

RIVM rapport 680708001 / 2007

PM₁₀: Validatie en equivalentie 2006

R. Beijk, R. Hoogerbrugge, T.L. Hafkenscheid¹,
F.Th. van Arkel, G.C. Stefess, A. van der Meulen,
J.P. Wesseling, F.J. Sauter, R.A.W. Albers

Contact:
R. Beijk
RIVM
Laboratorium voor Milieumetingen
Ruben.Beijk@rivm.nl

Dit onderzoek werd verricht in opdracht en ten laste van het Directoraat-Generaal Milieubeheer, in het kader van project 680708/07, Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit.

¹ Nederlands Meetinstituut (NMI)

Rapport in het kort

PM₁₀: Validatie en equivalentie 2006

In het Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit (LML) worden op diverse locaties in Nederland fijnstof (PM₁₀) concentraties gemeten. Om de kwaliteit van deze metingen te waarborgen zijn in 2006 een tweetal grote activiteiten ondernomen.

Als eerste zijn de procedures, meetconfiguraties en instellingen in het meetnet grondig doorgelicht. De bevindingen van de doorlichting van het meetnet hebben geleid tot een hervalidatie. Het effect van deze hervalidatie op de metingen is gering, maar heeft wel geleid tot een vermindering van de meetonzekerheid.

De tweede activiteit is het uitgevoerde equivalentieonderzoek. In dit onderzoek is de gelijkwaardigheid tussen de automatische PM₁₀-metingen in het LML en de door de EU voorgeschreven referentiemethode aangetoond. Aan de hand van dit onderzoek is voor de PM₁₀-metingen een nieuwe en nauwkeurigere kalibratie bepaald zodat niet langer de interim kalibratiefactor van de EU toegepast hoeft te worden. Het aantonen van de equivalentie tussen de automatische meetmethode en de referentiemethode is volledig gebaseerd op de aanbevelingen die de Clean Air For Europe (CAFE) steering group begin 2006 heeft vastgesteld zodat Nederland geheel conform de Europese voorschriften werkt.

In het equivalentieonderzoek zijn kalibratiefuncties voor verschillende apparaattypen voor regionale en stedelijke locaties bepaald. De consequentie voor de jaargemiddelden van regionale stations na 2003, die gebruikt zijn voor de Generieke Concentraties voor Nederland (GCN-kaarten) in 2006, is een daling van minder dan 1 µg/m³.

Met de hervalidatie van meetdata en de resultaten van het equivalentieonderzoek zijn onzekerheden in de PM₁₀-metingen verkleind en voldoen de metingen aan de gestelde kwaliteitseisen.

Trefwoorden: PM₁₀, validatie, equivalentie, kalibratie, referentiemethode

Abstract

PM₁₀: Validation and equivalence 2006

In the Dutch National Air Monitoring Network (LML) particulate matter (PM₁₀) is measured at various locations across the Netherlands. In order to ensure the quality of these PM₁₀-measurements two major activities have been carried out.

Firstly, in the course of 2006 procedures, device configurations and settings in the Monitoring Network have been checked thoroughly. The observations have led to a revalidation of measurement results. The effect of this revalidation on earlier reported measurement values is minor. However, the measurement uncertainty is reduced due to the revalidation.

Secondly, an equivalence study has been carried out to determine the equivalence between automatic PM₁₀-measurements and the EU reference method. Based on this study the automatic PM₁₀-measurements in the Dutch National Air Monitoring Network have been calibrated. Hence, making use of the interim EU calibration factor is no longer needed. The demonstration of equivalence between the automatic and reference method is performed conform the recommendations of the Clean Air For Europe (CAFE) steering group.

New calibrations have been determined for both regional and urban situated sites. The consequence of this new calibration on the measurements on regional location after 2003, used for the making of the 2006 Generic Concentrations for the Netherlands (GCN-cards), is less than 1 µg/m³.

With both the revalidation of historic measurements and the results of the equivalence study, uncertainties in PM₁₀ measurements have declined and comply with required quality requirements.

