

RIVM rapport 650010025/2002

**Vergelijkende PM₁₀-metingen in Nederland
deel C: Stedelijke omgeving**

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

Abstract

The PM₁₀-concentrations occurring in areas covered by the National Air Quality Monitoring Network in the Netherlands were 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 the measured PM₁₀ concentrations have been multiplied by 1.33. The origin of this multiplying factor was investigated and reported in two previous studies in the laboratory and in an ambient field study at an agricultural site. The third study was performed at a measuring site in an urban area with considerable traffic.

PM₁₀ measurements were taken using two identical β -attenuation monitors and a TEOM. Several instruments identifying carbonaceous aerosol were operated as well. The results from this site show that evaporation and humidity need to be corrected. The study demonstrated that instead of being a constant factor, the correction will depend on the composition of the aerosol.

Inhoud

Samenvatting 4

1. Inleiding 5

2. Meetmethoden 6

- 2.1 Het Klein Filter Gerät 6
- 2.2 De β -stofmonitor 6
- 2.3 De TEOM 7
- 2.4 Zwarde rook: de Aethalometer 7
- 2.5 De kooldeeltjes monitor 8
- 2.6 Data acquisitie 8

3. De metingen 9

4. Resultaten 11

5. Discussie 23

6. Conclusies 27

Literatuur 28

Bijlage 1 Verzendlijst 29

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. Dit onderzoek is een vervolg op eerdere studies naar de oorzaak van een correctie factor op de gemeten PM₁₀-concentratie in het Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit. Na een eerdere studie in een omgeving waar veel ammoniumaërosol verwacht was, is er nu onderzoek verricht in een stedelijke omgeving met veel verkeersemisies. De β -stofmonitor zoals die gebruikt wordt in het LML is vergeleken met een PM₁₀-referentiemethode (Klein Filter Gerät KFG). De vergelijking van de β -stofmonitor met deze referentie valt in stedelijk gebied anders uit dan in agrarisch gebied. Voor de TEOM die ter vergelijking meegenomen is, is het verschil niet duidelijk. De oorsprong van de correctiefactor (b)lijkt in causaal verband te staan met de samenstelling van het aërosol.

1. Inleiding

Fijn stof wordt in Nederland in het Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit (LML) gemeten met FAG-Eberline FH62I-N β -stofmonitoren.

Uit vergelijkend onderzoek tussen de β -stofmonitor en referentiemethode voor PM₁₀ (Van der Meulen, 1990) blijkt dat de β -stofmonitor een onderschatting geeft van ongeveer 25%. De betreffende metingen zijn verricht op twee verschillende plaatsen in Nederland (IJmuiden en Bilthoven) tijdens de zomer van 1990. Sindsdien worden alle gemeten PM₁₀-concentraties vermenigvuldigd met een correctiefactor van 1,33.

Dit rapport is onderdeel van een onderzoek om een verklaring te vinden voor voornoemde correctiefactor zoals die wordt toegepast op de PM₁₀-metingen in LML.

In twee rapporten uit deze serie (Van Arkel, 2002) wordt uitgebreid aandacht geschonken aan laboratorium testen (deel A) en veldtesten in een agrarische omgeving (deel B) om deze factor te verklaren.

In het laboratorium is uitgezocht hoe de monitoren reageren op vocht en ammoniumaërosol. De eerste veldtesten beschrijven metingen van de β -stofmonitor ten opzichte van een PM₁₀-referentiemethode (Klein Filter Gerät KFG). De veldtest heeft plaats gevonden in Biest-Houtakker waar door het grote aantal (zeer nabije) varkensboerderijen, een hoge ammoniumaërosol concentratie verwacht wordt. Uit de metingen bleek dat de monitoren weliswaar de concentratie onderschatte, maar dat een correctiefactor van 1,15 voldoende zou zijn.

De verklaring voor deze onderschatting wordt vooral gezocht in de verwarmde aanzuigleiding, waarin een deel van het vluchtige ammoniumnitraat zou verdampen. In genoemde meetcampagne van deel B uit deze serie is de β -stofmonitor met verschillende verwarmingen bedreven om één-en-ander verder uit te zoeken.

In dit rapport (deel C uit de serie) is de aandacht gericht op metingen verricht in een stedelijke omgeving (i.p.v. een agrarische). Wederom is een meettrailer voorzien van een aantal β -stofmonitoren, een TEOM en een KFG PM₁₀-referentieinstrument. Alhoewel de TEOM niet in gebruik is in LML, wordt TEOM wel meegenomen in dit onderzoek. Immers, dit instrument wordt veel toegepast in andere meetnetten (binnen- en buitenland). Daarnaast worden voor kort lopende projecten regelmatig TEOM's ingezet. De TEOM voert de daadwerkelijke massa (c.q.) concentratiebepaling uit bij een effectieve temperatuur van 50°C op het stoffilter, en zou dus veel informatie kunnen verschaffen over het verdampen van het aërosol.

De meettrailer is op het terrein van de Kromhoutkazerne in Utrecht geplaatst. Deze kazerne ligt aan de oostkant van Utrecht met een aantal drukke verkeerswegen in de nabijheid. Op het kazerneterrein rijden veel vrachtwagens. De monitoren zijn continu bedreven en er zijn zoveel mogelijk filters bemonsterd met het KFG. Daarnaast zijn er metingen verricht om meer inzicht te krijgen in de samenstelling van het aërosol. In stedelijke gebieden bestaat het aërosol voor een groot deel uit koolstof. Met een Aethalometer is de zwarting van kool in het aërosol automatisch bepaald. Ter vergelijking verschafft een R&P5400 Ambient Carbon Particulate Monitor informatie over de verhouding elementair en organisch kool in het stof.

2. Meetmethoden

Voor een uitgebreide omschrijving van de gebruikte meetmethoden wordt verwezen naar de handleidingen en deel B van deze serie (Van Arkel, 2002). Alle methoden zijn op dezelfde wijze toegepast als in Biest-Houtakker zodat de metingen goed vergeleken kunnen worden. Voor de duidelijkheid volgt hier nog een korte omschrijving.

2.1 Het Klein Filter Gerät

Het KFG is een LVS-3 van Derenda met een PM_{10} -inlaat. Het apparaat bestaat uit een geregelde pomp, een tijdschakelaar en een PM_{10} -kop met daarin het filter.

De PM_{10} -inlaat is een aanzuigkop met een aantal ‘acceleration nozzles’ die door middel van impactie op een ingevette plaat deeltjes groter dan $10 \mu m$ afvangt. De inlaatkop wordt compleet verwijderd en mee naar binnen genomen om het filter te wisselen. De filters worden voor en na bemonstering gewogen in een weegkamer bij $23^\circ C$ en 54% relatieve vochtigheid. Het filter wordt voor weging minstens 24 uur in de weegkamer gelegd om te acclimatiseren. Standaard monstertijd is 24 uur bij een flow van $2,3 \text{ Nm}^3/\text{uur}$. Voor de flowregeling wordt de buitenlucht temperatuur bij de inlaat gemeten.

De inlaat wordt na iedere meting gecontroleerd, omdat kleine spinnetjes zich met grote regelmaat in de acceleration nozzles huisvesten. De impactie plaat wordt na 10 meetdagen gereinigd of eerder als insecten daartoe aanleiding geven.

2.2 De β -stofmonitor

De β -stofmonitoren zijn van het type FAG-Eberline FH62I-N.

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 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-uurgemiddelde).

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 ca 30 cm, met standaard instelling van $50^\circ C$.

In dit onderzoek is gebruik gemaakt van een drietal β -stofmonitoren.

Omdat voorgaand onderzoek ook al veel informatie verschaft heeft over de invloed van verschillende inlaatverwarmingen, is dat op deze meetlocatie ook enige tijd voortgezet.

Het grootste deel van de tijd echter hebben twee monitoren volledig in duplo gemeten.

Daarbij zijn alle instellingen gelijk aan die in LML gezet, met name zijn de monitoren dus voorzien van een korte inlaatverwarming van $50^\circ C$.

Na 25 uur of als de maximale filterbelading bereikt is, vindt er automatisch een filterwissel plaats. Het eerste uur na filterwissel wordt niet meegenomen, omdat daarin vaak grote

afwijkingen worden geconstateerd. Het meetbereik van de monitor is $1000 \mu\text{g}/\text{m}^3$. De maximale filter belading is $2400 \mu\text{g}$.

De gevoeligheid van de monitoren is 3-maandelijks gecontroleerd met behulp van kalibratiefolies. Dit heeft niet tot aanpassingen geleid.

De flowregeling vindt plaats met een meetflens op basis van de temperatuur in de meetkamer in Nm^3/uur . De flows zijn gecontroleerd met een zeepvliesmeter; hierbij zijn geen afwijkingen gevonden.

Na 2 maanden werd overgegaan op een twee wekelijkse reiniging van de PM_{10} -inlaat. De nadruk ligt hierbij op de impactie plaat en de nozzle. De impactie plaat wordt niet ingeget. Anders dan bij het KFG zijn hier geen spinnen aangetroffen. Kennelijk komen die spinnen het KFG mogelijk pas binnen als de monstername beëindigd is.

2.3 De TEOM

Een Tapered Element Oscilating Microbalance (TEOM model 1400a) is ook in dit onderzoek meegenomen. In dit apparaat wordt stof opgevangen op een oscillerend filter. De verandering van de eigenfrequentie is een maat voor de belading van het filter. Om geen last te hebben van vocht en om voor een stabiele frequentie meting te zorgen is dit apparaat altijd bedreven op 50°C .

De TEOM is voorzien van dezelfde S-A 246b PM_{10} -inlaat als de andere monitoren en is ook qua reiniging gelijk behandeld (zie 2.2). De inlaatflow bedraagt $16,7 \text{ l}/\text{min}$ (i.v.m. juiste voorafscleiding van PM_{10}); vervolgens wordt hiervan $3 \text{ l}/\text{min}$ gebruikt voor de meting.

