Filter Gerät) en hoe een eventuele onderschatting kan worden verklaard.

De belangrijkste factoren die hierbij worden betrokken, zijn buitentemperatuur, relatieve vochtigheid (RH) en ammoniakconcentratie. Om zeker te zijn van de aanwezigheid van ammoniumaërosol is gekozen voor een locatie met hoge ammoniakemissies: LML locatie Biest Houtakker, Noord Brabant. De meetcampagne aldaar heeft gelopen van februari 1999 t/m mei 1999.

De eerste resultaten betreffen een vergelijkend onderzoek tussen enkele β -stofmonitoren.

In dit verslag wordt achtereenvolgens aandacht besteed aan de volgende aspecten:

- een korte beschrijving van de gebruikte monitoren
- de invloed van filterwissels en inlaatverwarming op het meetsignaal van de monitor
- een vergelijking van de β -stofmonitor en de TEOM met de referentiemethode (KFG)
- de invloed van factoren, zoals buitenluchttemperatuur, relatieve vochtigheid (RH) en de ammoniakconcentratie op de gemeten PM_{10} -concentratie.

2. De meetmethoden

2.1 Het Klein Filter Gerät

In de zgn. Low Volume Sampler methode wordt een bescheiden volume buitenlucht (enkele tientallen m³/dag) met een constant debiet (enkele m³/uur) gedurende 24 uur via een PM₁₀-voorafscheider over een filter aangezogen, waarop het in het luchtmonster aanwezige PM₁₀ wordt opgevangen. Uit de gewichtstoename van het filter en het totale bemonsterde debiet volgt de betreffende PM₁₀-concentratie in de buitenlucht.

Er wordt gewerkt met het Klein Filter Gerät KFG / LVS-3 van Derenda (foto 1, bijlage 1). Het apparaat bestaat uit een geregelde pomp, een tijdschakelaar en een PM₁₀-kop met daarin het filter.

De PM₁₀-inlaat (voorafscheider) is een aanzuigkop met een achttal 'acceleration nozzles' die door middel van impactie op een ingevette plaat deeltjes groter dan 10 µm afvangt.

De monsternamekop van het Klein Filter Gerät verschilt met die van de β-stofmonitoren en TEOM qua impactie ontwerp (8 nozzles vs. 1 nozzle).

Het op het filter verzamelde stof wordt gravimetrisch bepaald. Daartoe wordt in een stabiele weegkamer bij 22,5°C en 55% RH de stofmassa bepaald, nadat de filters eerst gedurende minimaal 24 uur zijn geconditioneerd.

In de veldsituatie werken de β-stofmonitoren en de TEOM onder andere dan deze stabiele condities van temperatuur en vochtigheid.

Standaard monstername tijd is 24 uur bij een flow van 2,3 Nm³/uur (0°C en 1 atmosfeer).

Voor de flowregeling wordt de buitenlucht temperatuur bij de inlaat gemeten.

Na de meting wordt de inlaatkop compleet verwijderd en mee naar binnen genomen om het filter te wisselen. Voor het correct wisselen van het filter wordt verwezen naar de handleiding (Low Volume Sampler LVS3, 1998). Tegelijkertijd wordt de inlaat dan gecontroleerd omdat met grote regelmaat kleine spinnetjes in de acceleration nozzles worden aangetroffen. De impactie plaat wordt na 10 meetdagen gereinigd of eerder als insecten daartoe aanleiding geven.

Het filter van het KFG wordt in de filterhouder omsloten door teflon ringen. Een derde ring zorgt voor een goede afsluiting van de monstername-inlaat. Op deze ring is na bemonstering soms filtermateriaal te zien, veelal onder vochtige omstandigheden. De meetwaarden zijn dan onbruikbaar.

2.2 De β -stofmeetmethode

Een vergelijkend onderzoek (Van Elzakker, 1992) tussen vijf verschillende β -stofmonitoren heeft geleid tot het implementeren van de FAG Kugelfischer type FH62 I-N in het LML. In het onderhavige onderzoek te Biest-Houtakker zijn β -stofmonitoren gebruikt van ditzelfde type (foto 2, bijlage 2).

Na aanzuiging via een Sierra Andersen 246b PM_{10} -inlaat wordt het (PM_{10}) stof verzameld op een filterband. De meting van de stofmassa berust op de verzwakking van β -straling (vanuit van een radioactieve bron met Kr-85) door een met stof beladen filter t.o.v. een blanco, onbezogen filter. Uit de toename van de stofbelading in de tijd en de bijbehorende totale flow kan vervolgens de stofconcentratie worden berekend (i.c. als glijdend uur gemiddelde). Omdat vocht ook tot een verzwakking van de β -straling kan leiden wordt de monitor bedreven met een inlaatverwarming. De verwarmingsmantel heeft een lengte van circa 30 cm, met standaard instelling van 50°C.

Onderstaand worden een aantal aspecten van de β -stofmethode nader toegelicht.

2.2.1 Berekening van de fijnstofconcentratie (PM_{10})

De berekening van de stofconcentratie gaat uit van de toename van de stofbelading op het filter. De kleinste-kwadratenmethode wordt toegepast om de toename van de stofbelading in de tijd te bepalen. De stofconcentratie is evenredig met de helling van de stofbelading, volgens formule 1.

Formule 1:

$$r.c. = \frac{\frac{1}{N} \cdot \left(\sum_{i=1}^N x_i y_i \right) - \bar{x} \cdot \bar{y}}{\frac{1}{N} \cdot \left(\sum_{i=1}^N x_i^2 \right) - \bar{x}^2}$$

r.c.	: richtingscoëfficiënt
N	: aantal meetwaarden (default: 1 waarde per minuut, i.e. 60 per uur)
x_i	: starttijd
y_i	: meetwaarde
\bar{x}	: gemiddelde van alle x_i
\bar{y}	: gemiddelde van alle y_i

De berekening van de stofconcentratie vindt dan vervolgens plaats aan de hand van de richtingscoëfficiënt, volgens formule 2:

Formule 2:

$$PM_{10} (\mu g/m^3) = \frac{C \cdot K \cdot e^{\frac{T \cdot \ln 2}{\tau}} \cdot rc}{Q}$$

C	: ADC conversiefactor
K	: kalibratiefactor
T	: tijdsduur gebruik van bron
τ	: halfwaardetijd Kr-85 (10,8 jaar)
rc	: richtingscoëfficiënt
Q	: debiet

In de database van het LML (RIL+) worden de fijnstofconcentraties gepresenteerd bij 20°C en 1 atmosfeer. De β -stofmonitoren meten de fijnstofconcentraties echter bij 0°C en 1 atmosfeer. Een omrekeningsfactor van 273/293 (~0,9317) is nodig om te komen tot PM₁₀-concentraties bij 20°C en 1 atmosfeer; deze berekening vindt direct in het RIL+ plaats. Vervolgens worden voornoemde PM₁₀-concentraties (20°C) nog met de correctiefactor 1,33 vermenigvuldigd.

2.2.2 PM₁₀-monstername

De in LML gebruikte FAG FH62I-N β -stofmonitoren zijn uitgerust met een Sierra Andersen 246b PM₁₀-inlaatkoppen. Deze inlaat bestaat één impactie nozzle op een flens, gemonteerd in een cilindervormige buis, met daarboven een regenkap en een waterafvoer.

Deze PM₁₀-koppen zijn gekalibreerd bij 0°C en 1 atmosfeer, en scheiden deeltjes af kleiner dan 10 μ m. Het debiet mag hierbij 10% afwijken van 1 m³/uur.

Deze monstername-inlaat is duidelijk verschillend van die van de klassieke High Volume Sampler en het Klein Filter Gerät met meerdere parallelle impactie nozzles.

Zulke verschillen in impactie ontwerp zouden echter geen invloed mogen hebben op het deeltjesgrootte afhankelijke aanzuigrendement van betreffende PM₁₀-koppen.

Het is van belang dat het aanzuigrendement van de PM₁₀-koppen ongevoelig is voor windrichting en windsnelheid.

Onderzoek naar de juistheid van het bovenstaande is nog steeds van belang.

Om de vergelijkbaarheid met de standaard LML resultaten te verzekeren zijn de hier gebruikte monitoren (β -stofmonitor en TEOM; zie sectie 2.3 hieronder) met identieke PM₁₀-inlaatkoppen uitgerust.

2.2.3 De instellingen van de monitor

Hieronder worden een aantal instellingen van de β -stofmonitor beschreven die rechtstreeks van invloed zijn op de kwaliteit van het meetsignaal, i.c. de te bepalen PM₁₀-concentratie. Het is van belang de instellingen duidelijk te beschrijven om reproduceerbaarheid van de meetgegevens mogelijk te maken.

Vaststelling van het debiet

De vaststelling van de juiste flow is belangrijk vanuit de volgende twee oogpunten:

- Een correct aanzuigrendement volgens PM₁₀: wordt het juiste PM₁₀-stof aangezogen?
- Het juiste debiet (totale hoeveelheid doorgezogen lucht) voor de omrekening van de cumulatieve stofbelading op het filter naar de fijnstofconcentratie.

De β -stofmonitor geeft de mogelijkheid het debiet in te stellen onder normaalomstandigheden of onder 'bedrijfsomstandigheden'. In het LML is ervoor gekozen het debiet in te stellen

onder ‘bedrijfsomstandigheden’. Dit debiet wordt bepaald aan de hand van de drukval over een meetflens, in combinatie met de temperatuur onder ‘bedrijfsomstandigheden’. Het is dus mogelijk dat de temperatuur in de meetkamer niet overeenkomt met de buitentemperatuur, omdat de monitoren zijn geplaatst in een meethut.

Conform voornoemde LML praktijk is in dit onderzoek het debiet van de monitoren ingesteld onder bedrijfsomstandigheden (Standard Operating Procedure (SOP) LLO/OM/321). Het debiet van de β -stofmonitor wordt nu berekend volgens formule 3:

$$\text{Formule 3: } Q_b = \frac{P_0}{P_b} \cdot \frac{T_b}{T_0} Q_0$$

P_0	:normaaldruk (1 atm.)
P_b	:omgevingsdruk (atm.)
T_b	:buitentemperatuur (K)
T_0	:normaaltemperatuur (273 K)
Q_0	:debiet onder normaalomstandigheden (m ³ /uur)

Om een correct aanzuigrendement te garanderen dient het debiet binnen de 10% afwijking van 1 m³/uur te blijven. Als de meetkamer op kamertemperatuur (20°C) is moet de buitentemperatuur liggen tussen ongeveer de -25°C en de 30°C. De temperaturen in Nederland zullen hier over het algemeen aan voldoen. Bij extreme temperaturen is het dus te verwachten dat er een andere fractie dan de PM₁₀-fractie wordt aangezogen.

Middelingstijd

De middelingstijd van de FAG FH62I-N β -stofmonitoren kan worden ingesteld tussen de 5 en de 240 minuten. Specifiek zijn er 2 opties, hetzij een vaste middelingstijd dan wel een vaste meetnauwkeurigheid.

In de LML standaardprocedure staat een vaste middelingstijd van 60 minuten. Er worden door de monitor dan glijdend-uurgemiddelde fijnstofconcentraties PM₁₀ berekend. Deze instelling geldt eveneens voor dit vergelijkende onderzoek.

Kalibratie

Het is van groot belang zorg te dragen voor een juiste kalibratie van de bepaling van de stofmassa op het filter, omdat dit van directe invloed is op de PM₁₀-concentratie.

In het LML worden kalibraties uitgevoerd met een kalibratiefolie. Aan de hand van het uitgangssignaal (de stroomsterkte) kan worden berekend of de gevoeligheid van de monitoren juist staat ingesteld. Als de stroomsterkte een afwijking kent van 0,3 mA (circa 20 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) dan worden de monitoren in onderhoud genomen.