Key words: PM₁₀, validation, equivalence, calibration, reference method

Inhoud

Samenvatting 5

1. Introductie 6

- 1.1 *Systematische afwijking bij automatische PM-metingen* 6
- 1.2 *Equivalentieonderzoek* 6
- 1.3 *Europese kaders* 7

2. Doorlichting meetprocedures 8

- 2.1 *Inleiding* 8
- 2.2 *Monitortypen* 8
- 2.3 *Omrekeningsinstellingen* 8
- 2.4 *Ophalen meetwaarden: analoog en digitaal verschillen* 10
- 2.5 *Referentiemethode: weegkamercondities en filtertype* 10
- 2.6 *Problemen met individuele monitoren* 10
- 2.7 *Resultaten* 11

3. Equivalentieonderzoek 12

- 3.1 *Inleiding* 12
- 3.2 *Methode* 12
- 3.3 *Invloed meteorologische condities en PM samenstelling* 13
- 3.4 *Beschikbare data voor de verschillende categorieën* 13
- 3.5 *Resultaten* 14

4. Gevolgen hervalidatie en kalibratie 16

- 4.1 *Effect op het jaargemiddelde en vergelijkende ringstudies* 16
- 4.2 *Effect op normoverschrijdingen en vergelijking model- en meetwaarden* 18
- 4.3 *Discontinuïteit op regionale locaties* 19

5. Conclusie 20

Literatuur 21

Bijlage 1 Verandering in het aantal overschrijdingen van de dagnorm in 2006 22

Bijlage 2 Verandering in jaargemiddeldeconcentratie 23

Bijlage 3 PM₁₀ concentraties: LML versus CAR/GCN 24

Bijlage 4 Berekening relatie PM₁₀-jaargemiddelde en etmaalnorm 29

Samenvatting

Om de kwaliteit van de fijnstofmetingen in het Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit te waarborgen zijn er in 2006 een tweetal extra activiteiten uitgevoerd. Procedures, meetconfiguraties en instellingen in het Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit (LML) zijn grondig doorgelicht en het aantal vergelijkende metingen is geïntensiveerd zodat een equivalentieonderzoek uitgevoerd kon worden. Met deze activiteiten is de meetonzekerheid van PM₁₀-metingen verkleind en voldoen de metingen aan de Europese kwaliteitseisen.

In de doorlichting van het meetnet zijn enkele instellingsverschillen geconstateerd bij een aantal PM₁₀-monitoren. Aan de hand van de resultaten van de doorlichting is een hervalidatie uitgevoerd waarmee geconstateerde afwijkingen zijn gecorrigeerd. Bij verdere analyse van de meetresultaten is gebleken dat een tweetal monitoren afwijkende resultaten leverden. Het gaat hierbij om een monitor die concentraties onderschat en een monitor met een wisselend luchtaanzuigdebiet. In de hervalidatie is daarom een deel van de meetresultaten daarvoor gecorrigeerd respectievelijk afgekeurd. Het effect van de gehele hervalidatie op de metingen is gering (gemiddeld minder dan 1 µg/m³) maar heeft wel geleid tot een vermindering van de meetonzekerheid.

Tot 2007 werd voor de kalibratie van de automatische PM₁₀-metingen de default (interim) Europese omrekeningsfactor van 1,3 gebruikt. Met het uitvoeren van een equivalentieonderzoek wordt equivalentie aangetoond tussen de automatische PM₁₀-metingen en de Europese referentiemethode EN12341. Het uitgevoerde equivalentie-onderzoek is volledig gebaseerd op de aanbevelingen die de CAFE steering committee begin 2006 heeft vastgesteld zodat Nederland geheel conform de Europese voorschriften werkt. Aan de hand van de resultaten van het equivalentieonderzoek is vervolgens een kalibratie voor PM₁₀-metingen in het LML uitgevoerd. In het equivalentieonderzoek zijn voor verschillende apparaattypen kalibratie-functies bepaald voor regionale en stedelijke locaties. Het effect van de kalibratie op eerder gepresenteerde meetgegevens loopt uiteen van 0 tot 5 µg/m³. Voor regionale stations na 2003, die gebruikt zijn voor het opstellen van de Generieke Concentraties in Nederland (GCN-kaarten) in 2006, bedraagt het verschil minder dan 1 µg/m³.