Flowcontrole vindt plaats met behulp van massflowcontrollers.

De filters worden gewisseld als de belading die het apparaat zelf berekent, boven de 80% komt. Gemiddeld gaat een filter 20 dagen mee.

2.4 Zwarte rook: de Aethalometer

De Aethalometer (Magee Scientific AE-10) is een automatische zwarte-koolmeting. Er wordt hier ook wel gesproken van zwarte rook aangezien de zwarte-rookconcentratie in Nederland eigenlijk geheel wordt bepaald door de zwarting door koolstof. De Aethalometer heeft een filter waarop stof wordt verzameld. Hierbij wordt iedere vijf minuten de verzwakking van wit licht (gloeilamp) door de filterspot gemeten. Ten opzichte van de vorige meting wordt dan een 5 minuutgemiddelde 'BlackCarbon' concentratie in ng/m^3 berekend. De filterspot wordt ongeveer 10 uur bemonsterd en als een verzwakking van 75 % ten opzichte van de schone filterband bereikt is, wordt het filter automatisch gewisseld.

Ook in het LML wordt zwarte rook gemeten. De methode die in het LML gebruikt wordt, is hierbij wezenlijk anders. Waar in het LML gebruik maakt van uitdoving van gereflecteerd licht (reflectiemethode), meet de Aethalometer het licht dat door het filter komt (transmissiemethode). In dit verslag wordt van beide methoden de invloed bekeken op de correctiefactor KFG/ β -stofmonitor. Hierbij moet worden opgemerkt dat de Aethalometer

heeft meegedraaid tijdens de veldexperimenten in Utrecht, terwijl de LML zwarte-rookmonitor is bekeken tijdens de veldexperimenten in Biest-Houtakker (deel B).

2.5 De kooldeeltjes monitor

De RP5400 Ambient Carbon Particulate Monitor bepaalt de koolstofconcentratie in stofdeeltjes. De stofdeeltjes worden eerst verzameld op een impactor. Door deze vervolgens in twee temperatuurstappen te verhitten wordt het stof geoxideerd. Een infrarood CO₂ detector meet de uitgaande gassen en via de bypass de buitenlucht CO₂ concentratie. Het verschil is een maat voor de koolstofdeeltjesconcentratie in de buitenlucht.

Het apparaat is uitgerust met een dubbel sampling systeem, zodat één tak kan bemonsteren terwijl de andere tak geanalyseerd wordt.

Op de inlaat is een standaard PM₁₀-inlaat (S-A 246b) gemonteerd. De aanzuigflow is daarom op 16,7 l/min ingesteld. Gedurende 3 uur wordt het stof met een diameter vanaf 0,1 µm verzameld op een impactor. Dan begint de eerste afstookperiode op 340°C gedurende 780 seconde. In deze eerste afstook wordt het organisch kool (Organic Carbon) omgezet in CO₂. De CO₂-concentratie wordt vervolgens gemeten. In een volgende afstookperiode van 480 seconde 750°C en vervolgens een naverbranding wordt het elementair koolstof (Elemental Carbon) omgezet in CO₂. De mogelijkheid bestaat dat in de eerste afstook organisch kool wordt omgezet in elementair kool. Een eventuele correctie voor deze omzetting is hier niet uitgevoerd. De RP5400 representeert iedere drie uur de meetwaarden als de concentratie organisch koolstof in µg/m³ en als de concentratie totaal koolstof (OC + EC) in µg/m³.

Na het afstoken en analyseren heeft de impactor ruim de tijd om weer af te koelen.

2.6 Data acquisitie

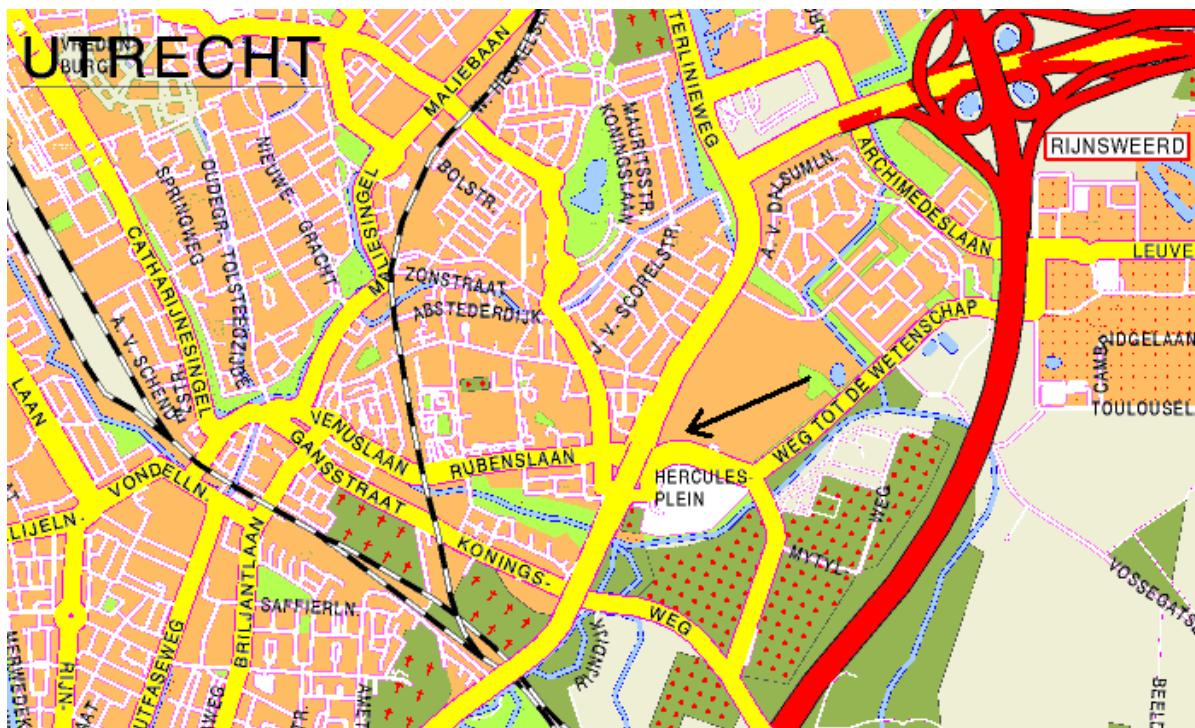
De β-stofmonitoren en de TEOM zijn via de RS232 uitgang verbonden aan het LML data-acquisitie systeem (LUCIA). Op dit systeem draait ook een programma dat in staat is meerdere kanalen tegelijk op te vangen. De monitoren bepalen zelf wanneer en welke gegevens doorgegeven worden. Er vindt geen aansturing vanuit dit systeem plaats.

Om zicht te houden op de stabiliteit is er voor gekozen om alle monitoren iedere 10 minuten een meting te laten versturen. In dit rapport worden echter uurgemiddelden of daggemiddelden gepresenteerd.

Iedere monitor heeft een eigen kanaal en alle gegevens die op dit kanaal binnen komen, gaan naar één file. Na een maand wordt een nieuwe file aangemaakt. De files kunnen naar een diskette overgehaald worden zonder dat het acquisitieprogramma onderbroken wordt.

3. De metingen

Een meettrailer met alle apparatuur is geplaatst op een parkeergelegenheid van de Kromhoutkazerne in het oosten van Utrecht (figuur 1). Naast dit terrein bevindt zich de oprit tot een redelijk drukke 4-baans verkeersweg met een maximum toegestane rijsnelheid van 70 km/uur. Een aantal buslijnen verzorgt in de nabije omgeving de verbinding met het centrum van Utrecht. Het nabij gelegen voetbalstadion geeft ook regelmatig een verhoogde verkeersintensiteit. Op het terrein rijden dagelijks vrachtwagens. Ook pal naast de meettrailer worden vrachtwagens geparkeerd (figuur 2).



Figuur 1 Locatie van de meettrailer



Figuur 2 De meettrailer zeer dicht bij vrachtverkeer

De metingen zijn verricht in de periode vanaf 2 september 1999 tot begin januari 2000: zie tabel 1.

In de meettrailer bevinden zich alle apparaten, alleen het KFG staat op het dak.

Het KFG en de β -stofmonitor SD18 zijn beide altijd met standaard instellingen gebruikt.