De oudere software versies van de β -stofmonitoren hebben geen mogelijkheid om het uitgangssignaal te lezen. Het zijn echter juist wel deze monitoren die in dit vergelijkend onderzoek worden gebruikt. Kalibraties vinden dan plaats zonder dat het uitgangssignaal kan worden gecontroleerd, en worden hierom in duplo uitgevoerd. Bij het kalibreren van de

monitoren wordt na circa 5 minuten een constant signaal bereikt, nadat de OFFSET is vastgesteld.

Filterwissels

Filterwisseling naar een nieuwe blanco spot kan op verschillende manieren plaatsvinden:

- bij het bereiken van een bepaalde stofbelading (van 0 tot 99999 μg);
- bij een bepaalde drukval over het beladen filter (van 0 tot 1000 hPa);
- na een bepaalde tijd (van 1 tot 99999 minuten);
- op een vast tijdstip (van 1 tot 24 uur).

Gedurende een filterwissel is de pomp automatisch uitgeschakeld en gedurende 30 seconden vindt er een filterwissel plaats.

De β -stofmonitoren in het LML staan zodanig ingesteld dat er om de 25 uur een filterwissel plaatsvindt. In dit onderzoek is ervoor gekozen om de tijdsinstelling 25 uur in te stellen, tenzij anders staat vermeld. Het synchroniseren van deze filterwissels is echter moeilijk omdat de LML monitor centraal aangestuurd wordt.

Als een filterwissel wordt uitgevoerd zal de meetkop opengaan, de filterband schuift op en de kop gaat weer dicht. De monitor zal een nieuw nulpunt vaststellen voor het nieuwe stukje filterband. Hierbij blijkt, dat de monitor een piek geeft in de stofbelading. Het is mogelijk dat, omdat gerekend wordt met glijdend-uurgemiddelden, hierdoor één of meerder uurwaarden niet moeten worden meegenomen in de verdere berekening. In hoofdstuk 3 staat beschreven of door filterwissels (gevolgd door het opnieuw instellen van een nulpunt) de gevoeligheid van de monitoren wordt gewijzigd.

Inlaattemperatuur

De inlaattemperatuur van de in LML gebruikte PM_{10} -inlaatkoppen staat standaard ingesteld op 50°C (Standard Operating Procedure (SOP) LLO/OM/321) om condensvorming tegen te gaan. Voorgaande laboratoriumwerkzaamheden hebben laten zien dat ammoniumnitraat bij deze instelling deels kan verdampen (Van Arkel, 2002).

De invloed van de verwarming op de onderschatting van de vermoedelijk ware PM_{10} -concentratie zal worden bepaald door de effectiviteit van de verwarming. Bedenk hierbij dat de verwarmingstemperatuur wordt ingesteld op de buitenmantel van het inlaatsysteem, zodat de temperatuur inwendig in dat inlaatsysteem (beduidend) lager kan zijn. Daarnaast vormt uiteraard ook het aandeel vluchtig ammoniumnitraat in PM_{10} een belangrijke factor.

De verwarmingsmantel in het LML heeft een lengte van 30 cm (foto 4, bijlage 4). Het is mogelijk om de temperatuur (nogmaals: op de buitenmantel) te variëren tot 80°C. En nogmaals, het is van belang te realiseren dat de luchtstroom door de inlaat deze ingestelde temperatuur niet hoeft te bereiken. Bij een instelling van 50°C wordt geschat dat de luchtstroom ca. 30°C zal zijn.

Om na te gaan of de effectiviteit van de verwarming van invloed is op het meetsignaal is in dit onderzoek een β -stofmonitor opgenomen met een inlaatverwarming van 220 cm. In hoofdstuk 3 staat de invloed van de inlaattemperaturen van de monitoren beschreven.

2.3 De TEOM

De Tapered Element Oscillating Microbalance (TEOM) is geproduceerd door Rupprecht en Patashnick. Inc. Amerika (Patashnick, 1991). De TEOM wordt gebruikt voor PM₁₀-metingen in verschillende staten van Amerika en in enkele landen van Europa. In Nederland is deze meetmethode niet in het LML opgenomen.

In de TEOM wordt stof opgevangen op een oscillerend filter dat is vastgehecht aan de top van een hol spits toelopende trillende glazen staaf. De veranderingen in de trillingen (eigenfrequentie) wordt gebruikt als maat voor de stofbelading op het filter.

Om geen last te hebben van vocht, en om voor een stabiele frequentie meting te zorgen dient dit apparaat bedreven te worden op een constante temperatuur boven die van de buitenlucht; standaard instelling is op 50°C.

De monstername inlaat is identiek aan de β-stofmonitor. Na de monstername zal echter slechts een deel van de luchtstroom (3 l/min) over het filter worden geleid.

2.3.1 Berekening van de stofconcentratie

De concentratie volgt uit de stofbelading en de stofbelading wordt bepaald uit de frequentie van de vibratie van het oscillerende filter. De frequentie wordt berekend volgens formule 4a en 4b.

$$\text{Formule 4a: } f = \sqrt{\frac{K}{m}} \quad \text{formule 4b: } \Delta m = K_0 \left(\frac{1}{f_1^2} - \frac{1}{f_0^2} \right)$$

f	:frequentie
f ₁	:frequentie eind
f ₀	:frequentie begin
K ₀	:kalibratie constante
K	:veerconstante
m	:massa
Δm	:verandering van massa

Iedere twee seconden wordt het verschil in massa bepaald en uurgemiddelde concentraties kunnen hiermee worden berekend. Een volledige beschrijving van deze berekening staat in de handleiding van de TEOM series 1400a (TEOM, 1993). In dit verslag worden uurgemiddelde concentraties vermeld, tenzij anders staat beschreven.

De TEOM berekent de PM₁₀-concentratie bij 25°C en 1 atmosfeer (volgens EPA normering). De PM₁₀-concentraties worden in dit verslag gepresenteerd bij de standaard LML condities van 20°C en 1 atmosfeer. Derhalve worden de meetgegevens van de TEOM eerst vermenigvuldigd met een factor $(298/293) = 1,017$.

2.3.2 Vaststelling van het debiet

Het debiet door de monstername-inlaat is 1 m³/uur, de flow die door de TEOM over het filter wordt geleid is 3 l/min. Het debiet wordt door de TEOM geregeld met behulp van een

massflow controller. De gebruiker geeft de gemiddelde temperatuur en druk op. Deze staat standaard ingesteld op 25°C en 1 atmosfeer. In dit onderzoek heeft vanaf februari de gemiddelde temperatuur op 5°C gestaan en vanaf april op 15°C. De druk is ongewijzigd gebleven. Deze instellingen zijn van invloed bij het vaststellen van het debiet.

3. De invloed van de monitor instellingen

3.1 Opzet

Om na te gaan of het wijzigen van de instellingen van de β -stofmonitoren invloed heeft op de gemeten PM_{10} -concentratie is het van belang dat de β -stofmonitoren gelijke gevoeligheid hebben. De monitoren zijn gekalibreerd voordat een onderzoek wordt uitgevoerd waarbij de instellingen veranderen.

De monitoren staan opgesteld te Biest-Houtakker in de periode van februari t/m mei 1999. In een mobiele meetwagen naast de LML meethut staan twee β -stofmonitoren, een TEOM, een Aethalometer (een soort automatische zwarte rook monitor) en een temperatuur- en relatieve vochtigheidsmeter opgesteld. Er wordt continu gemeten. Verder wordt in februari en maart de concentratie ammoniak gemeten. In de LML meethut staat een β -stofmonitor, een zwarte rook monitor en MVS apparatuur (metalen). Daarnaast staan er meetopstellingen om enkele gassen te meten. In mei is een vierde β -stofmonitor in de meethut geplaatst.

M.b.t. de instelling: *Filterwisseling*. Het is opvallend dat na een filterwissel de eerste uurgemiddelde PM_{10} -waarde veelal onjuist is, omdat daarin nogal grote afwijkingen geconstateerd worden. Het is daarom belangrijk vast te stellen dat de monitor na het wisselen van het filter niet van gevoeligheid verandert bij het zoeken naar een nieuw nulpunt. Om dit nader te onderzoeken zijn drie β -stofmonitoren ingezet met een verschillend aantal filterwissels. De β -stofmonitoren die zijn gebruikt zijn gekalibreerd en hebben dan ook een gelijke gevoeligheid. De gebruikte β -stofmonitoren zijn:

- SD22, met om de 2400 μg een filterwissel
- SD24, met om de 12 uur een filterwissel
- SD18, met om de 26 uur een filterwissel

De monitoren zijn hierna teruggezet naar de standaardinstelling van om de 25 uur filterwissel, tenzij anders staat vermeld.

Tijdens de meetcampagne in Biest-Houtakker is er voor gekozen om het aantal filterwissels te minimaliseren, door de monitor zodanig in te stellen dat er bij een stofbelading van 2400 μg wordt gewisseld.

M.b.t. *Inlaatverwarming / temperatuur* laten laboratoriumexperimenten wezenlijke effecten zien op het vluchtige aërosol ammoniumnitraat (Van Arkel, 2002).

Door bij drie monitoren de inlaattertemperatuur te variëren wordt nagegaan of de invloed van de inlaatverwarming in de veldsituatie merkbaar of juist verwaarloosbaar is. Naast ammoniumnitraat (zoals in voornoemde laboratoriumexperimenten) zullen meer vluchtige componenten aanwezig zijn in de buitenlucht.

Om een hoge inlaattemperatuur te kunnen bereiken is er gebruik gemaakt van een extra lange verwarming van 220 cm in plaats van een verwarming van 30 cm om de inlaat van één van de β -stofmonitoren (SD22).

De gebruikte β -stofmonitoren zijn:

- SD22, bij 80°C met lange verwarmingsmantel;
- SD24, zonder dat de verwarming is aangesloten;
- LML, instelling bij 50°C.

De verwarmingsmantel van de β -stofmonitor staat weergegeven in foto 4, bijlage 4. Met behulp van een oppervlaktetemperatuurmeter TESTO901 wordt de effectieve temperatuur vastgesteld, direct onder de verwarmingsmantel.

De monitoren staan ingesteld op filterwissels na 2400 μg op het LML na, om de storende invloed van een filterwissel te voorkomen.

3.2 Resultaten

Voordat de monitoren worden onderzocht zijn deze gekalibreerd en wordt er verondersteld dat de monitoren een gelijke gevoeligheid hebben. Om dit na te gaan hebben de monitoren tenminste een week met gelijke instellingen gemeten.

3.2.1 Invloed van filterwissels

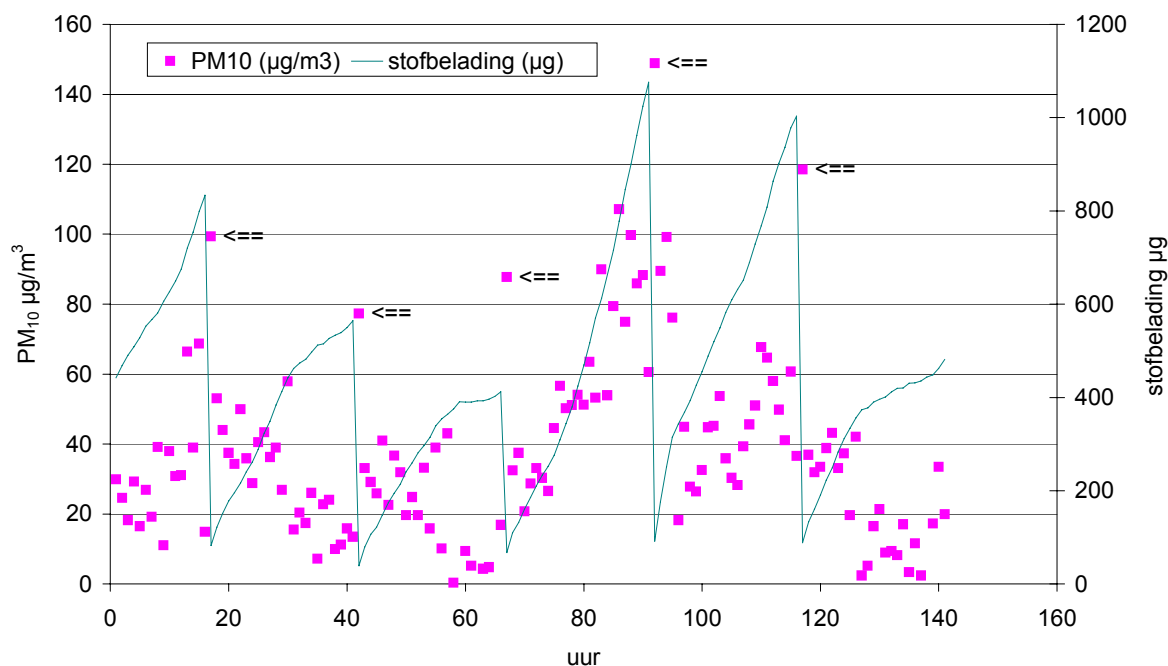
In figuur 6, bijlage 5 staat aangegeven hoe de stofbelading van de β -stofmonitoren toeneemt in de tijd, bij verschillende instelling van filterwissels. In figuur 7, bijlage 5 staat de toename van de stofbelading, als de eerste drie uur worden weggelaten; hierbij wordt ter wille van de duidelijkheid de stofbelading arbitrair op nul gezet.