De resulterende meetonzekerheden liggen tussen ±16% en ±22% en voldoen daarmee aan de eis uit de EU Richtlijn 1999/30/EC ($\leq \pm 25\%$). De systematische afwijking tussen automatische- en referentiemetingen wordt bepaald door een veelvoud aan processen en factoren. In het verklaren van deze afwijking zitten nog altijd kennishiaten. Hierdoor blijft het automatisch meten van PM₁₀ complex met een relatief grote onzekerheid. Mede daardoor en vanwege de grote onzekerheid in de kalibratiebepaling bij vooral historische data op regionale locaties van voor 2004 blijft de onzekerheid voor die periode extra groot.

Onder andere om de meetonzekerheid verder te verkleinen is er een vernieuwingsslag ingezet in het Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit. Met de hervalidatie, het vervangen van de oude PM₁₀-monitoren (FH62 I-N) door het nieuwe type FH62 I-R, het optimaliseren van de weegkamer waar de referentiemetingen bepaald worden, verbeteringen in de traceerbaarheid van instellingsveranderingen en de overstap naar digitaal uitlezen van data zal de relatie tussen de automatische- en referentiemethode verder verbeteren en de onzekerheid verder verkleinen. Tevens zullen met deze overgang de afwijkingen tussen individuele monitoren sneller gedetecteerd en gecorrigeerd worden en zal de kwaliteit van de fijnstofmetingen beter gewaarborgd worden.

1. Introductie

In 2006 zijn de fijnstof (PM_{10}) metingen in het Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit (LML) nader bekeken. De procedures, meetconfiguraties en instellingen in het meetnet zijn uitvoerig doorgelicht en er is een vergelijkend onderzoek uitgevoerd. Aanleiding is de vereiste vanuit Europese afspraken om de automatische fijnstofmetingen te kalibreren door middel van een vergelijkingsstudie. In de vergelijkingsstudie wordt de equivalentie tussen automatische- en referentiemetingen bepaald. Met de nieuwe kalibratie die volgt uit deze studie kan de meetonzekerheid verkleind worden en wordt tevens meer inzicht verworven in de meetverschillen tussen verschillende monitorconfiguraties.

In deze introductie wordt het fijnstof (PM) meetprincipe kort uiteengezet en wordt toegelicht waarom er een equivalentieonderzoek is uitgevoerd. In hoofdstuk twee zal verder ingegaan worden op de doorlichting van procedures, meetconfiguraties en instellingen die van invloed zijn op de metingen. In hoofdstuk drie worden de opzet en de resultaten van het equivalentieonderzoek gepresenteerd. De consequenties van de hervalidatie en nieuwe kalibratie worden uiteengezet in hoofdstuk vier.

1.1 Systematische afwijking bij automatische PM-metingen

Bij automatische PM-metingen met een bèta-verzwakkingmonitor (zoals door het RIVM wordt ingezet) wordt buitenlucht via een verwarmde inlaatbuis langs een filter gezogen. Een verandering in stofbelading op het filter zorgt voor een verandering in de bètastraling-verzwakking. Aan de hand van deze verzwakking wordt de PM concentratie berekend. Bij het meten van PM_{10} wordt de aangevoerde lucht voorverwarmd om onder andere te voorkomen dat aangehecht vocht wordt meegewogen. Door de voorbehandeling van de invoerlucht kunnen echter ook fijnstoffracties (bijvoorbeeld aërosolen en vluchtige organische componenten) verloren gaan, afhankelijk van het type inlaatverwarming, de luchtvochtigheid, omgevingstemperatuur en fijnstofsamenstelling (zie bijvoorbeeld Van Putten et al., 2002; De Jonge et al., 2005; Wilson et al., 2002). Fijnstofmonitoren kunnen zich in verschillende typen meethutten bevinden, met of zonder airconditioning en ze bevatten tal van instellingen die van invloed zijn op de te bepalen meetwaarde. De gemeten concentratie wordt in het Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit analoog uitgelezen en na verschillende omzettingen via een telefoonverbinding verzonden naar het RIVM. Al deze factoren hebben invloed op de uiteindelijk vastgestelde fijnstofconcentraties.