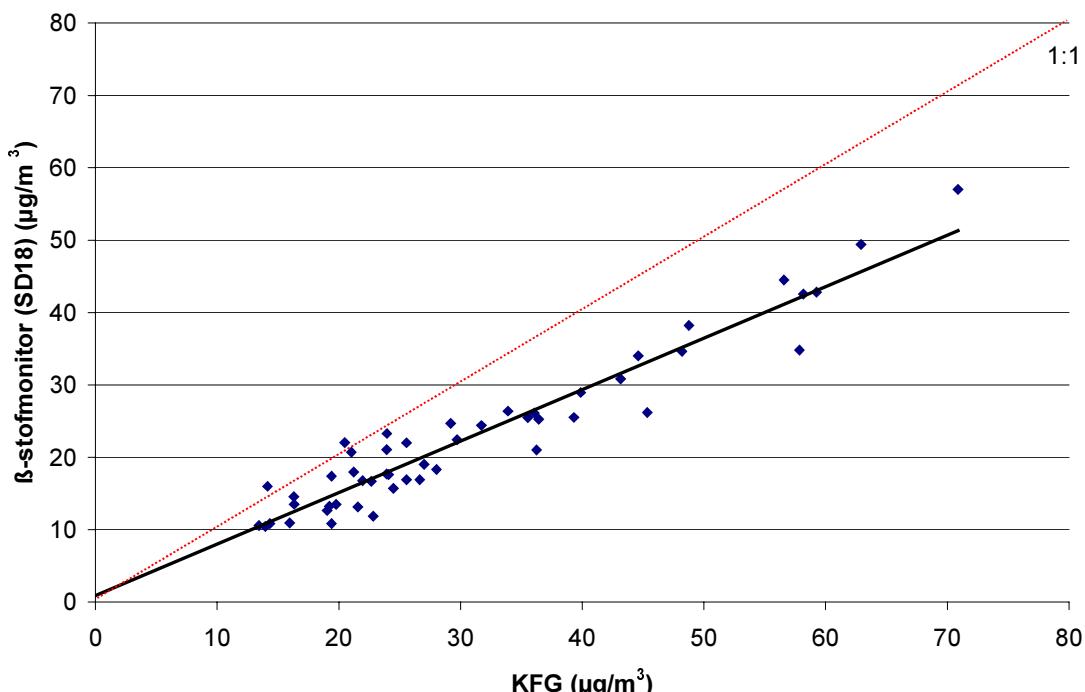
Tabel 1 Tijdschema

		β -stofmonitor SD22, lange verwarming	β -stofmonitor SD24	TEOM	Aethalometer	EC/OC
2-9-99	14-9-99	defect	50°C			-----
14-9-99	20-9-99	50°C	50°C			-----
20-9-99	4-10-99	50°C	65°C			-----
4-10-99	14-10-99	50°C	25°C			-----
14-10-99	17-10-99	beëindigd	25°C			-----
17-10-99		-----	50°C			-----
4-11-99		-----	50°C		defect	-----
9-11-99		-----	50°C			start
14-11-99		-----	50°C			nieuwe lamp
13-12-99		-----	50°C	beëindigd, monitor weggehaald		
21-12-99		-----		andere monitor geplaatst (SD 13)		

4. Resultaten

Vergelijking β -stofmonitor met KFG

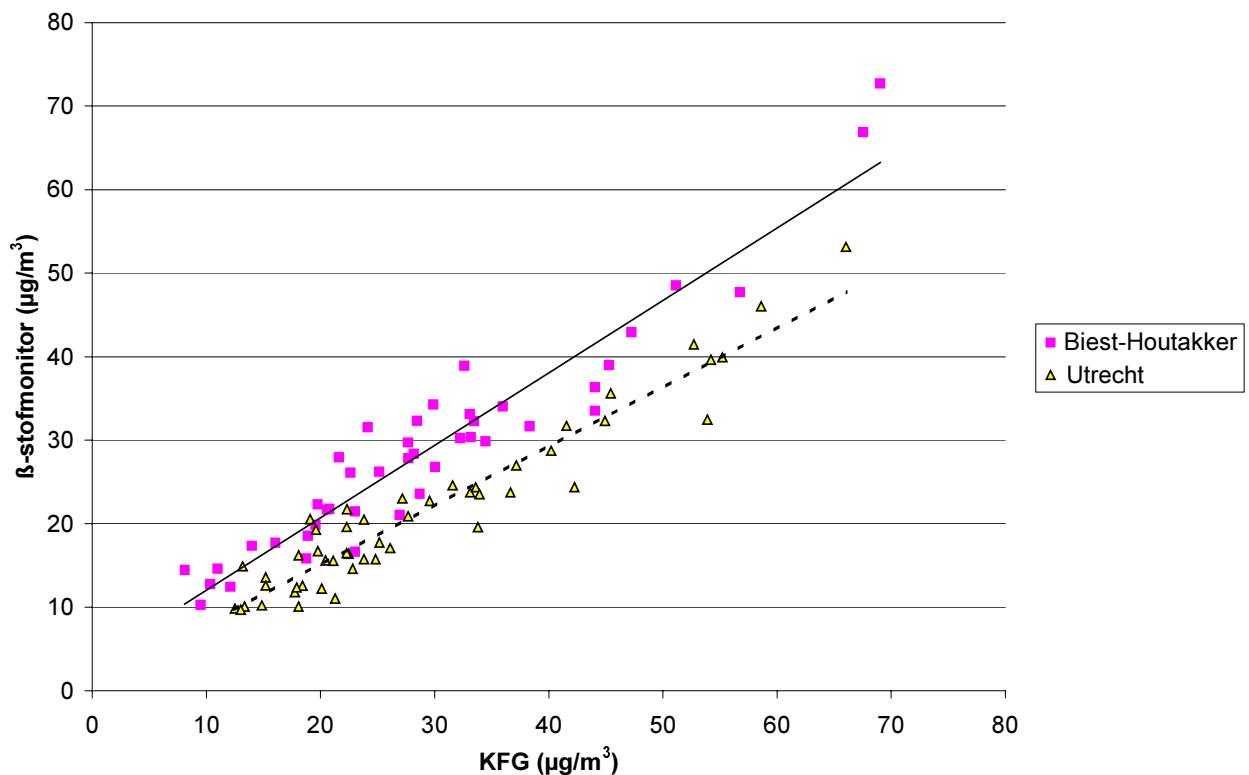
Op deze locatie in Utrecht hebben we niet de beschikking over een meetnetmonitor, maar heeft één monitor (SD18) met de standaard meetnet instellingen gedraaid. Op 60 dagen is er een KFG filter bezogen. De resultaten van deze vergelijking staan in Figuur 3.



Figuur 3 Vergelijking β -stofmonitor met KFG in een stedelijke omgeving

Een soortgelijke meting is ook in Biest-Houtakker uitgevoerd (Van Arkel, 2002), waarbij gebruik is gemaakt van de monitor aldaar. In Biest-Houtakker heeft de in Utrecht gebruikte SD18 monitor ook enige tijd meegedraaid. Hiervan zijn te weinig meetpunten om een goede lineaire regressie toe te passen vs. KFG. De resultaten van deze SD18 monitor liggen dicht bij die van het meetnet.

In figuur 4 staan de resultaten van Utrecht samen met die uit Biest-Houtakker. Om tot een vergelijking te komen zijn hierbij alle metingen, conform LML, uitgedrukt in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ bij 20°C . Alle andere grafieken staan uitgedrukt bij standaard temperatuur (0°C), zoals de gegevens uit de monitor komen.



Figuur 4 β -stofmonitor vergelijking met het KFG in Biest-Houtakker en Utrecht

Tabel 2 Lineaire regressie resultaten β -stofmonitor

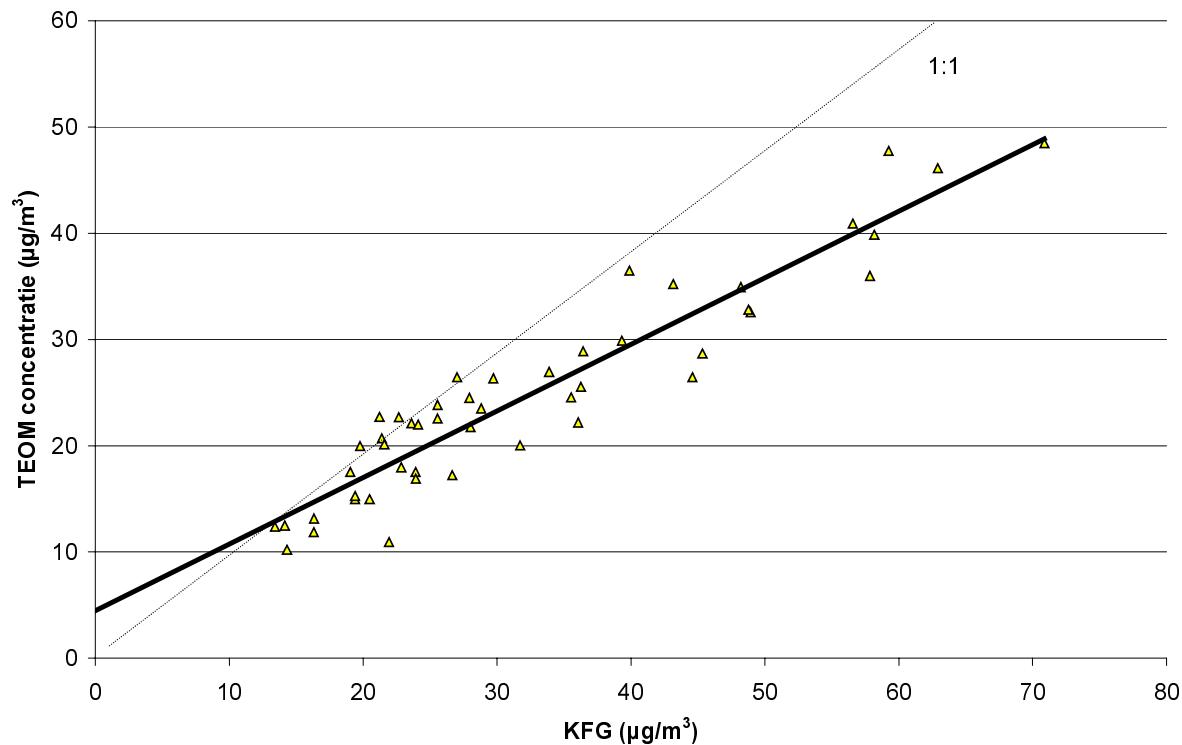
	n	Lineaire regressie	R^2
LML - monitor Biest	43	$y = 0.867x + 3.4$	0.909
SD18 - Utrecht	51	$y = 0.711x + 0.8$	0.917

De metingen in Utrecht liggen duidelijk anders dan die in Biest-Houtakker. De correctiefactor om op een 1:1 lijn uit te komen ligt hier op 1,40 tegen 1,15 in Biest-Houtakker.