In figuur 1 staat de PM_{10} -concentratie (20°C, inclusief correctiefactor 1,33) weergegeven tezamen met de stofbelading voor een aantal dagen in de meetperiode.

Duidelijk is te zien hoe verhoogde PM_{10} -concentraties samenvallen met de filterwissels. I.e. de eerste twee uren na een filterwissel zijn onbetrouwbaar: er vindt mogelijk overschatting plaats in de toename van de stofbelading, met als gevolg overschatting van de bijbehorende concentraties.

Het aantal filterwissels en de tijd waarop deze plaatsvinden zijn dus van belang, maar er is niet aangetoond dat de gevoeligheid van de monitoren hierbij ook varieert.

De verwachting is dat de instellingen van de monitoren wat betreft de filterwissels geen invloed hebben op de PM_{10} -concentratie bij correcte validatie van de gegevens. In het LML worden de betreffende PM_{10} -waarden na filterwissel dan ook geschrapt bij het valideren.



Figuur 1 Invloed van filterwissels op PM_{10} -signaal

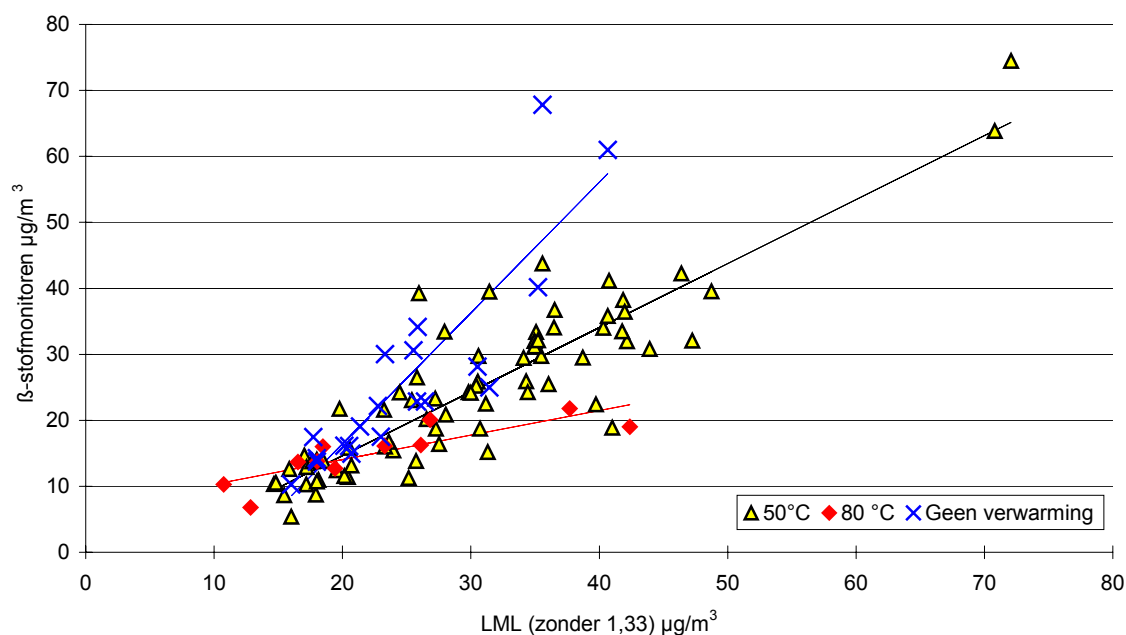
3.2.2 Invloed van de inlaattemperatuur

Om de invloed van de inlaatverwarming op de fijnstofconcentratie te bepalen, zijn drie β -stofmonitoren met elkaar vergeleken bij drie verschillende instellingen van de inlaatverwarming. De resultaten worden getoond in figuur 2, waarin daggemiddelden met elkaar vergeleken worden.

In hoofdstuk 3.1 is gesuggereerd dat de ingestelde temperatuur van de inlaatverwarming beduidend hoger kan zijn dan de werkelijke, effectieve temperatuur in het inlaatsysteem. De gemeten effectieve temperaturen op de inlaat van de β -stofmonitoren zijn:

Tabel 1 Oppervlakte-temperatuurmeting

Verwarming	temperatuur
lange verwarming ingesteld op 80°C	53,2°C
korte verwarming ingesteld op 50°C	22,5°C
zonder verwarming	18,9°C



Figuur 2 Inlaattemperatuur en de PM_{10} -concentratie

Uit de figuur blijkt duidelijk de invloed van de inlaatverwarming op de gemeten fijnstofconcentratie (PM_{10}).

Vluchtig aërosol zal vervluchtigen en hierdoor meet een monitor met inlaatverwarming minder dan een monitor zonder inlaatverwarming.

Duidelijk is te zien dat de monitor zonder verwarming tot de hoogste meetresultaten leidt.

De monitor met lange verwarming ingesteld op 80°C geeft een duidelijke onderschatting van de fijnstofconcentratie

Daarbij komt nog dat eventueel vocht op het filter ook een β -verzwakking geeft en dus als stof gemeten wordt. Door inlaatverwarming kan ook dit vocht verdampen. Blijkbaar is een verwarming van 50°C al voldoende effectief om vocht te verdampen.

De instelling van de inlaattemperatuur is dus duidelijk van belang. Als een monitor zonder verwarming wordt vergeleken met een monitor met een verwarming is een duidelijk verschil merkbaar. Het vluchtige aërosol en het vocht verdampen en worden niet meeberekend.

Het onderzoek heeft plaatsgevonden in een winterse periode met temperaturen onder de 0°C. Het is van belang na te gaan of inlaatverwarming bij hogere buitenluchtttemperaturen ook van invloed is op de gemeten fijnstofconcentratie. Immers, onder deze situaties is het evenwicht van het semi-vluchtige ammoniumnitraat duidelijk verschoven naar de deeltjesvormige fase. Anders gezegd, de bijdrage van semi-vluchtig aërosol aan PM_{10} zou aanzienlijk hoger kunnen uitvallen. Het lijkt mogelijk dat een monitor met lange verwarming bij 80°C dan ongeveer tot de helft aan fijn stof meet door het vervluchtigen van deeltjes.

4. Vergelijking van drie fijnstofmeetmethoden

Dit hoofdstuk gaat in op de vraag hoe de verschillende meetmethoden (Klein Filter Gerät, β -stofmonitor en TEOM) zich tot elkaar verhouden.

De handmatige meetmethode (KFG) is ingesteld op 24 uur bemonstering. Van de overige meetmethoden worden de meetwaarden gebruikt van die dagen dat de handmatige meetmethode stond ingesteld. De gegevens van de fijnstofconcentraties zijn omgerekend zoals standaard in het LML gebruikelijk is bij 20°C en 1 atmosfeer.

Het doel van dit onderzoek is in de eerste plaats de β -stofmeetmethode te vergelijken met de referentiemethode. De verhouding tussen deze twee methoden wordt dan ook allereerst besproken. Vervolgens is aanvullend nagegaan hoe de TEOM zich verhoudt met het KFG en de β -stofmonitor. De TEOM is veelvuldig in gebruik om fijnstofconcentraties te berekenen en de verhouding met de overige meetmethoden is hierom van belang.

De foto's van de verschillende monitoren zijn in bijlage 1 t/m 3 weergegeven. Foto's van de opstelling in de meetwagen en de LML meethut staan in bijlage 6. Op de foto in bijlage 7 is te zien hoe de monsternamen-inlaten ten opzichte van elkaar staan. In bijlage 8 staat tenslotte een foto van de directe omgeving (ten zuidwesten) bij de meetwagen.

4.1 Vergelijking van de β -stofmonitor met het KFG

4.1.1 Inleiding

De onderschatting van 25% die wordt verondersteld, is gevonden bij het vergelijken van de β -stofmonitor met het WRAC - een zgn. Super High Volume referentiemethode voor PM₁₀. In figuur 8, bijlage 9 staat de grafiek weergegeven waaruit deze onderschatting blijkt. De metingen zijn verricht op twee verschillende plaatsen in Nederland (IJmuiden en Bilthoven) tijdens de zomer van 1990.

De β -stofmonitor wordt in deze studie echter vergeleken met een zgn. Low Volume referentiemethode voor PM₁₀: 'Klein Filter Gerät (KFG)'.

Uit standaardisatie onderzoek van referentiemethoden voor PM₁₀ blijkt dat KFG en WRAC goed met elkaar overeenkomen (EU, 2000). Dwz, als een onderschatting van 25% wordt gevonden bij het vergelijken van de β -stofmonitor t.o.v. het WRAC, mag worden verwacht dat deze factor ook wordt gevonden bij een vergelijkend onderzoek tussen de β -stofmonitor en het KFG.

Enkele verschillen in meetprincipe tussen het KFG en de β -stofmonitor staan beschreven in tabel 2.

Tabel 2 Verschillen tussen KFG en de β -stofmonitor

	Klein Filter Gerät	β -stofmonitor
<ul style="list-style-type: none"> ● meetprincipe ● monstername-inlaat ● conditie bij nawegen/meten stofmassa ● plaats monitor ● continu/handmatig ● vaststellen debiet 	<ul style="list-style-type: none"> ● gravimetrisch ● 2,3 m³/h LVS-PM₁₀ ● geconditioneerde omstandigheden (weegkamer) ● buiten ● handmatig ● aan de hand van buitentemperatuur en -druk ● geen 	<ul style="list-style-type: none"> ● radiometrisch ● Sierra-Andersen 246b ● veldsituatie (T en RH variabel) ● portacabin ● continu ● aan de hand van temperatuur en druk in meetkamer ● wel

In voorgaand onderzoek is uitgezocht of er aanleiding is te veronderstellen dat het meetprincipe de onderschatting van de β -stofmonitor veroorzaakt (Vrins, 1996).

Geconcludeerd wordt dat er sprake is van een significante intercept van 174 μg en deze wordt niet verklaard. Het is wellicht mogelijk dat een filterwissel - het openen van de meetkamer - dit intercept veroorzaakt.