1.2 Equivalentieonderzoek

De relaties tussen de fysische condities, de technische factoren en de uiteindelijke systematische afwijking tussen de automatische- en referentiemeting zijn complex en lastig te kwalificeren. Dit vertaalt zich in een relatief grote meetonzekerheid bij het meten van PM_{10} . Door de automatische metingen te kalibreren aan simultaan uitgevoerde referentiemetingen kan de systematische afwijking wel gekwantificeerd worden. In het equivalentieonderzoek wordt deze kalibratieprocedure via een statistische methode uitgevoerd. Door zo te kalibreren is de invloed van fysische condities en technische factoren op de systematische afwijking indirect meegenomen in de meetwaarden.

Om de meetonzekerheid die uit het equivalentieonderzoek volgt te verkleinen is het meetnet intensief doorgelicht. Met het kwalificeren en herstellen van configuratieverschillen kan vervolgens (een gedeelte van) de systematische afwijking beter verklaard worden. Dit resulteert uiteindelijk in nauwkeurigere fijnstofmetingen.

1.3 Europese kaders

De referentiemethode voor PM₁₀-metingen zoals is vastgelegd in de EU richtlijn 1999/30/EG is de gravimetrische methode welke beschreven wordt in de EN12341 (CEN, 1998). Bij de referentiemethode wordt fijnstof verzameld op filters waarvan de massatoename handmatig wordt bepaald door weging. De EU richtlijn vereist ook concentratiemetingen waarvan de resultaten minimaal eens per 24 uur – maar bij voorkeur eens per uur – gepubliceerd worden. Om snel over actuele PM₁₀-concentraties te beschikken is daarom het gebruik van een andere (automatische) meetmethode toegestaan mits deze meetmethode vergelijkbaar is met de referentiemethode. Een lidstaat mag deze equivalentie naar eigen inzicht aantonen. De EU doet echter een gedetailleerde aanbeveling welke wijze het best gevolgd kan worden (EC, 2005; EC Working Group on Guidance for the Demonstration of Equivalence, 2005). Wanneer equivalentie (nog) niet aangetoond kan worden, wordt als interim-oplossing een omrekeningsfactor van 1,3 aanbevolen (Williams en Bruckmann, 2002). Derhalve is begin 2006 besloten om de standaard omrekeningsfactor van 1,3 toe te passen (in plaats van de afwijkende factor 1,33 zoals tot 2006 bij het LML werd toegepast) tot het moment waarop de exacte equivalentie van de PM monitoren in het LML bepaald is.

De CEN standaard EN12341 wordt momenteel herzien. De huidige norm definieert de norm voor het aantonen van equivalentie met de referentiemethode. Verwacht wordt dat de criteria verscherpt worden analoog aan de PM_{2,5} norm EN14907. In de nieuwe versie zal nog maar één type referentiemeetapparaat vermeld worden. Veranderingen wat betreft de weegkamer condities worden niet verwacht tot tenminste 2012 (CEN, 2006)

2. Doorlichting meetprocedures

2.1 Inleiding

Het grote aantal technische factoren dat de fijnstofmetingen beïnvloedt, maakt het monitoren van fijnstof complex. Om te zorgen dat de PM₁₀-monitoren optimaal functioneren wordt er op elke monitor periodiek preventief onderhoud uitgevoerd. Naast het preventieve onderhoud is in 2006 de gehele keten van monitor tot aan de rapportage intensief doorgelicht. In deze doorlichting van het meetnet is in het bijzonder gelet op de procedures, meetconfiguraties en apparatuurinstellingen van zowel de automatische- als referentiemetingen. De verschillende onderdelen en bevindingen van de doorlichting van het meetnet worden in het kader van het equivalentieonderzoek in dit hoofdstuk categorisch toegelicht.