De hoogste daggemiddelde waarde ligt voor beide locaties rond de $80 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Dat is aanzienlijk lager dan bij de metingen in 1990 die uiteindelijk tot de factor 1,33 geleid hebben. Bij die metingen was de hoogste waarde $160 \mu\text{g}/\text{m}^3$. De gemiddelden lagen in 1990 rond de $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ en in 1999 rond de $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

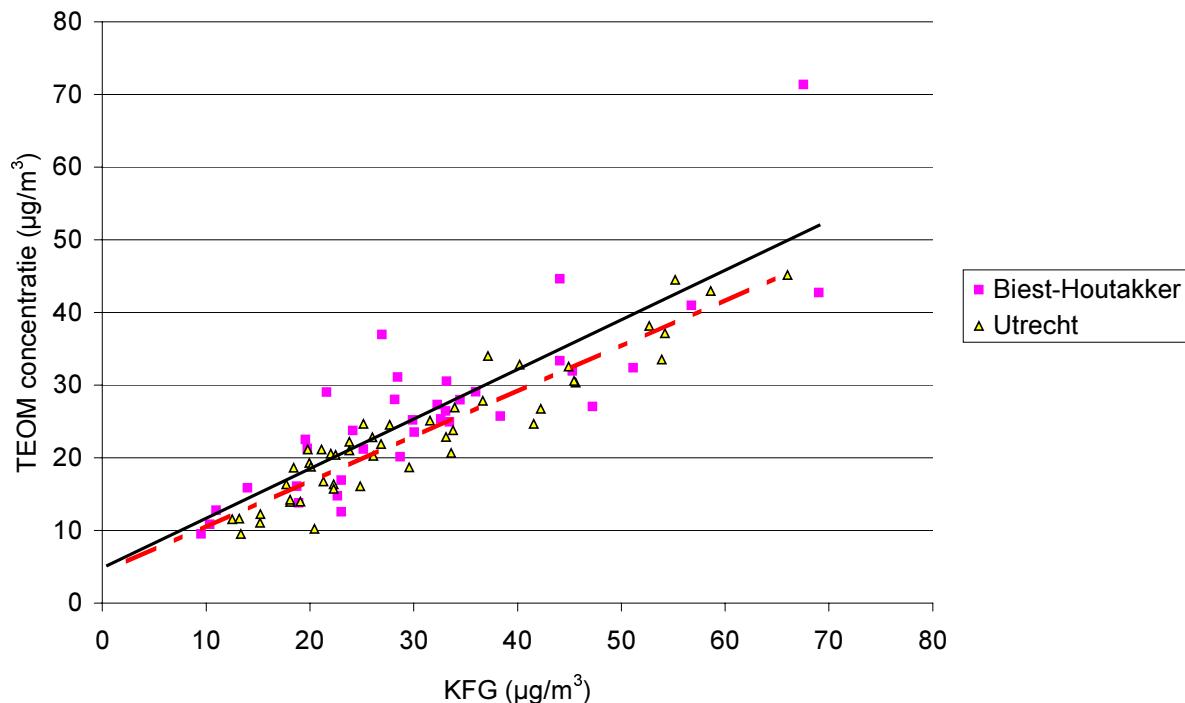
Vergelijking TEOM met KFG

Ook de TEOM is op deze locatie vergeleken met het KFG.



Figuur 5 Vergelijking van TEOM met KFG

De TEOM lijkt ook hier weer een deel van het stof te missen en daarbij heeft het instrument een hoge y-as afsnede. Ditzelfde was in Biest-Houtakker ook al geconstateerd. In figuur 6 staan de resultaten van Utrecht samen met die uit Biest. De spreiding van de metingen in Utrecht lijkt minder in Biest-Houtakker.



Figuur 6 TEOM vergelijkingen met het KFG in Utrecht en Biest-Houtakker

Tabel 3 Lineaire regressie resultaten TEOM

	n	Lineaire regressie	R ²
TEOM Biest	43	y = 0.687 x + 5	0.715
TEOM Biest, door nul		y = 0.811	0.685
TEOM Utrecht	49	y = 0.627 x + 4	0.886
TEOM Utrecht door nul		y = 0.742	0.851

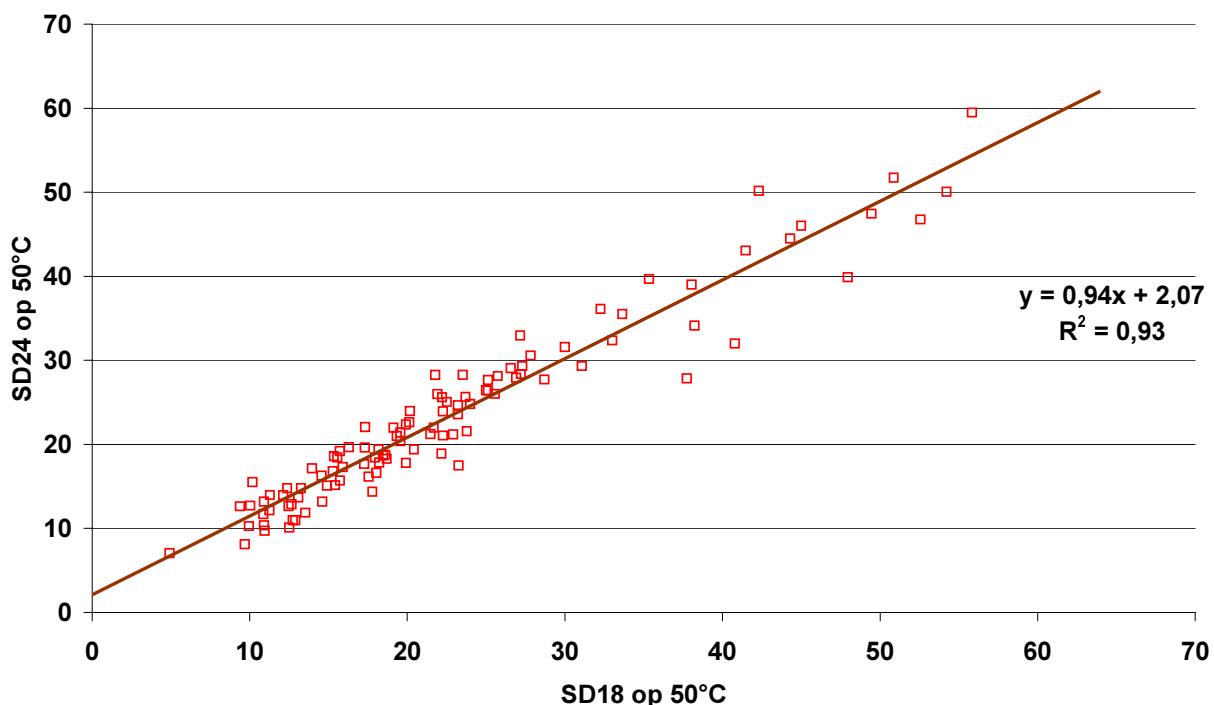
Het verschil tussen de twee locaties is bij de TEOM minder nadrukkelijk aanwezig dan bij de β -stofmonitor. De regressielijn heeft een andere helling maar met deze R² kunnen daar geen conclusies uit getrokken worden. Door de grote spreiding is het ook mogelijk om de regressielijn door nul te trekken zonder dat de R² veel slechter wordt.

Vergelijking twee β -stofmonitoren onderling

De spreiding ten opzichte van het KFG is voor zowel de β -stofmonitor als de TEOM vrij groot. Om toevalstrekkers uit te sluiten uit het gedrag van één monitor is een tweede monitor meegenomen die, afgezien van de eerste maanden, standaard meegedraaid heeft. Dit kan nu gebruikt worden om te testen of de monitor wel nauwkeurig genoeg is om aan de norm EN12341 als referentie equivalent monitor te voldoen. Het voldoen aan de norm berust op twee eisen:

- 1) de monitor moet ten opzichte van een referentie sampler vergelijkbaar zijn;
- 2) twee monitoren moeten onderling vergelijkbaar zijn.

De onderlinge vergelijking levert Figuur 7 op:



Figuur 7 Twee β -stofmonitoren daggemiddeld onderling vergeleken.

De beide monitoren leveren verschillen in het daggemiddelde op die enkele dagen groter zijn dan de $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ die in norm voorgeschreven is. De correlatie is ook net niet groot genoeg. Dit hoeft niet veroorzaakt te zijn door slechte metingen, maar zou er ook op kunnen duiden dat de lucht die aangeboden wordt aan de monitoren niet erg homogeen is. Verkeer direct naast de meettrailer heeft mogelijk invloed op het resultaat gehad.

Vergelijking verschillende inlaattemperaturen

Door de inlaattemperatuur te variëren kan er meer zicht komen op de hoeveelheid vluchige aërosol. Daartoe is er in de eerste maanden gekeken naar de verschillende temperaturen. De monitor met een lange (veel effectiever) verwarming heeft één maand meegedraaid. Per periode waarin dit experiment liep, zijn de regressies uitgerekend van daggemiddelde waarden (Tabel 4).