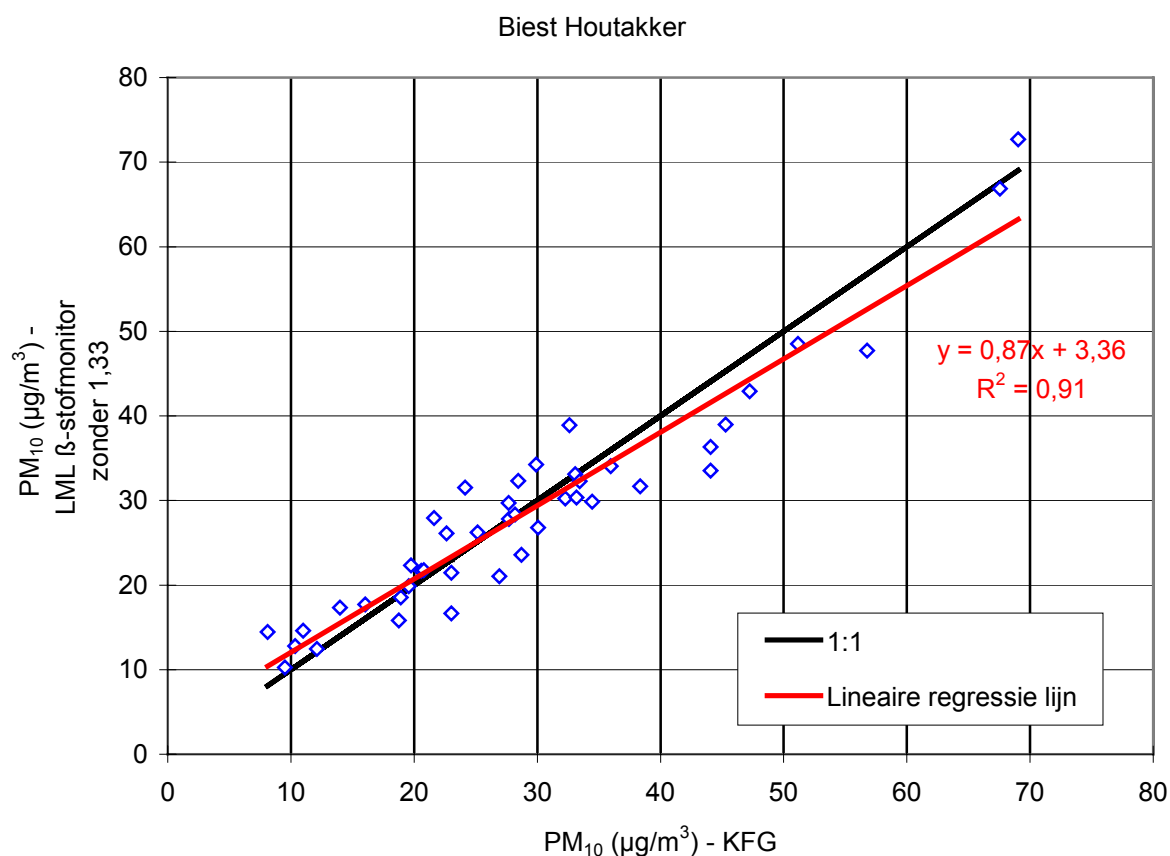
4.1.2 Materiaal en methode

Er is voor gekozen om de β -stofmonitor van het LML te Biest-Houtakker te vergelijken met het KFG. De vergelijking heeft betrekking op de periode van februari t/m mei 1999.

Over circa vijftig verschillende dagen zijn de daggemiddelde concentraties van PM₁₀-concentraties gemeten door de LML β -stofmonitor uitgezet tegen de nagewogen filters van het Klein Filter Gerät, omgerekend naar concentraties in microgrammen per kubieke meter bij 20°C en 1 atmosfeer.

4.1.3 Resultaten

De meetresultaten en de gemeten temperatuur, relatieve vochtigheid en ammoniakconcentraties van de verschillende dagen staan weergegeven in tabel 6, bijlage 10. In figuur 3 staan de daggemiddelde PM₁₀-concentraties van de LML β -stofmonitor uitgezet tegen de daggemiddelde PM₁₀-concentraties van het KFG.



Figuur 3 De verhouding PM_{10} -concentraties tussen β -stofmonitor en het KFG

In tabel 3 staat weergegeven welke regressielijnen zijn bepaald.

Tabel 3 Overzicht regressieberekeningen

Methodie	Regressielijn
Zonder weegfactoren (fig. 3)	β -stof = $0,87 * KFG + 3,36$ $R^2=0,91$
Door nulpunt	β -stof = $0,96 * KFG$ $R^2=0,90$
Met weegfactor (1/st.dev. van de β -stofmonitor)	β -stof = $0,88 * KFG + 2,80$ $R^2=0,91$

De gemiddelde dagwaarden met standaarddeviatie staan weergegeven in bijlage 11. Als de reciproque standaarddeviatie als gewicht worden meeberekend in de regressielijn en het betrouwbaarheidsinterval wordt aangegeven dan ligt bij een 95%-betrouwbaarheidsinterval de richtingscoëfficiënt tussen de 0,8 en 1,0. De y-asafsneede ligt bij dit betrouwbaarheidsinterval tussen de 1,0 en $5,4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (zie bijlage 11). De vermenigvuldigingsfactor die nodig is om de meetwaarden van de β -stofmonitor overeen te laten komen met het KFG ligt dan ongeveer tussen de 1,0 en 1,3.

4.1.4 Conclusies

De noodzaak om de PM₁₀-concentraties van de β -stofmonitor met een factor 1,33 te vermenigvuldigen is, althans in de omstandigheden te Biest-Houtakker, niet aangetoond. De vermenigvuldigingsfactor van 1,33 valt niet binnen het 95%-betrouwbaarheidsinterval. Dit geldt zowel voor de regressieanalyse waarbij geen weegfactoren zijn toegepast als waarbij gewogen met de reciproque standaarddeviatie van de daggemiddelden.

Het verdient aanbeveling dit betrouwbaarheidsinterval beter vast te stellen, door een meetcampagne te herhalen met verschillende monitoren bij gelijke instellingen, zodat de variantie tussen de beide methoden kan worden gebruikt om de weegfactoren te bepalen.

De grafische weergave in bijlage 11 geeft aan dat verschillende meetpunten buiten het betrouwbaarheidsinterval liggen. Voor individuele omstandigheden is het mogelijk dat een factor van 1,33 nodig blijkt.

Het is verder mogelijk dat bijvoorbeeld in een stedelijke omgeving, bij een andere samenstelling van de fijnstofconcentratie de factor van 1,33 wel noodzakelijk blijkt te zijn. Deze meetcampagne geeft aan dat een vermenigvuldigingsfactor van ongeveer 1,1 voldoende is (bij hogere fijnstofconcentraties) om voor onderschatting door de β -stofmonitoren te corrigeren.

Bij zeer geringe fijnstofconcentraties is sprake van een overschatting door de β -stofmonitor t.o.v. het KFG. Er wordt een intercept gevonden van 3,3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ als er geen weegfactor wordt toegepast. Dit is mogelijk toe te wijzen aan vocht (Van Arkel, 2002). Het nulpunt valt binnen het 95%-betrouwbaarheidsinterval.

De geringe onderschatting van de β -stofmonitor bij hogere concentraties ten opzicht van het Klein Filter Gerät is echter moeilijk te verklaren. Mogelijk heeft de inlaatverwarming enkele componenten slechts ten dele doen vervluchtigen. Bij de beschrijving van de β -stofmonitor in hoofdstuk 3.2.2. is echter niet aangetoond dat bij een instelling van 50°C reeds een duidelijk effect merkbaar is (de bijbehorende lucht temperatuur in het meetsysteem bedraagt slechts zo'n 20°C - 25°C!). Daarnaast zou het aandeel semi-vluchtig aërosol in Biest-Houtakker wat lager kunnen zijn dan in eerste aanleg werd vermoed, met als gevolg een enigszins kleinere onderschatting.

Dat er verschillen zijn in fijnstofconcentraties tussen de verschillende meetmethoden is te verwachten, omdat de omgevingsfactoren, zoals temperatuur en relatieve vochtigheid en samenstelling van de fijn stof fractie zeker van invloed zullen zijn op de gemeten PM₁₀-concentratie. De hygroscopische eigenschappen van een deeltje en bijvoorbeeld de temperatuur, waarbij een deeltje vervluchtigt, zijn van belang bij PM₁₀-metingen.

Het is aan te bevelen bij een duidelijk andere samenstelling van de fijnstofconcentratie de experimenten te herhalen. Er kan worden gedacht aan een stedelijke omgeving waar de fijnstofconcentraties voor Nederland relatief hoog mogen worden verondersteld

4.2 Vergelijking van de TEOM met het KFG

4.2.1 Inleiding

In deze paragraaf worden de resultaten vergeleken van TEOM met het KFG en de β -stofmonitor.

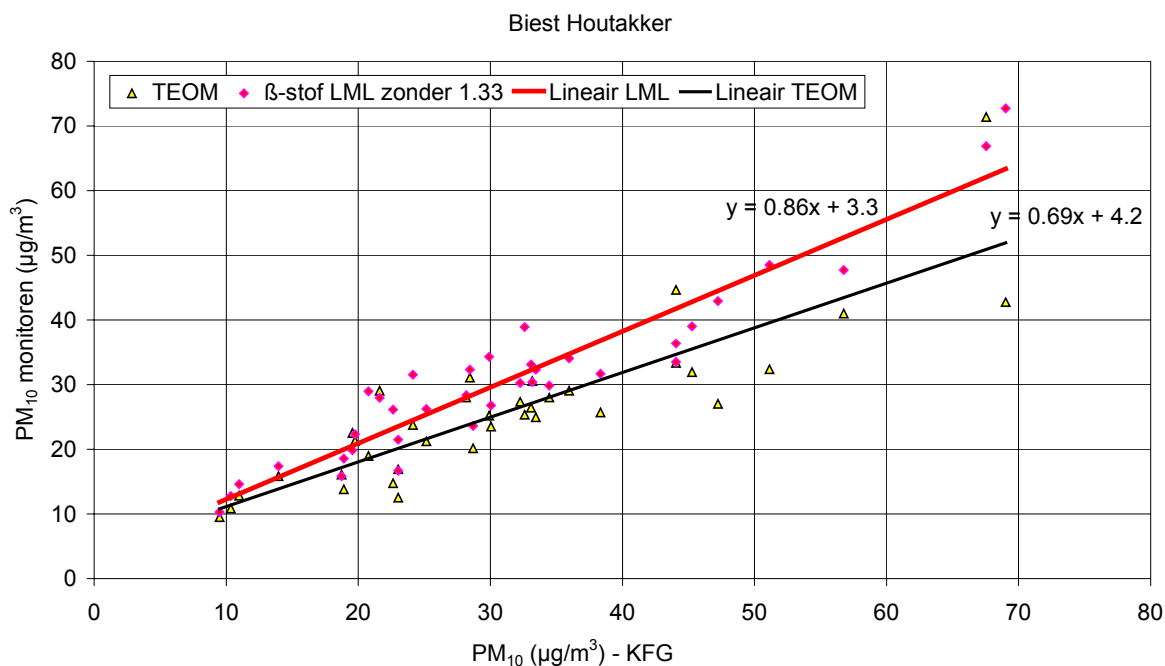
De instelling van de TEOM zijn hierbij in april 1999 veranderd van een gemiddelde omgevingstemperatuur van 8°C naar een gemiddelde omgevingstemperatuur van 15°C. Dit is van belang om het debiet in te stellen, maar mag theoretisch niet van invloed zijn op de berekende fijnstofconcentraties.

Bij een stofbelading van circa 80% worden filterwissels uitgevoerd, zoals beschreven in de handleiding van de TEOM. De instellingen van de TEOM zijn niet gewijzigd en de temperatuur van inlaat / meetkamer is op 50°C gehouden.

De daggemiddelden zijn berekend vanuit uurgemiddelde waarden tezamen met de standaarddeviatie, zoals bij de β -stofmonitor. De PM_{10} -concentraties van de TEOM zijn vervolgens vergeleken met het KFG en de β -stofmonitor.

4.2.2 Resultaten

De verhouding van de TEOM met de β -stofmonitor en het Klein Filter Gerät staat weergegeven in figuur 4.



Figuur 4 PM_{10} -concentraties van de TEOM t.o.v. β -stofmonitor en KFG

Uit de figuur is af te lezen dat de TEOM de fijnstofconcentraties meer onderschat dan de β -stofmonitor. Een vermenigvuldigingsfactor van de PM_{10} -concentraties van 1,4 en een offset van $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ is nodig om te komen tot de meetwaarden van de referentiemethode i.c. KFG.