2.2 Monitortypen

In het Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit (LML) wordt door het RIVM gebruikgemaakt van bèta-absorptie instrumenten voor de continue metingen van PM₁₀. Vanaf 1992 gaat het daarbij om het type FH62 I-N met een korte mantel inlaatverwarming die is ingesteld op 50 °C. Omdat de FH62 I-N monitor verouderd raakt is vanaf 2003 naast dit type monitor ook het nieuwere type FH62 I-R geïntroduceerd. Dit type monitor heeft een lange buis inlaatverwarming ingesteld op 5 °C boven omgevingstemperatuur. Bij deze instelling bleek de kans op technische storing groot (bijvoorbeeld scheuren van het filter). Medio november 2003 is de voorverwarming van alle monitoren van dit nieuwe monitortype daarom veranderd naar 10 °C boven omgevingstemperatuur. Omdat de inlaatverwarming van de FH62 I-N verouderd, is in 2006 de verwarming van de meeste (oude) FH62 I-N monitoren vervangen door een (langere) buis inlaatverwarming. Zie ook het overzicht in Tabel 1.

Voor het uitvoeren van referentiemetingen wordt gebruik gemaakt van een Low Volume Sampler (LVS), de Sven Leckel SEQ47/50. Met de LVS wordt 24 uur achtereenvolgend een filter bezogen waarna het filter handmatig gewogen wordt en de daggemiddelde fijnstofconcentratie bepaald wordt. De weging gebeurt in een ruimte waar temperatuur en luchtvochtigheid gecontroleerd en constant gehouden worden zodat er geen adsorptie van vocht of verlies van vluchtige bestanddelen kan plaatsvinden.

2.3 Omrekeningsinstellingen

Tot medio 2003 werden de PM₁₀ meetwaarden door de monitor bepaald bij standaardcondities van 0 °C en 1013 hPa en bij het uitlezen omgerekend naar standaardcondities van 20 °C en 1013 hPa, conform de oude EU Richtlijn 80/779/EEG. De nieuwe monitor FH62 I-R is vanaf de introductie zo ingesteld dat de meetwaarden onder omgevingscondities worden gerapporteerd conform de nieuwe EU-richtlijn 1999/30/EC. Om de metingen naar omgevingscondities om te rekenen is een (T1) buitensensor nodig. De oude FH62 I-N was standaard niet uitgerust met deze sensor. Tijdens de introductie van de FH62 I-R is het oude type monitor FH62 I-N ook uitgerust met deze sensor. De oude FH62 I-N blijkt echter geringe technische mogelijkheden te bieden om het correct functioneren van de sensor te waarborgen. Bij doorlichting in het veld is gebleken dat het niet goed functioneren van deze

sensor daarentegen geen gevolgen heeft gehad op de metingen omdat de oude FH62 I-N monitoren niet stonden ingesteld om de concentratie te berekenen aan de hand van de gemeten omgevingstemperatuur maar bij standaardcondities.

Tabel 1: Tijdoverzicht van configuratieveranderingen en meetcondities in het LML

Tijd	FH62 I-N Oude verwarming	FH62 I-N Nieuwe verwarming	FH62 I-R	Aanpassingen
< 2003	Standaard- condities (20 °C)			
2003	↓ Omgeving- condities (hervalidatie 1)		14 monitoren omgeving- condities & 6 monitoren standaard- condities (20 °C)	Maart - 2003 Introductie FH62 I-R op +5 °C
2004				Zomer - 2003 Plaatsing T1-sensor bij FH62 I-N
2005	Standaard- condities (0 °C)		↓ Omgeving- condities (hervalidatie 2)	November - 2003 Verwarming I-R naar +10 °C
2006	↓ Omgeving- condities (hervalidatie 2)	Standaard- condities (0 °C)		Maart - 2006 Kalibratie van 1,33 → 1,30
2007		↓ Omgeving- condities (hervalidatie 2)		September - 2006 Hervalidatie 1
			Omgeving- condities	Januari - 2007 Hervalidatie 2
	UITFASERING	UITFASERING		Februari - 2007 Nieuwe kalibratie
2008			Transitie naar digitaal uitlezen	(Planning) Medio - 2007 Uitrol vernieuwingsslag