Tabel 4 Invloed van de inlaat verwarming in Utrecht

	Lineaire regressie t.o.v. KFG referentie	R ²	aantal dagen	Hoogst gemeten waarde µg/m ³
β geen verwarming	y = 1.185 x + 3.9	0.673	13	44
β standaard 50°C	y = 0.937 x + 2.1	0.931	91	70
β met lange 50°C	y = 0.667 x + 8.8	0.731	30	50
TEOM	y = 0.678 x + 5.3	0.826	90	70
β met 65°C	y = 0.677 x + 7.1	0.548	14	25

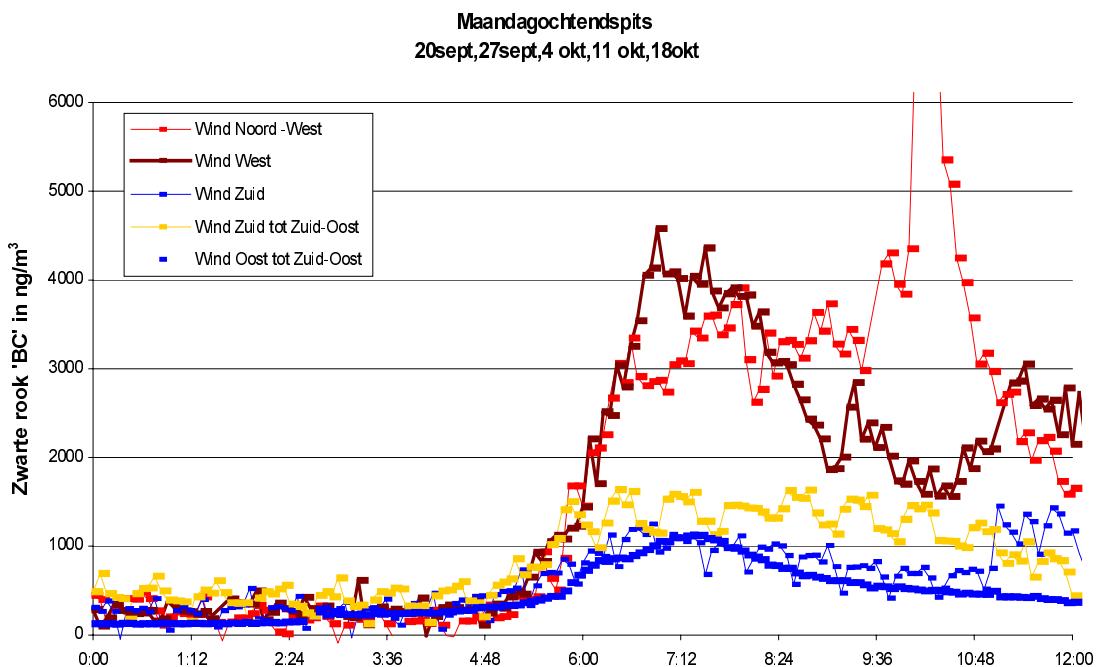
De gevonden resultaten bevestigen het beeld dat ook in Biest–Houtakker was ontstaan. Het verwarmen tot 65°C of door de lange verwarming (2 meter in plaats van 30 cm) te gebruiken op de β-stofmonitor maakt deze monitoren bijna identiek aan de TEOM. De offset is bij de β-stofmonitor alleen nog groter.

De β-stofmonitor heeft slechts korte tijd zonder verwarming gedraaid, maar deze metingen wijken duidelijk af van de rest. Dit maakt duidelijk dat verwarming wel nodig is maar ook vervelende bijverschijnselen veroorzaakt.

Er blijft een risico dat als de verwarmingen van de verschillende monitoren niet allemaal even effectief (meer) zijn, dat dit verschillen geeft op het eindresultaat.

De Aethalometer

De Aethalometer komt in deze stedelijke omgeving goed tot zijn recht. Veranderingen van de zwarte-rook-/zwarte-koolconcentratie over de dag kunnen uitstekend gevolgd worden met de middelingstijd van 5 minuten.

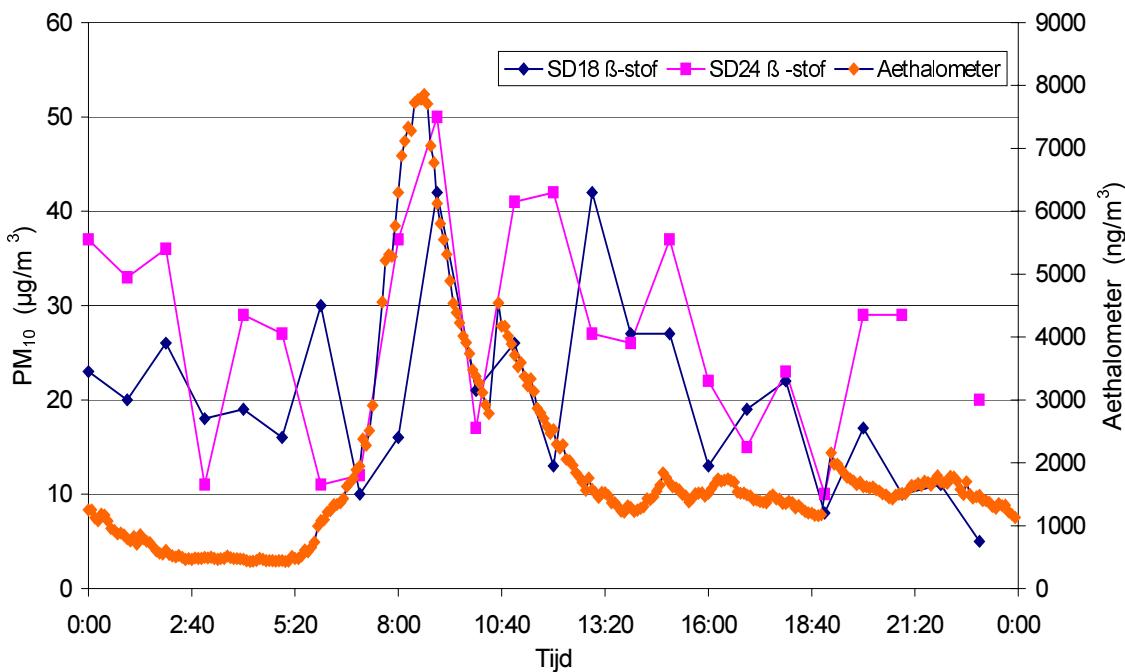


Figuur 8 Verloop zwarte rook tijdens 5 maandagochtendspitsen

Het verloop van de zwarte rook concentratie op basis van vijf-minutengemiddelen geeft duidelijk aan dat de ochtendspits op maandag al vroeg opgang komt. Bedenk dat de metingen worden gepresenteerd als functie van MET (dus wintertijd), terwijl de meetperiode in figuur 8 nog tijdens de zomertijd is.

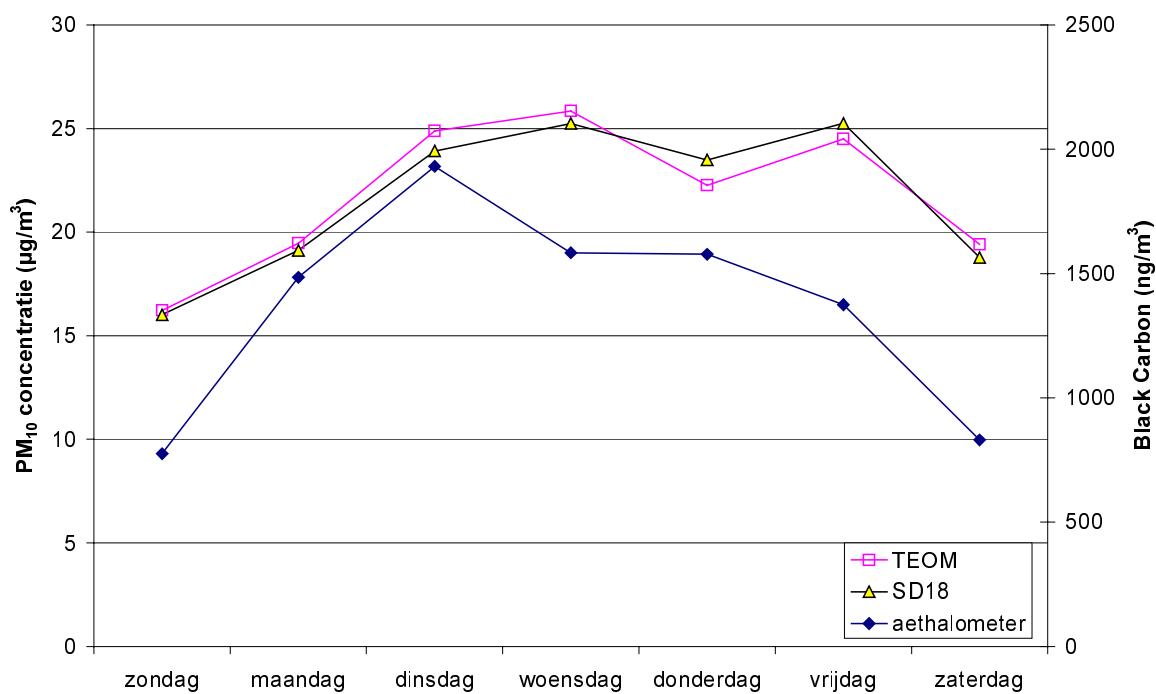
De fijnstofconcentraties worden gemeten op basis van uurgemiddelden (i.p.v. over 5 minuten). De PM_{10} geeft dan ook een minder sterk dag verloop te zien, de ochtendspits is minder herkenbaar aanwezig en verdwijnt deels in de standaard ruis (Figuur 9).

De PM_{10} -concentratie daalt 's nachts minder sterk dan de zwarte rook concentratie. Hiermee wordt duidelijk dat de Aethalometer veel meer aangeeft wat er lokaal gebeurt, terwijl PM_{10} vermoedelijk uit de hele regio afkomstig is.



Figuur 9 Concentratieverloop over een maandag (14 februari 2000)

Door over te gaan op daggemiddelen verdwijnt de invloed van de ruis. In Figuur 10 staan de metingen gemiddeld naar de dag in de week. Maar ook dan vertonen de metingen van de Aethalometer dynamiek.