4.2.3 Discussie

De TEOM lijkt een onderschatting te geven vergeleken met de β -stofmonitor en het KFG. Het lijkt erop alsof de verwarming van inlaat / meetkamer van TEOM beduidend effectiever is dan voor de β -stofmonitor. In paragraaf 3.2.2. was al aangegeven dat voor de β -stofmonitor een ingestelde inlaatverwarming van 50°C effectief een temperatuur van de aangezogen lucht inwendig in het meetsysteem slechts zo'n $20^\circ\text{C} - 25^\circ\text{C}$ bedraagt. Daartegenover betekent bij TEOM een instelling van 50°C inderdaad ook 50°C in de meetkamer. Het is mogelijk dat bij TEOM door verwarming bepaalde componenten meer vervluchtigen dan bij de β -stofmonitor, waardoor een lagere fijnstofconcentratie door de TEOM wordt vastgesteld. Er zijn zelfs meetwaarden waarbij de TEOM ongeveer de helft aangeeft van de gemeten fijnstofconcentratie t.o.v. KFG en β -stofmonitor. Een aantal punten daarentegen komt goed overeen.

Een duidelijke regressielijn kan waarschijnlijk niet worden getrokken, omdat de concentratie aan vluchtige componenten in de buitenlucht sterk kan variëren.

4.3 Invloed van andere factoren op fijnstofmetingen

4.3.1 Inleiding

De temperatuur, de relatieve vochtigheid (RH) en de ammoniakconcentratie in de buitenlucht zijn gedurende de meetcampagne gemeten. Over de dagen dat er een filter van het KFG is bemonsterd zijn hierover gemiddeldes berekend. Voor de dagen waarop geen eigen data m.b.t. temperatuur en relatieve vochtigheid aanwezig zijn, wordt gebruik gemaakt van data van een dichtbij gelegen KNMI-station (Gilze-Rijen of Eindhoven).

Dit hoofdstuk wil ingaan op de invloed van deze factoren op de meting van de fijnstofconcentratie door de verschillende monitoren

4.3.2 Materiaal en methode

Er is gebruik gemaakt van de volgende apparatuur:

- β -stofmonitor SD18;
- β -stofmonitor SD22 met lange verwarmingsmantel;
- β -stofmonitor SD24;
- β -stofmonitor LML;
- TEOM series 1400a;
- Klein Filter Gerät KFG;
- AMANDA - Ammonia Measurement with Annular Denuder sampling and on-line Analyses;
- Aethalometer (Magee Scientific AE-10) (een soort zwarte rook meting);
- Temperatuur en relatieve vochtigheidsmeter (Vaisala).

De sensoren voor de meting van buitentemperatuur en relatieve vochtigheid zijn geplaatst boven op de meetwagen. De β -stofmonitoren zijn geplaatst in de portakabin en de meetwagen. In de meetwagen is een monitor met een lange verwarming (SD22) en een monitor met een korte verwarming (SD24) geplaatst. In de portakabin is een standaard β -stofmonitor met een korte verwarming van het LML. De β -stofmonitor (SD18) die in april ernaast is geplaatst heeft eveneens een korte verwarming (zie foto 5, bijlage 6).

De ammoniakconcentratie wordt gemeten met behulp van de AMANDA, een natte roterende denuder met directe analyse (zie voor een uitgebreide beschrijving van de meetmethode de handleiding van de AMANDA). De Amanda heeft slechts enige tijd correct gelopen. De data zijn aangevuld met gegevens uit naburige meetstations.

In het LML wordt van verschillende gassen de concentratie gemeten. De correlatie en het verloop van ozon en koolstofmonoxide zijn in dit verslag bepaald.

4.3.3 Resultaten

De berekende ammoniakconcentraties, de relatieve vochtigheid en de temperaturen waarbij door de drie monitoren tegelijkertijd is bemonsterd staan tezamen met de fijnstofconcentraties weergegeven in tabel 6, bijlage 10. De correlaties die tussen de meetwaarden zijn gevonden staan in tabel 4.

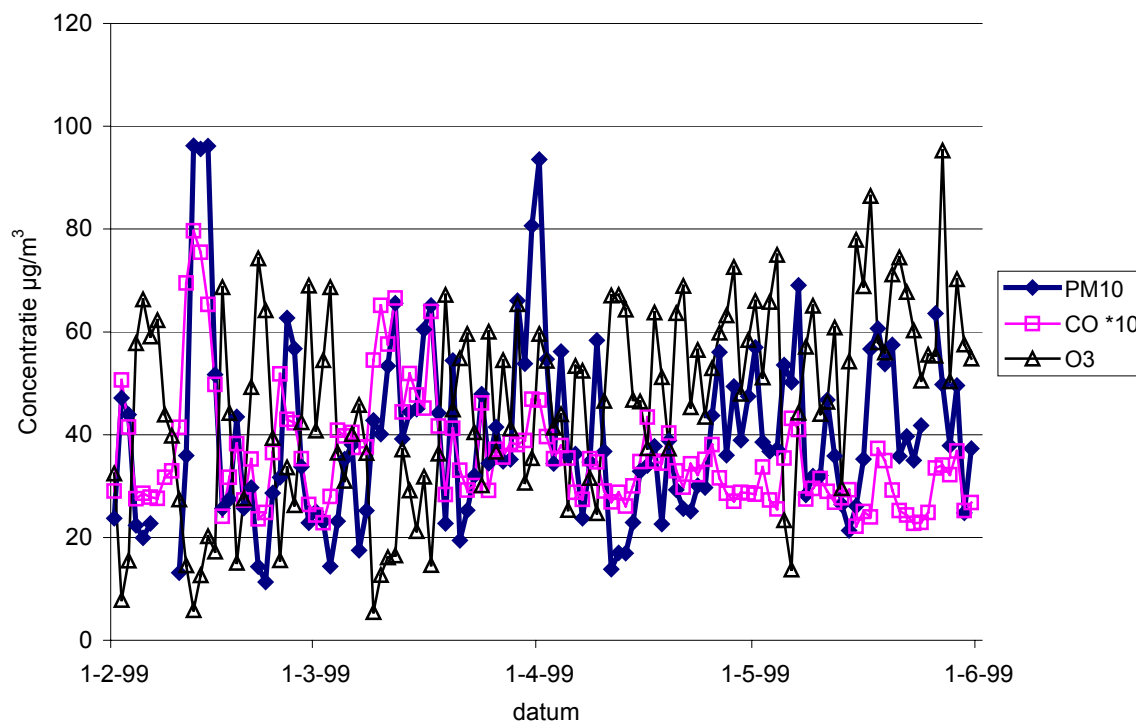
Tabel 4 Correlatiediagram van temperatuur, relatieve vochtigheid en ammoniakconcentratie

	KFG [*]	LML	SD18	SD22	SD24	TEOM	T	RH
KFG	1							
LML	0,95	1						
SD18	0,70 ³³	0,74 ³³	1					
SD22	0,76 ¹²	0,75 ¹²	-0,23 ³⁶	1				
SD24	0,92 ¹²	0,93 ¹²	-0,57 ³⁶	0,68 ¹²	1			
TEOM	0,85 ⁶	0,83 ⁶	0,97 ³⁵	0,76 ¹⁴	0,84 ¹⁴	1		
T	0,11	0,04	0,48 ³³	0,44 ¹²	-0,05 ¹²	0,22 ⁶	1	
RH	-0,31	-0,28	-0,72 ³³	-0,40 ¹²	-0,20 ¹²	-0,57 ⁶	-0,54	1
NH₃	0,41 ²	0,37	0,02 ³⁵	0,49 ¹⁴	0,34 ¹⁴	0,31 ⁶	-0,05 ²	-0,07 ²

* De in superscript geschreven cijfers geven aan hoeveel meetwaarden van de 45 daggemiddelden PM₁₀-concentraties niet zijn meegenomen in de berekening.

Uit de correlatie diagram is af te lezen dat het KFG en de LML β -stofmonitor goed met elkaar correleren. Verder is het van belang te realiseren dat voor de β -stofmonitor SD18 de correlaties berekend zijn op basis van slechts enkele dagwaarden.

In figuur 5 staat het verloop van de gassen ozon en koolstofmonoxide uitgezet tegen de tijd te samen met het verloop van de fijnstofconcentratie



Figuur 5 Verloop daggemiddelde van enkele gassen en PM_{10} uit LML

De correlaties tussen de meetwaarden van PM_{10} , CO en Ozon staan in tabel 5.

Tabel 5 Correlatie gassen met PM_{10}

variabele	PM_{10}	CO	Ozon
PM_{10}	1		
CO	0,61	1	
Ozon	-0,33	-0,75	1

4.3.4 Conclusie

Er worden geen duidelijke verbanden aangetroffen tussen temperatuur, relatieve vochtigheid, ammoniakconcentraties en de PM_{10} -concentratie. Een negatieve correlatie van 0,5 tussen de temperatuur en de relatieve vochtigheid is opvallend, maar ook niet echt significant.

De PM_{10} -meetmethoden correleren redelijk met elkaar. Met name valt op dat de LML β -stofmonitor goed correleert met het KFG.

De temperatuur lijkt enigszins negatief gecorreleerd te zijn met de PM_{10} -concentratie gemeten met de TEOM. Dit betekent dat bij vochtiger omstandigheden de fijnstofconcentratie van de TEOM afneemt. Er is geen reden om aan te nemen dat deze correlatie ook in andere situaties zal opgaan.

In verschillende studies is gemeld dat voor de gezondheid relevantie ozon en CO een belangrijke rol kunnen spelen. De correlatie van PM_{10} en het verloop van de concentratie van deze gassen is hierom weergegeven. Duidelijke positieve correlatie blijkt voornamelijk tussen PM_{10} en CO. Opvallend is dat PM_{10} en ozon in deze periode negatief met elkaar correleren. De aethalometer is tijdens de meetcampagne defect gegaan en hierdoor zijn de meetresultaten onbetrouwbaar. Bij aanvullend onderzoek is het raadzaam deze meetmethode opnieuw in te zetten.

5. Discussie

De meetcampagne te Biest-Houtakker heeft gelopen van februari t/m mei 1999.

Toepassing van de in LML gehanteerde standaard correctiefactor van 1,33 voor de betreffende omstandigheden te Biest-Houtakker leidt tot overschatting van de fijnstofconcentraties aldaar (orde 20 %).

In 1990 hebben fijnstofmetingen in de maanden juni t/m augustus op twee verschillende locaties (IJmuiden en Bilthoven) plaatsgevonden. Daarbij werd een correctie factor gevonden van grosso modo 1,33. Het is deze factor die standaard in LML als correctiefactor wordt gehanteerd.

Een veranderde samenstelling van fijnstof (bijvoorbeeld het aandeel vluchtige componenten of het aantal hygroscopische deeltjes) en verschillen in temperatuur zijn mogelijk de oorzaak van de gevonden verschillen tussen de beide jaren.

Tijdens de meetcampagne te Biest-Houtakker verschillen de meetmethoden (β -stofmonitor en TEOM) duidelijker in een koudere periode. De referentiemethode heeft op deze koude dagen echter niet bemonsterd. Om na te gaan of er verschillen zijn tussen de β -stofmonitor en het KFG bij extreme temperaturen (onder het vriespunt, boven de 30°C) - waarbij een correcte monsternamen niet is gegarandeerd - zijn aanvullende metingen noodzakelijk.

Het is hierbij van belang om na te gaan of het debiet dat is vastgesteld, geen invloed kan hebben op de afsnijdiameter van de deeltjes die zijn afgevangen. De TEOM bepaalt de temperatuur en druk niet en geeft de gebruiker de mogelijkheid deze in te voeren. De β -stofmonitor meet de temperatuur en druk in het meetcompartiment en het KFG meet de temperatuur en druk buiten. Dit kan leiden tot verschillende instellingen van het debiet. Volgens opgave van de fabrikant is een afwijking van 10% toegestaan.

Voorgaand onderzoek (Allen, 1997) geeft aan dat de TEOM niet vergelijkbaar is met de overige meetmethoden, omdat er bij de TEOM sprake is van het effectief vervluchtigen van deeltjes. Dit onderzoek bevestigt het idee dat de TEOM een onderschatting van de fijnstofconcentraties veroorzaakt door het verwarmen tot 50°C.