Om de consistentie in de fijnstofmetingen te waarborgen zijn historische FH62 I-N meetwaarden die bij standaardcondities gerapporteerd zijn naar omgevingscondities herberekend. Deze herberekening is medio 2006 uitgevoerd. Omdat voor een deel van de monitoren op een later tijdstip is gebleken dat deze op afwijkende wijze de PM-concentratie berekende, is in januari 2007 een tweede hervalidatie-slag uitgevoerd zodat alle data consistent op eenzelfde wijze bij omgevingscondities gerapporteerd wordt. Zie ook het overzicht in Tabel 1. Het effect van de hervalidatie op eerder gerapporteerde concentraties is gering. De verandering in concentratie is, afhankelijk van de gemeten concentratie en temperatuur, voor de meeste meetwaarden kleiner dan $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Bij één specifiek station (444 De Zilk) is geconstateerd dat een oude omrekening van 0 naar 20 °C (standaardcondities) nog in het lokale data-acquisitiesysteem (Lumina) ingesteld stond. De meetwaarden van dit station zijn hiervoor in de tweede hervalidatie gecorrigeerd. Dit heeft geleid tot een verschil van circa $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ voor metingen op dat station.

Hoewel het effect van de hervalidatie op de meting gering is draagt de hervalidatie bij aan het verkleinen van de meetonzekerheid. Dit is vooral van belang voor het equivalentie-onderzoek waarin de kalibratie van de metingen bepaald worden. Voor het bepalen van de kalibratie zijn meetwaarden na de tweede hervalidatie gebruikt.

2.4 Ophalen meetwaarden: analoog en digitaal verschillen

De metingen in het LML worden analoog via de Lumina (lokaal data-acquisitiesysteem) uitgelezen en per telefoonverbinding naar het RIVM in Bilthoven verzonden. Na vergelijking van de analoog uitgelezen waarden en de in de monitor opgeslagen digitale waarden blijkt dat de waarden niet exact overeenkomen. Het resultaat van vergelijkingen voor een groot aantal stations laat zien dat de analoog-uitleesafwijking varieert per monitor en dat het per monitor om een systematische verschuiving in concentratie gaat, variërend van -2 tot circa +4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Dit verschil is mogelijk te verklaren door (kleine) afwijkingen bij de niet te kalibreren stroomuitgang van de monitor. Deze bron van onzekerheid is impliciet meegenomen in de kalibratie en de bepaling van de meetonzekerheid. Voor 2007 staat in de planning om over te stappen naar digitaal uitlezen. Met deze vernieuwingsinslag zal een storende ruis en onzekerheidsfactor in de fijnstofmetingen verdwijnen.

2.5 Referentiemethode: weegkamercondities en filtertype

De Low Volume Sampler (LVS) referentiemetingen zijn tot april 2006 uitgevoerd door de filters bij circa 43% relatieve luchtvochtigheid (RH) te wegen. Volgens de EN12341 richtlijn moet dit echter bij 50% RH gebeuren. Vanaf april 2006 is de weegkamer hierop aangepast. In 2006 is er onderzoek uitgevoerd om de invloed van deze conditieverandering te bepalen. Uit dit onderzoek bleek dat bij 43% RH de concentraties onderschat worden. Gebaseerd op de uitkomsten van dit onderzoek is bepaald dat referentiemetingen gewogen bij 43% RH en met een factor 1,03 vermenigvuldigd, vergelijkbaar zijn aan metingen gewogen bij 50% RH conform de EN 12341 criteria (Beijk, 2007). Voor het equivalentieonderzoek zijn de gecorrigeerde (met factor 1,03) en gevalideerde referentiemetingen gebruikt.