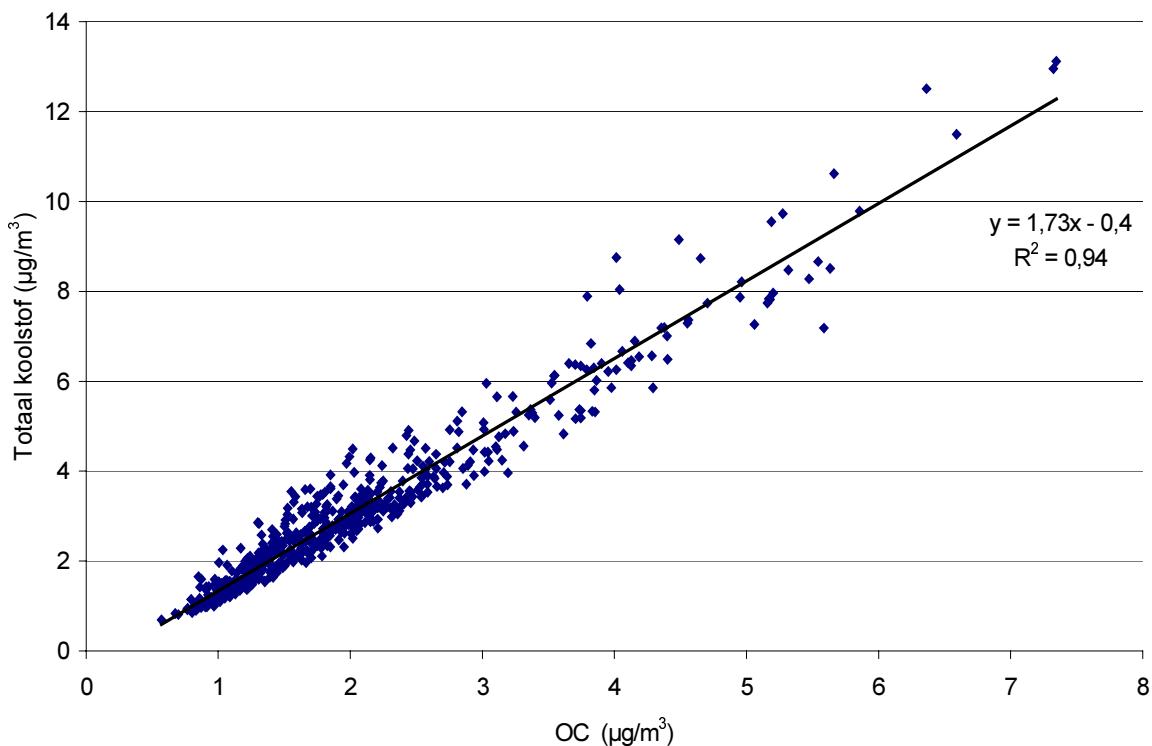


Figuur 10 Invloed dag van de week

De kooldeeltjesmonitor

De RP5400 koolstofmonitor is slechts een deel van de tijd ingezet, waardoor het aantal metingen beperkt is.

De organisch koolstofconcentratie en de totale koolstofconcentratie liggen respectievelijk in het bereik van 1 tot 7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ en van 1 tot 14 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (figuur 11). De verhouding organisch kool met totaal kool is ongeveer 1,7.



Figuur 11 De twee stappen van de carbon analyser

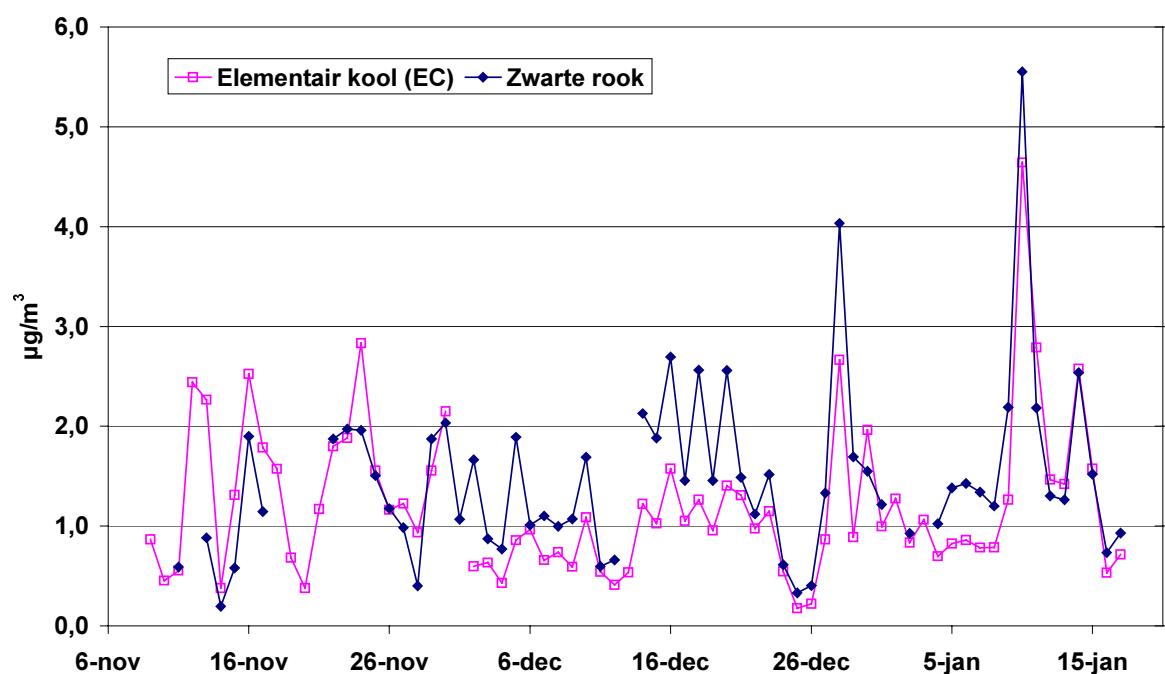
De eerste metingen van het nieuwe jaar liggen aan de onderkant van de lijn. De vuurwerk emissies bevatten naar verhouding veel organisch koolstof.

De resultaten liggen ongeveer daar waar verwacht volgens een literatuurstudie naar de bijdrage van secundair organisch materiaal (Even en Ten Brink, 2000). Voor stedelijke gebieden in Europa is de fractie organisch aërosol in PM_{10} ongeveer 20%. Er is echter nog weinig ervaring met deze automatische meting en het apparaat is niet op deze locatie gekalibreerd.

De kooldeeltjesmonitor versus Aethalometer

De relatie tussen de Aethalometer en deze elementair kool staat in Figuur 12.

De Aethalometer is er niet in geslaagd een file aan te maken voor de eerste dag van het nieuwe millennium, waardoor een aantal interessante momenten ontbreekt. Hierbij is zichtbaar dat op sommige tijdstippen de elementair-koolstofconcentratie gelijk is aan fractie zwarte kool. Dit gaat echter lang niet altijd op.

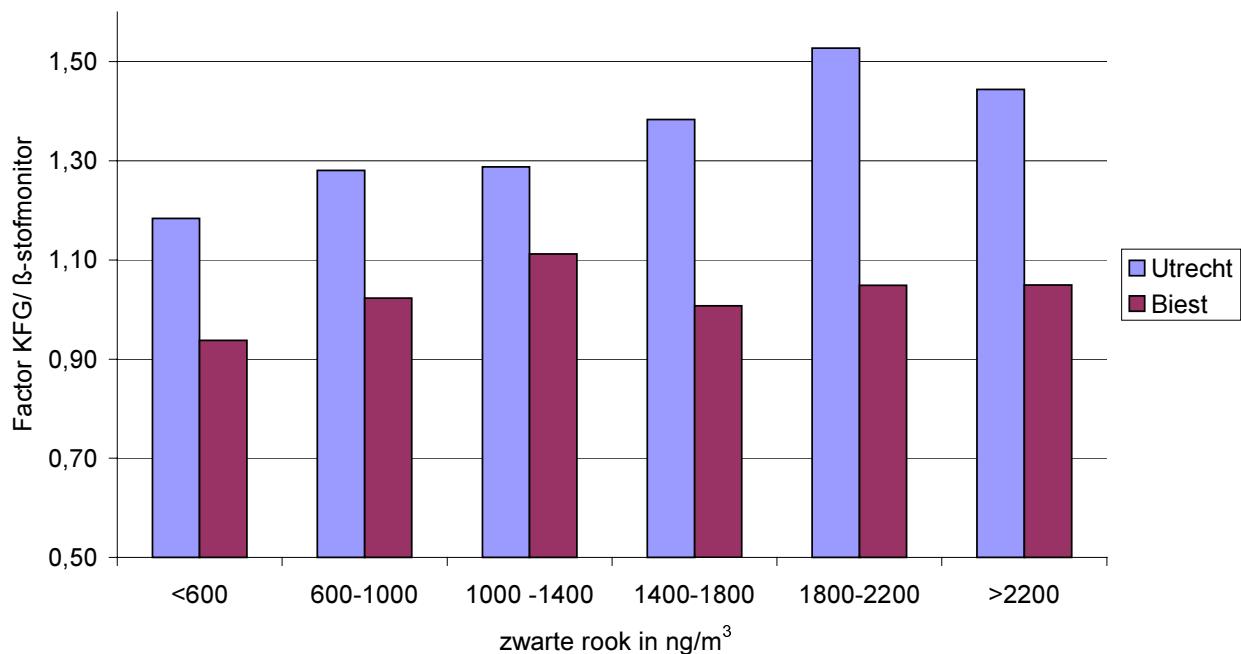


Figuur 12 Vergelijking kooldeeltjesmonitor vs. Aethalometer.

Zwarte rook afhankelijkheid van het verschil tussen de β -stofmonitor en KFG

De verschillen tussen de β -stofmonitor en het KFG lijken afhankelijk te zijn van de concentratie zwarte rook. Dwz, die verschillen lijken groter te worden met toenemende zwarte-rookconcentratie, totdat er een soort verzadiging optreedt.