De vergelijking van de twee automatische monitoren (β -stof en TEOM) met de handmatige referentie monitor KFG dient nog het volgende bedacht te worden. Het geconditioneerde KFG filter bevat bij het wegen wel een constante hoeveelheid vocht, terwijl dat bij de automatische monitoren per uur kan verschillen. Reacties die nog op het filter plaats vinden tijdens bemonstering, kunnen afhankelijk zijn van de vochtigheid.

6. Conclusies en Aanbevelingen

Het doel van dit onderzoek is na te gaan of de gevonden onderschatting van circa 25% door de β -stofmonitoren vergeleken met de referentiemethode voor PM_{10} is te verklaren. Van belang is te realiseren dat er in dit onderzoek gebruik is gemaakt van een andere referentiemethode (Klein Filter Gerät vs. Wide Range Aërosol Classifier WRAC in 1990).

In dit hoofdstuk worden achtereenvolgens de conclusies en aanbevelingen bij het vergelijken van de verschillende meetmethoden besproken:

- de relatie tussen de β -stofmonitor en de referentiemethode KFG;
- conclusies en aanbevelingen over het onderzoek tussen de verschillende β -stofmonitoren;
- idem t.a.v. het vergelijkend onderzoek tussen TEOM en de overige methoden.

Vergelijkend onderzoek β -stofmonitoren vs. KFG

- Het Klein Filter Gerät en de β -stofmonitor komen goed met elkaar overeen (binnen een factor 1 – 1,3), althans te Biest Houtakker in de periode van februari t/m mei 1999. Toepassing van de standaard LML vermenigvuldingsfactor van 1,33 leidt in de onderhavige situatie tot een overschatting (orde 20%) van de fijnstofconcentratie te Biest-Houtakker, vergeleken met het Klein Filter Gerät.
- Het lijkt raadzaam deze meetsessie te herhalen, door in een zelfde seizoen in een ammoniakrijke omgeving fijn stof te meten met het KFG en deze te vergelijken met β -stofmonitoren uit LML. Een opzet waarbij van elke methode minimaal twee monitoren in gebruik zijn, is aan te bevelen.
- Het is aan te bevelen in een omgeving met een hogere concentraties aan fijn stof een vergelijkend onderzoek te doen tussen β -stofmonitor en KFG. Het is denkbaar dat juist bij hogere concentraties een aangepaste vermenigvuldigingsfactor noodzakelijk is.
- Omdat de hygroscopie van de deeltjes verschilt, zou nagegaan moeten worden wat de invloed van de relatieve vochtigheid is op het meetresultaat van KFG door de weegkamer op verschillende relatieve vochtigheden te brengen. Op deze wijze is na te gaan wat de mogelijke invloed van vocht is op het gewicht van de fijne stofdeeltjes.
- Kennis omtrent de samenstelling van de fijnstoffractie (alsook grof stof) zal bijdragen aan een beter begrip omtrent de verschillende meetmethoden. Onderzoek naar de samenstelling van de fijnstoffractie is dus gewenst.

Vergelijkend onderzoek van β -stofmonitoren

- De inlaatverwarming van de β -stofmonitor te Biest-Houtakker heeft bij een instelling van 50°C geen merkbare invloed op de meting van de fijnstofconcentratie. Bij een instelling op 80°C is er duidelijk sprake van het vervluchtigen van deeltjes.
- Na filterwissel van de β -stofmonitor blijken de direct daaropvolgende één of twee uurgemiddelde waarden onbetrouwbaar te zijn. Bij validatie dienen deze uurwaarden

gediskwalificeerd te worden, zodat bij de berekening van daggemiddelde PM_{10} -concentraties geen hinder van dit effect wordt ondervonden. Het is dan ook raadzaam het aantal filterwissels te minimaliseren.

Vergelijkend onderzoek van de TEOM met β -stofmonitor en KFG

- De TEOM komt tot een lagere fijnstofconcentratie PM_{10} . Door de effectieve verwarming tot $50^{\circ}C$ wordt een deel van de vluchtige componenten niet meegemeten.
- Een vergelijkend onderzoek tussen TEOM, en onderzoek naar mogelijkheden om de TEOM te gebruiken zonder verwarming, verdient aanbeveling.
- Het nagaan van de invloed van het variëren van de gemiddelde temperatuur op de instelling van het debiet en op de correctheid van de monsternamen is aan te bevelen. Dit geldt eveneens voor de β -stofmonitoren.

Literatuur

- Allen G, Sioutas C, Koutrakis P. 1997. Evaluation of the TEOM Method for Measurement of Ambient Particulate Mass in Urban Areas. *J. Air & Waste Manage Assoc.* 47: 682-689.
- Arkel FTh van (Buro Blauw), Putten EM van, Bloemen HJTh, Meulen A van der (RIVM). 2002. Vergelijkende PM₁₀-metingen in Nederland, deel A: laboratoriumexperimenten. Bilthoven: Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM). Rapportnr. 650010 023.
- Elzakker BG van, Meulen A van der, Hellemond J van, Regts TA. 1992. De β -stof meetmethode. Vergelijking van een vijftal monitoren. Bilthoven: Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM). Rapportnr. 223105001.
- Ingenieurburo Norbert Derenda (IND). 1998. Low Volume Sampler LVS3. Bedienungsanleitung Klein Filter Gerät. Berlijn.
- Meulen A van der, et al. 2000. Evaluation of CEN field test procedure to demonstrate equivalence of sampling methods for the PM₁₀ fraction of suspended particulate matter with a reference sampling method for PM₁₀. EU Report: EUR 18668 EN.
- Meulen A van der, Elzakker van BG, Mark D, Zierock KH. 1990. Improvement in the design and operation of a sampler for the measurement of suspended particulate matter in the ambient atmosphere (Phase II). Bilthoven: Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM). Rapportnr. 222403001.
- NEN-EN 12341. 1998. Norm Luchtkwaliteit - Bepaling van de PM₁₀-fractie van zwevend stof - Referentiemethode en veldonderzoek om de referentie gelijkwaardigheid aan te tonen van meetmethoden.
- Patashnick H, Rupprecht E.G. 1991. Continuous PM₁₀ Measurements Using the Tapered Element Oscillating Microbalance. *J. Air Waste Manage. Assoc.* 41: 1079-1083.
- Rupprecht & Patashnick Co., Inc. 1993. Operating Manual. TEOM Series 1400a. Ambient Particulate (PM₁₀) Monitor. USA.
- Straalen van D. 1997. De β -stofmonitor in het landelijk meetnet luchtkwaliteit. Bilthoven: Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM). Standard Operating Procedure LLO: SOPnummer LLO/OM/321.
- Swaan P, Elzakker BG van. 1994. Validatie van de fijn stof (PM₁₀) meetresultaten van het Landelijke Meetnet Luchtkwaliteit. Bilthoven: Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM). Rapportnr. 723101010.

Vrins E, Koster M, Overdijkink M, Kerkhof N van, Bree F. 1996. De relatie radiometrie-gravimetrie van de β -stofmonitoren van het landelijke meetnet luchtkwaliteit. Buro Blauw. Rapportnummer BL95616.01.

BIJLAGE 1



Foto 1 Klein Filter Gerät

BIJLAGE 2

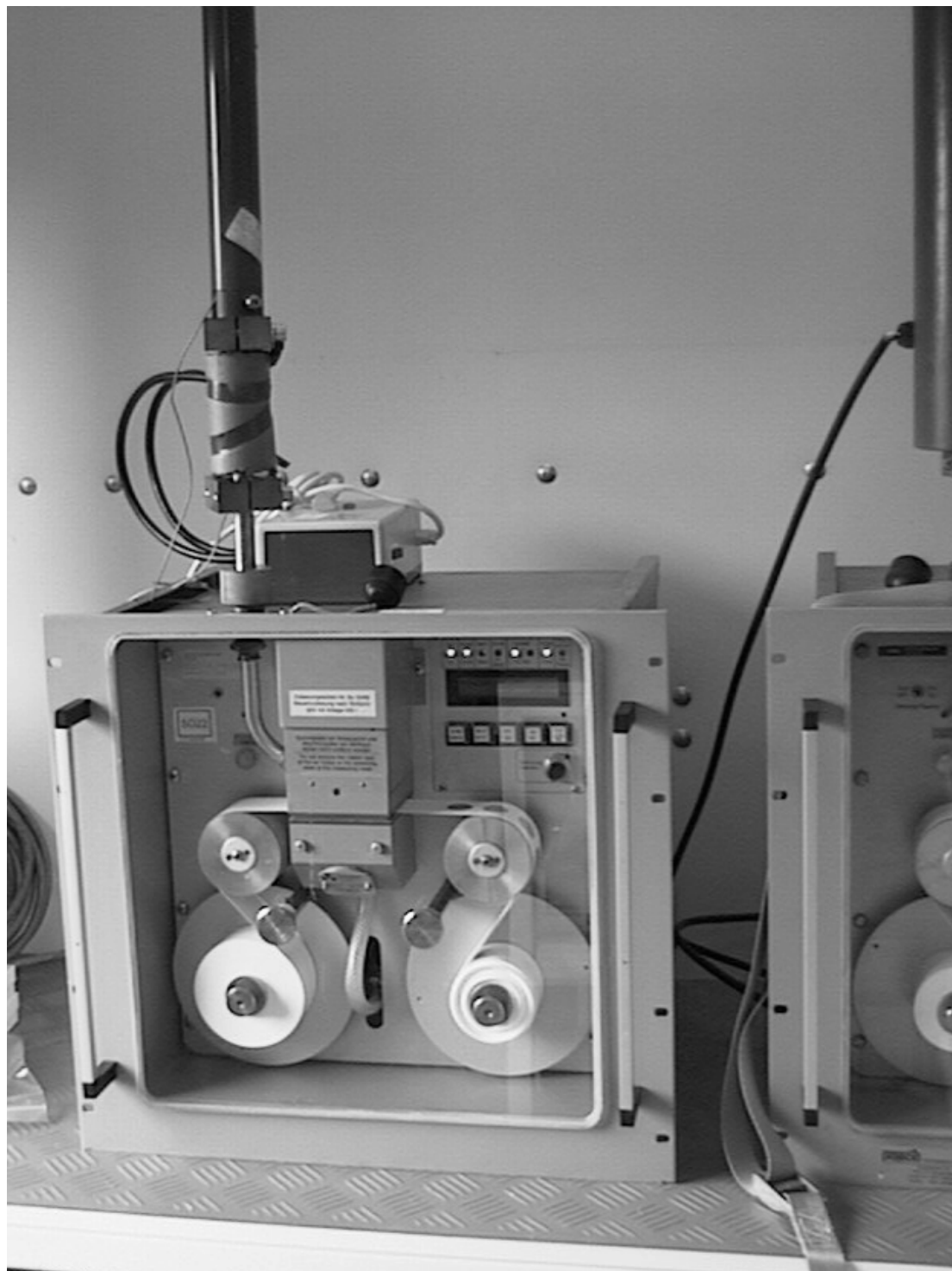


Foto 2 β -stofmonitor - hier met lange verwarming

BIJLAGE 3



Foto 3 TEOM

BIJLAGE 4

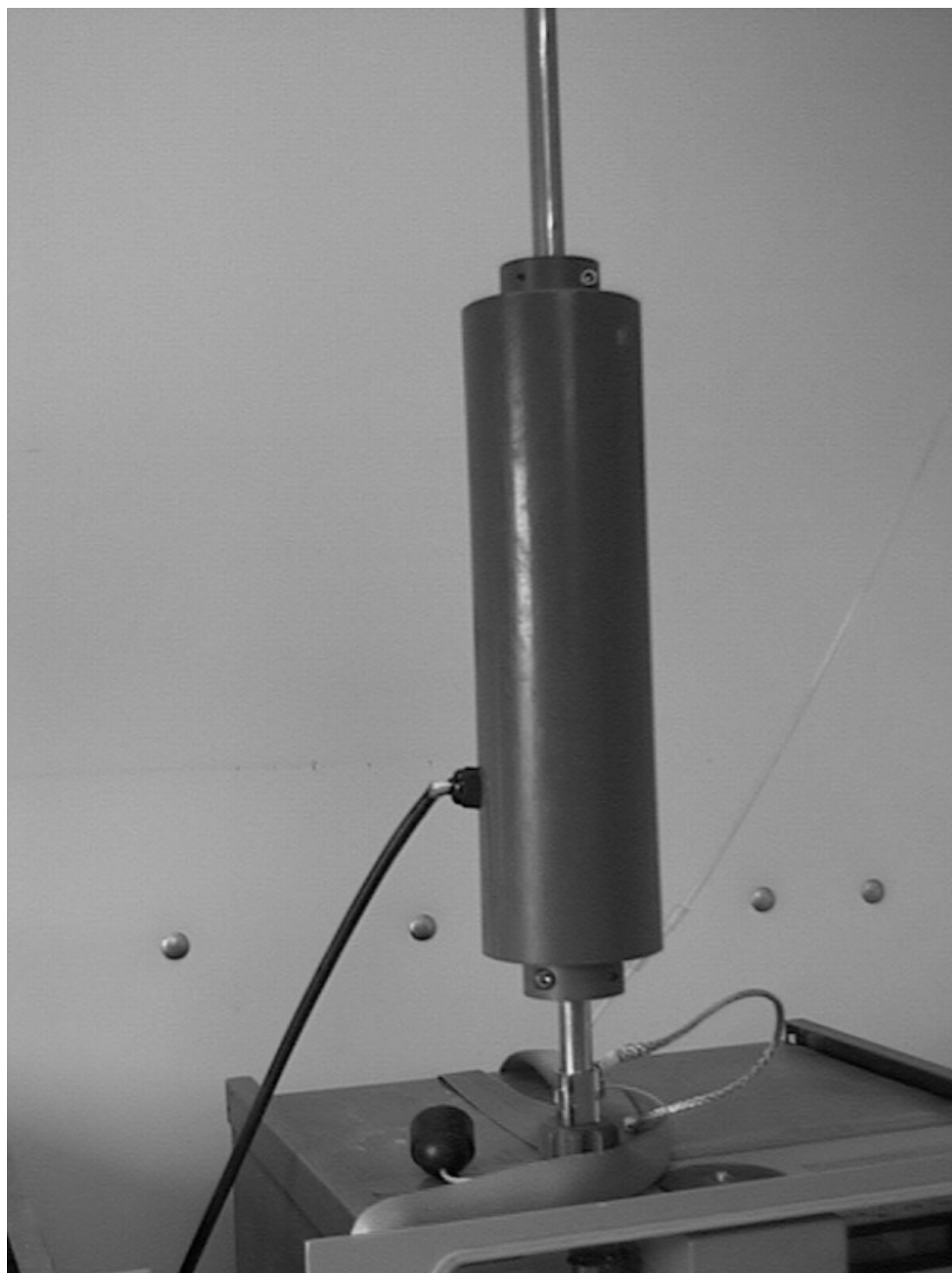
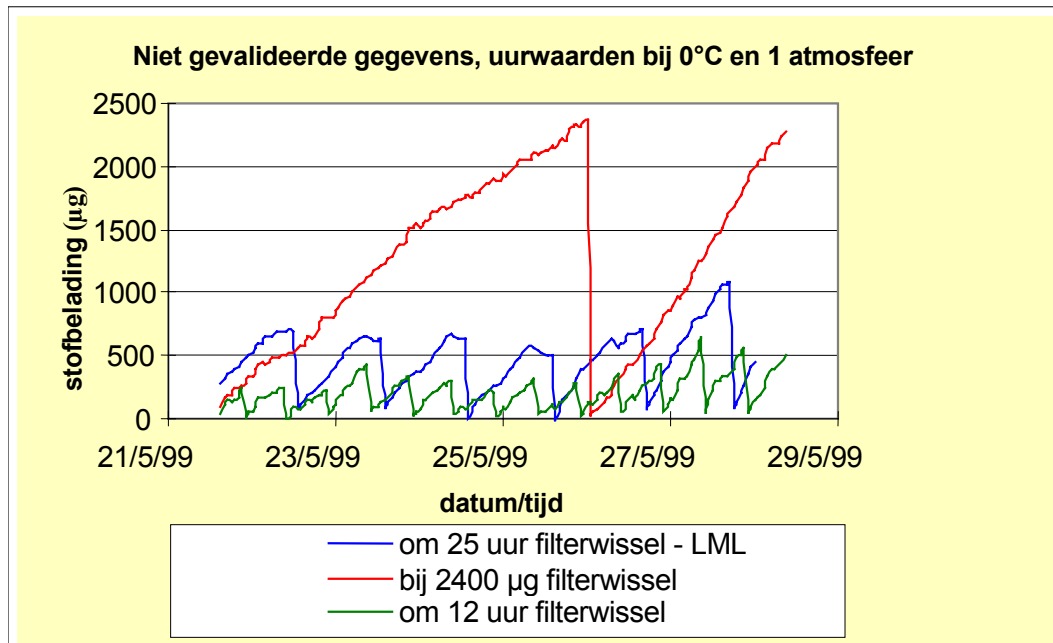
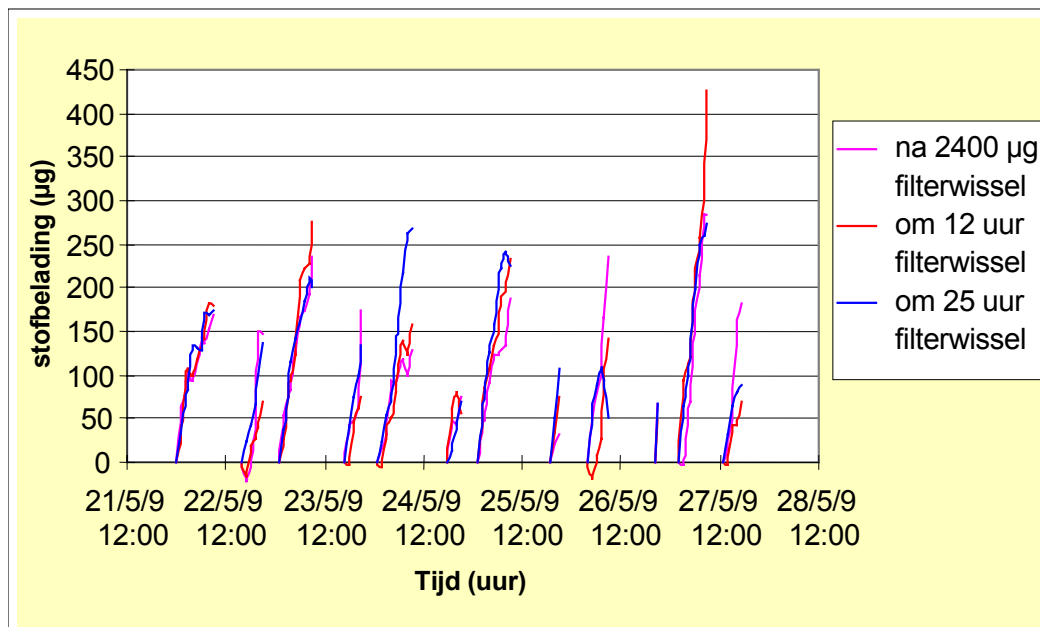


Foto 4 Verwarmingsmantel, zoals opgenomen in het Landelijke Meetnet Luchtkwaliteit

BIJLAGE 5



Figuur 6 Stofbelading bij verschillende instellingen van het aantal filterwissels



Figuur 7 Stofbelading vanaf nul na weglaten van eerste drie uur

Bijlage 6



Foto 5 Opstelling in Portakabin (voor: SD18, achter: monitor LML)

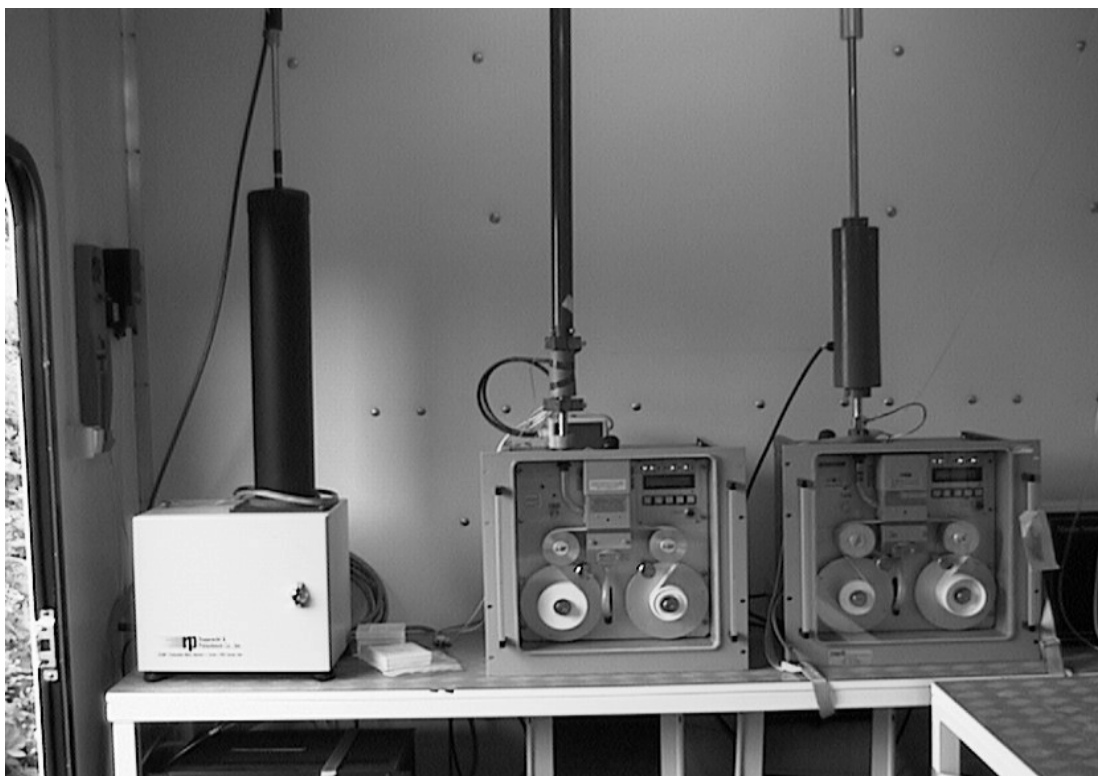


Foto 6 Opstelling in de meetwagen te Biest-Houtakker (van links naar rechts: TEOM, SD22 met lange verwarming, SD24 met korte verwarming).