Naarmate de belading groter wordt, lijkt de kans op verlies van eerder verzameld stof op het KFG af te nemen. Hetzelfde zou tegelijkertijd moeten gebeuren op de filterband van de β -stofmonitor maar mogelijk is door de aanzuigconfiguratie de laag daarop minder dik. De filterspot is kleiner maar de flow is ook een factor 2 lager. Anderzijds zou de verwarming van de β -stofmonitor al verdamping veroorzaakt hebben.

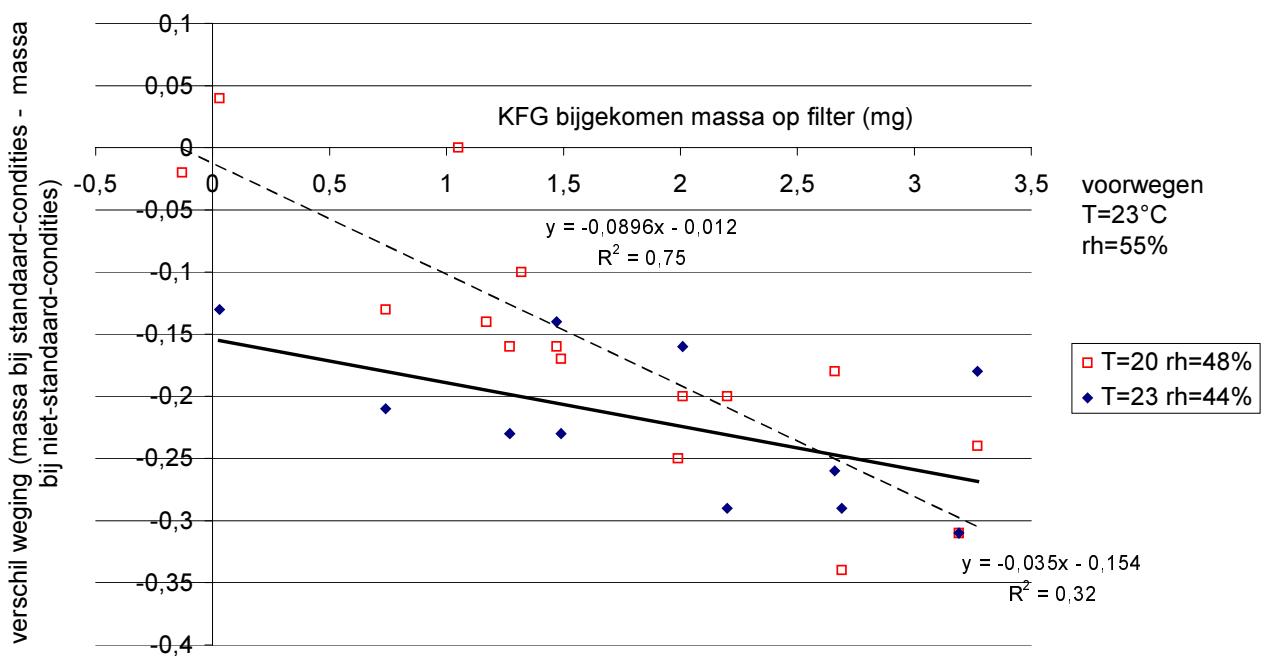


Figuur 13 Zwarte rook afhankelijkheid van de correctiefactor

De twee locaties leveren twee verschillende resultaten. Tot $1500 \text{ ng}/\text{m}^3$ zwarte rook neemt de correctiefactor KFG/ β -stof monotoon toe, waarbij voornoemde factor in Biest-Houtakker systematisch lager uitvalt dan in Utrecht (orde 30%). Dit verschil tussen beide locaties kan veroorzaakt worden door de twee verschillende zwarte rook methoden. Het kan ook veroorzaakt worden door de aanwezigheid van veel meer (witter) ammoniumaërosol in Biest-Houtakker.

Verschil in weging bij verschillende vochtigheden

Het wegen van de KFG filters geschieft in principe bij vaste temperatuur en relatieve vochtigheid. Aangezien de techniek het wel eens af laat weten, blijken er ook enkele wegingen gedaan te zijn bij andere vochtigheden. De filters zijn dus voorgewogen bij de standaard instelling maar meerdere malen nagewogen bij verschillende omstandigheden. Dit levert een resultaat (Figuur 14) op, waarbij zichtbaar wordt dat de mate van vervuiling van het filter van invloed is op de vochtopname of -afgifte bij acclimatisatie. Het betreft hier allemaal filters die al langere tijd in de weegkamer liggen.



Figuur 14 Nawegen van de KFG filters bij verschillende vochtigheden.

Op de x-as staat het verschil in voor- en nawegen, in feite dus de daggemiddelde PM_{10} -concentratie. Op de y-as staat het verschil tussen de massa bij weging onder niet-standaard conditie vs. de standaard conditie.

Een bezogen filter lijkt echter meer vocht vast te houden naarmate de vervuiling groter is. Bij het nawegen bij verschillende vochtigheden blijkt dat het meest vervuilde filter ook de grootste verschillen geeft.

5. Discussie

De verschillen tussen de β -stofmonitor en de referentiemethode die gevonden zijn op de twee locaties (Figuur 4), lijken te duiden op een mogelijke invloed van de samenstelling van het stof op de concentratiemeting. Een verklaring is gezocht door nog gedetailleerder naar de monsterdagen te kijken. Hiertoe zijn naast de stofconcentraties van KFG, β -stof en TEOM ook meteorologische gegevens en gasconcentraties geregistreerd. Voor de meteorologische gegevens (temperatuur, relatieve vochtigheid, windrichting, windsnelheid, straling en neerslag) is gebruik gemaakt van de gegevens van het KNMI station in de Bilt ca. 4 km noordoostelijk t.o.v. de meetlocatie. Daarnaast heeft een temperatuur en relatieve vochtigheidssensor op het dak van de meettrailer meegedraaid om te kijken of de lokale afwijkingen niet te groot waren. Voor de gasconcentraties (SO_2 , CO, NO_x en O_3) is gebruik gemaakt van LML-639 (Constant Erzijestraat). Deze locatie is aan een drukke weg midden in Utrecht ongeveer 2 km zuidwestelijk van de meettrailer. Voor SO_2 is ook gebruik gemaakt van LML-638 (Vleutenseweg), circa 7 km noord westelijk.

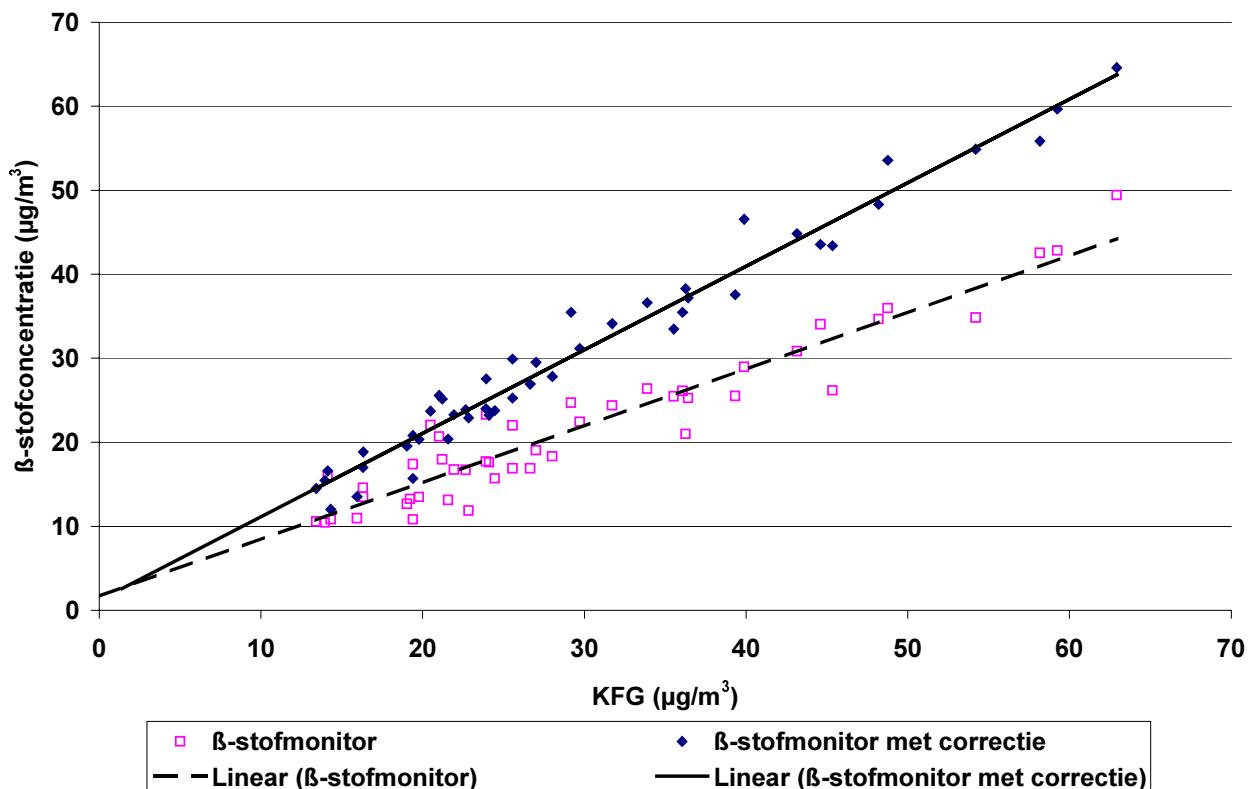
Het zoeken naar correlaties leverde verschillende relevante componenten op:

- Voor de β -stofmonitor: temperatuur, maximale windsnelheid, CO, NO_2 en SO_2 ;
- Voor de TEOM: regen, netto straling windsnelheid CO, O_3 , Aethalometer en SO_2 .