BIJLAGE 7



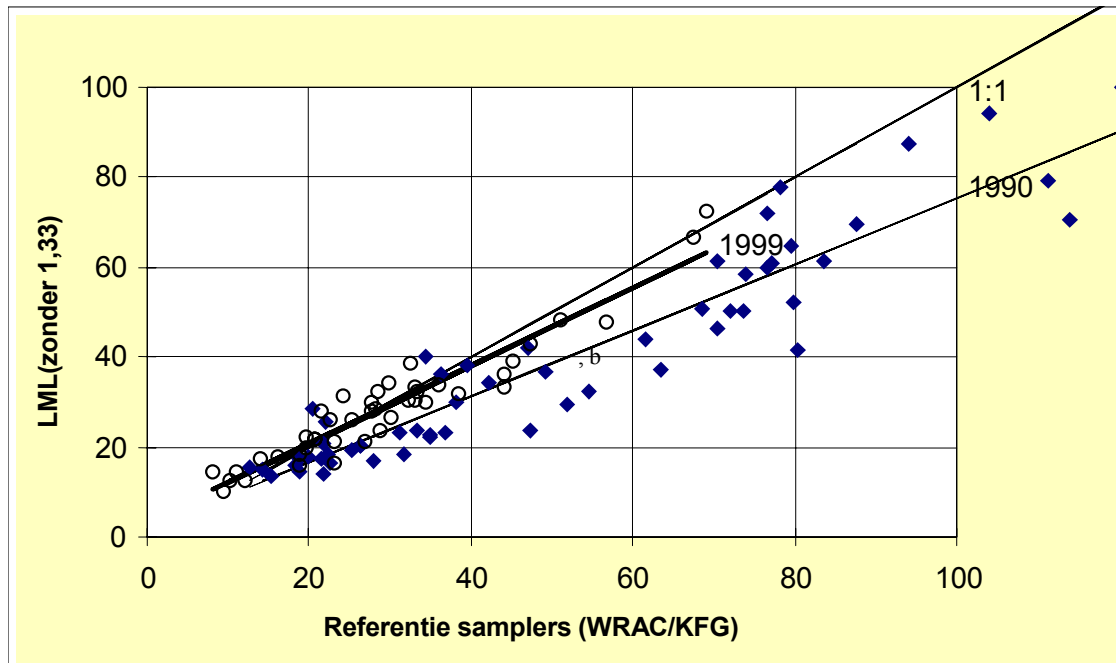
Foto 7 Positie van de locaties van monstername-inlaten te Biest-Houtakker

BIJLAGE 8



Foto 8 De omgeving bij de meetwagen

BIJLAGE 9



Figuur 8 Vergelijk tussen PM_{10} -waarden gemeten met de β -stofmonitor in 1990 bij IJmuiden en Bilthoven in 1999 bij Biest-Houtakker

Bijlage 10

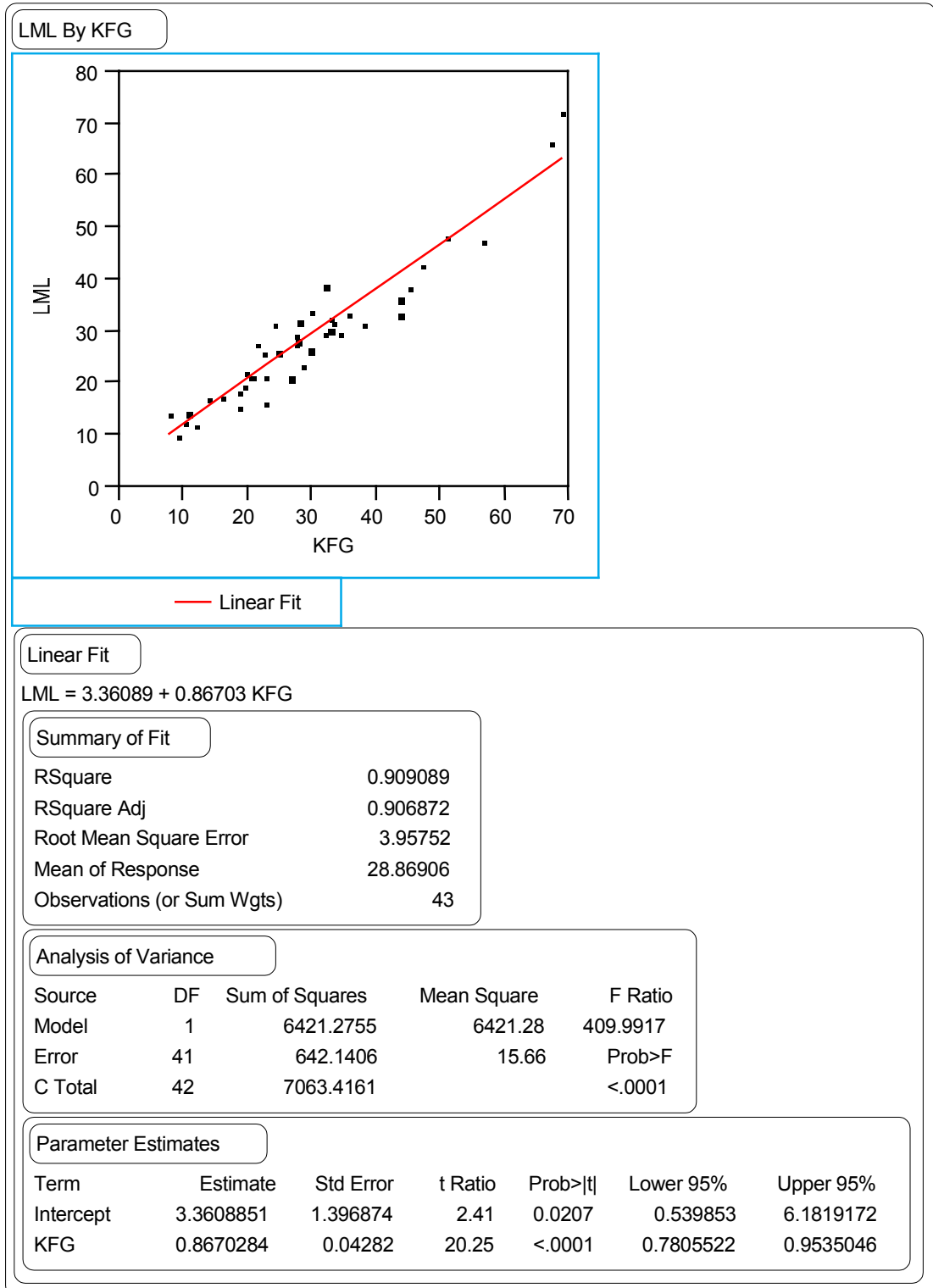
Tabel 6 Resultaten meetcampagne te Biest-Houtakker februari t/m mei 1999

datum/tijd	PM ₁₀ (µg/m ³) - KFG	PM ₁₀ (µg/m ³) - LML gecorrigeer rd	PM ₁₀ (µg/m ³) - LML ongecorrigeer d	PM ₁₀ (µg/m ³) - β-stof SD18	PM ₁₀ (µg/m ³) - β-stof SD22	PM ₁₀ (µg/m ³) - β-stof SD24	PM ₁₀ (µg/m ³) - TEOM	T (°C)	RH (%)	NH ₃ (µg/m ³)
3/2/99 0:00	45.28	51.83	38.97	x	27.37	32.65	31.93	5.97	88.39	31.26
6/2/99 0:00	10.34	17.00	12.78	x	7.96	9.36	10.82	3.42	80.48	6.54
12/2/99 0:00	69.04	96.68	72.69	x	32.40	63.20	42.74	-4.48	81.89	19.63
16/2/99 0:00	13.98	23.07	17.35	x	14.91	10.95	15.84	3.75	71.89	27.57
18/2/99 0:00	33.08	44.03	33.11	x	15.49	35.02	26.41	6.36	88.61	24.31
19/2/99 14:00	23.01	22.13	16.64	x	13.78	13.28	12.53	8.45	92.58	9.47
20/2/99 0:00	23.01	28.55	21.47	x	15.68	17.00	16.90	5.02	88.46	0.52
22/2/99 0:00	9.50	13.65	10.26	x	7.07	6.33	9.49	3.38	91.67	2.20
24/2/99 0:00	19.75	29.67	22.31	x	13.43	18.13	21.26	0.24	89.88	22.18
1/3/99 0:00	16.04	23.56	17.71	x	16.89	12.89	0.00	10.61	90.75	24.28
3/3/99 10:00	8.11	19.20	14.44	x	6.25	11.80	0.00	7.87	76.24	5.62
5/3/99 14:00	22.63	34.72	26.11	x	17.94	13.01	14.75	4.67	87.78	2.20
8/3/99 15:00	18.91	25.82	18.53	x	16.23	11.65	13.79	5.45	86.21	22.18
10/3/99 8:00	24.15	41.94	31.53	x	21.51	18.40	23.74	2.41	88.18	24.28
13/3/99 3:00	38.34	42.12	31.67	x	26.32	23.10	25.70	11.86	74.94	20.94
15/3/99 17:00	35.97	45.27	34.04	x	24.96	24.15	29.06	6.77	75.96	55.90
18/3/99 0:00	56.76	63.46	47.72	x	32.81	34.09	40.97	7.65	78.86	47.62
19/3/99 8:00	21.62	37.17	27.94	x	24.87	19.66	29.04	6.07	75.50	26.73
25/3/99 0:00	29.91	45.56	34.26	x	k	k	25.17	10.14	75.10	14.70
27/3/99 0:00	28.70	31.36	23.58	x	k	k	20.12	8.65	75.50	15.45
30/3/99 0:00	51.15	64.53	48.52	x	k	k	32.37	13.39	66.33	28.77
1/4/99 0:00	67.55	88.95	66.88	x	k	k	71.38	14.01	58.62	17.34
4/4/99 0:00	33.45	42.93	32.28	x	k	k	24.95	12.06	85.08	11.39
7/4/99 0:00	19.57	26.42	19.86	x	k	k	22.50	10.51	81.08	1.06
8/4/99 19:00	47.24	57.08	42.92	x	k	k	27.03	9.25	82.65	18.67
12/4/99 23:00	12.11	16.56	12.45	x	k	k	v	7.28	78.82	7.44
15/4/99 0:00	20.59	28.83	21.68	x	k	k	v	5.42	76.53	0.45
17/4/99 2:00	27.67	39.52	29.71	28.77	k	k	v	v	v	36.04
20/4/99 5:00	27.70	36.99	27.81	25.20	k	k	v	11.11	68.42	11.39
22/4/99 7:00	18.75	21.04	15.82	17.39	k	k	16.06	10.34	84.69	18.06
24/4/99 11:00	20.78	20.78	28.96	k	31.02	20.23	18.98	18.36	80.96	16.54
27/4/99 14:00	34.46	39.70	29.85	k	30.98	26.67	27.97	13.88	69.81	30.68
29/4/99 16:00	32.26	43.18	30.25	k	32.07	23.69	27.33	v	v	33.57
3/5/99 20:00	44.07	44.58	33.52	34.11	32.66	35.22	33.35	v	v	v
7/5/99 20:00	32.60	51.72	38.89	28.49	32.53	24.56	25.31	16.18	76.33	7.07
13/5/99 15:00	25.15	34.89	26.23	v	21.75	21.59	21.19	12.52	79.70	19.82
17/5/99 19:00	26.93	27.99	21.05	v	21.84	22.40	36.97	15.58	49.20	6.53
19/5/99 20:00	33.17	40.37	30.36	v	23.74	24.42	30.50	17.13	77.19	10.80
22/5/99 15:00	28.18	37.70	28.35	32.48	21.47	27.15	28.00	13.22	68.00	14.12
25/5/99 19:00	28.45	43.00	32.33	35.10	28.09	27.15	31.06	13.1	71.7	8.8
29/5/99 1:00	44.07	48.33	36.34	67.40	51.37	42.55	44.62	19.6	73	18.8
4/6/99 15:00	10.98	19.43	14.61	12.58	16.27	9.18	12.79	13.3	82	6.2
9/6/99 14:00	30.06	35.61	26.78	19.38	24.50	v	23.52	13.7	73	11.8

x niet bemonsteren
v validatie van gegevens
k onzekere kalibratie

blauw: geen verwarming
paars: instelling op 50°C
rood: instelling op 80°C

Bijlage 11 Jumpfile



Bijlage 12 Verzendlijst

1. Ir. J. van der Vlist, VROM
2. Mw. Mr. C.M. Zwartepoorte, VROM
3. Dr. K. Krijgsheld, VROM
4. Ir. J.A. Herremans, VROM
5. Ir. A. Blom, VROM
6. Directie Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu
7. Hoofd Voorlichting en Public Relations RIVM
8. Dr. Ir. D. van Lith, hLLO
9. Ir. H.S.M.A Diederens, LLO
10. Ir. R.A.W. Albers, LLO
11. Dr. A. Opperhuizen, LEO
12. Dr. Ir. E. Buringh, LEO
13. Bureau Rapportenregistratie
14. Bibliotheek RIVM
15. Depot van Nederlandse Publikaties en Nederlandse Bibliografie
16. Bibliotheek LLO

17-20 Auteurs

21-44 Bureau Rapportenbeheer

45-100 Reserve exemplaren