In Figuur 15 staat de gecorrigeerde β -stof concentratie die ontstaan is door te zoeken naar de beste correlatie (i.e. 1:1) met KFG. Alleen de significante componenten zijn mee genomen. Voor de meeste componenten is de minimumwaarde er als offset afgetrokken om de lijn wat binnen de perken te houden.

Tabel 5 Toegepaste correctiefactoren

Component (eenheid)	factor	offset
SO_2 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	1.4	2
CO ($10\mu\text{g}/\text{m}^3$)	0.065	34
NO_2 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	0.04	27
Windsnelheid max. (m/s)	0.15	2
Temperatuur ($^{\circ}\text{C}$)	0.1	-



Figuur 15 β -stof gecorrigeerd aan de hand van andere componenten

Tabel 6 Lineaire regressie resultaten van de gecorrigeerde lijn

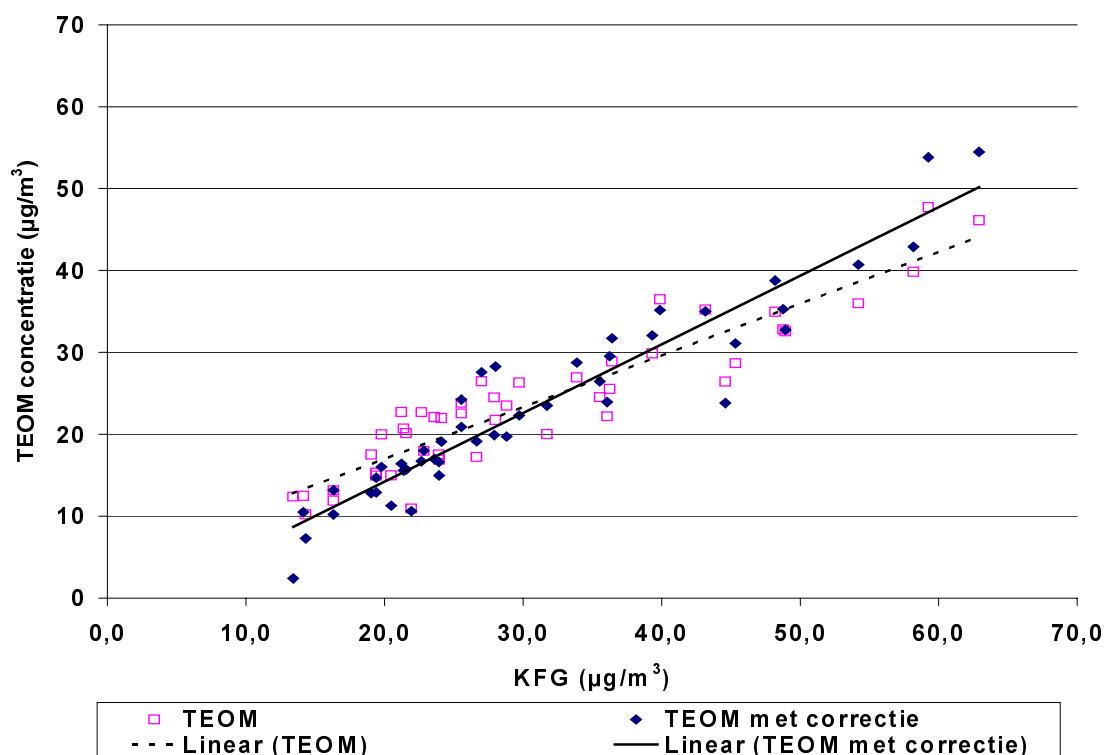
	lineaire regressie	R^2
werkelijke meting	$y = 0.678 x + 1.6$	0.907
gecorrigeerde meting	$y = 0.994 x + 1.2$	0.970

De correcties die op deze manier worden toegepast lijken indirekte correcties voor vluchtige componenten uit het verkeer (b.v. de CO-correctie). De β -stofmonitor houdt een afhankelijkheid met de temperatuur en dat zou kunnen duiden op een verkeerde flowcorrectie. De flow wordt geregeld bij monitortemperatuur in plaats van buitenluchttemperatuur. Het feit dat de maximale windsnelheid nog overgebleven is, komt door enkele najaarsstormen, waarbij de harde wind een goede PM_{10} -afscheiding gehinderd kan hebben.

Bij de correctie van de TEOM blijven veel meer componenten over die bijdragen. Hierbij is geen offset correctie toegepast, omdat de effecten per component minder groot zijn.

Tabel 7 Toegepaste correctiefactoren

Component (eenheid)	factor
SO ₂ (µg/m ³)	0.95
CO (10µg/m ³)	0.055
NO ₂ (µg/m ³)	-0.10
O ₃ (µg/m ³)	-0.075
Windsnelheid max. (m/s)	-0.3
Temperatuur (°C) >15°C	-0.05
Temperatuur (°C) <15°C	0.30
Netto straling max. (W/m ²)	-0.01
luchtdruk (mbar)	0.0006



Figuur 16 TEOM gecorrigeerd aan de hand van andere componenten

Tabel 8 Lineaire regressie resultaten van de gecorrigeerde lijn

	lineaire regressie resultaat	R^2
werkelijke meting	$y = 0.635x + 4.3$	0.864
gecorrigeerde meting	$y = 0.838x - 2.6$	0.901

Het resultaat van de correcties is weergegeven in figuur 16 en tabel 8. De correcties lijken echter weinig effect te hebben. De richtingscoëfficiënt neemt wel toe (van 0,63 naar 0,83), maar de correlatie verbetert nauwelijks. Bedenk echter dat de correlatie gedomineerd lijkt te worden door de meetpunten in het lagere concentratiebereik ($< 30 \mu\text{g}/\text{m}^3$).

Kortweg, het toepassen van de correctie zoals die gevonden is bij de β -stofmonitor, geeft voor de TEOM niet of nauwelijks enkele verbetering.

6. Conclusies

- De metingen die nu uitgevoerd zijn, geven een steeds duidelijker beeld van de problemen rond het meten van fijn stof. Zowel de laboratorium experimenten als de veldexperimenten wijzen op vervluchtingen van bepaalde componenten. Met de gegevens die beschikbaar zijn kan de juiste correctie nog niet gevonden worden. Het blijven nog indirekte aanwijzingen. Met de nitraat- en sulfaatconcentratie kan er misschien meer verklaard worden.
- Het gedrag van de β -stofmonitoren is op de stadlocatie duidelijk anders dan in de agrarische omgeving. De samenstelling van de lucht is duidelijk van invloed op het resultaat.
- De experimenten met verschillende inlaatverwarmingen tonen aan dat de verwarming niet alleen een vocht offset voorkomt, maar ook de gevoeligheid verandert.
- De meteorologische omstandigheden zijn van invloed. De PM_{10} -afscheiding is bij hoge windsnelheden onbetrouwbaar, maar dat is door de fabrikant ook al aangegeven. De temperatuur afhankelijkheid is mogelijk te corrigeren door de flow op de buitentemperatuur te regelen.
- De factor zoals die nu in het LML toegepast wordt, leidt in de stedelijke omgeving tot een onderschatting van de concentratie. Er is wel degelijk een correctie nodig om met het KFG en de β -stofmonitor hetzelfde resultaat te verkrijgen, maar dat is geen constante factor.
- De bepalingen van zwarte rook en elementair kool geven aan dat ook in stedelijke omgeving de zwarte fractie in PM_{10} geen constante is.
- Een betere relatie tussen de verschillende meetmethoden is niet mogelijk door de totaal verschillende karakters. De massabepaling bij constante temperatuur en vochtigheid kan nooit in alle omstandigheden gelijk uitkomen met de continue bemonstering.

Literatuur

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). Rapport nr. 650010 023.

Arkel FTh van (Buro Blauw), Putten EM van, Bloemen HJTh, Meulen A van der (RIVM). 2002. Vergelijkende PM₁₀-metingen in Nederland, deel B: landelijke omgeving. Bilthoven: Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM). Rapport nr. 650010 024.

Ayers GP, Keywood MD, Gras JL. 1999. TEOM vs. manual gravimetric methods for determination of PM_{2.5} aerosol mass concentrations, Atmospheric Environment: 33 3717-3721.

Bloemen HJTh, Mennen MG, Meulen A van der. 1995. Characterization of Episodic Air Pollution in Cities (CHEAP). Bilthoven, The Netherlands: National Institute of Public Health and Environmental Protection (RIVM). Report nr. 723301003.

Even A, Brink HM ten. 2000. Schatting van de bijdrage van secundair organisch materiaal aan PM₁₀. Petten: Energieonderzoek Centrum Nederland (ECN). ECN-C—00-038.

Meulen A van der, Elzakker BG van, Mark D, Zierock K-H. 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-EN12341. 1998. Norm. Luchtkwaliteit –Bepaling van de PM₁₀-fractie van zwevend stof – Referentiemethode en veldonderzoek om de referentie gelijkwaardigheid aan te tonen van meetmethoden.

TÜV. 1999. Test Rapport on the comparison of the concentration measuring instrument of airborne particulates TEOM 1400a revision B, from the Rupprecht & Patashnick Co., Inc., rapport Ref nr 5.0.1/205/90 Essen 18.02.1999 Albany/New York, by request of Rupprecht & Patashnick Co., Inc., Albany, NY 12 203, USA using the reference method in accordance with the European Standard prEN 12341.

Bijlage 1 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 Diederen, LLO
 10. Ir. R.A.W. Albers, LLO
 11. Dr. A. Opperhuizen, LEO
 12. Dr. Ir. E. Buringh, LEO
 13. Bureau Rapportenregisterie
 14. Bibliotheek RIVM
 15. Depot van Nederlandse Publikaties en Nederlandse Bibliografie
 16. Bibliotheek LLO
- 17-19 Auteurs
- 20-43 Bureau Rapportenbeheer
- 44-100 Reserve exemplaren