Het gebruikte filtertype bij gravimetrische metingen is ook van significante invloed op de uiteindelijk te bepalen concentratie (zie bijvoorbeeld VMM, 2005; De Jonge et al., 2005). Doordat de QF20 filters niet meer leverbaar zijn is het LVM overgestapt op QMA filters. Uit onderzoek van Vonk, Hafkenscheid en Mooibroek (2007) bleken de verschillen tussen deze specifieke twee filtertypen niet significant.

2.6 Problemen met individuele monitoren

Bij analyse van de individuele monitoren zijn een tweetal problemen aan de orde gekomen. Monitor N623 (operationeel in respectievelijk Valthermond: meetstation 929 in de periode 2004-2005 en Philippine: meetstation 318 in de periode 2005-2006) blijkt in een periode tussen twee specifieke onderhoudsbeurten de concentraties (sterk) te onderschatten. Voor de onderschatting door monitor N623 is nog geen technische verklaring gevonden. Omdat er voor lange tijd simultaan referentiemetingen zijn uitgevoerd naast deze monitor zijn aan de hand van die resultaten de metingen van N623 gecorrigeerd met een factor 1,27. Dit komt overeen met een concentratieverhoging van circa 5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

Een tweede probleem is geconstateerd bij monitor 630 (operationeel in Breda). Deze heeft een te hoog en wisselend aanzuigdebiet dat niet te corrigeren is. De metingen van deze monitor aan de Tilburgseweg te Breda (station 240) in de periode mei-juli 2006 zijn daarom afgekeurd.

Tot medio 2006 waren geen reserve monitoren beschikbaar waardoor het vaststellen en/of herstellen van niet-standaardstoringen in individuele monitoren werd bemoeilijkt. Inmiddels is een aantal extra monitoren aangeschaft waardoor verdachte monitoren kunnen worden vervangen en/of vergeleken met een andere monitor.

2.7 Resultaten

Vanaf 1992 wordt in het LML gebruikgemaakt van FH62 I-N monitoren voor het meten van fijnstof. De metingen van de FH62 I-N monitoren zijn gevoeliger voor meteorologische condities en er treden vaker technische storingen op vergeleken met het nieuwe type monitor FH62 IR. Storingen en instellingsfouten zijn bij het oude type monitor slecht(er) te verhelpen mede door ontbrekende storingssignalen en een gebrek aan expertise bij de leverancier. Om de integriteit en consistentie van de PM₁₀-metingen in het meetnet te waarborgen is inmiddels besloten alle operationele FH 62 I-N monitoren te vervangen door het nieuwe type FH62 IR. Bij doorlichting van de procedures in het meetnet omtrent de fijnstofmetingen zijn verder een drietal punten naar voren gekomen:

- Het eerste punt is de omstandigheden voor conditionering van filters in de weegkamer. De resultaten van de referentiemetingen bepalen via het equivalentieonderzoek de resultaten van alle automatische PM₁₀-metingen. Het is daarom essentieel dat de wegingen in de weegkamer conform EN12341 verlopen. Dit was nog niet het geval maar is inmiddels bewerkstelligd.
- Het tweede punt is het analoog – digitaal uitleesverschil. Bij vergelijkingen met de referentiemetingen blijkt dat de digitaal uitgelezen meetwaarden een sterkere relatie met de referentiemethode vertonen dan de analoge data. De digitaal uitgelezen uurwaarden vertonen ook minder ruis. De digitale meetwaarden zijn per definitie de ‘correcte’ waarden, dat wil zeggen de exacte - door de FH62 bepaalde - waarden. In 2007 zal het meetnet overstappen naar het digitaal uitlezen van de monitoren. Hierdoor zal de uitleesonzekerheid van de analoog-digitaalconversie verdwijnen.
- Het derde punt is de instelling van de monitor. Bij onderhoud van de monitoren is het mogelijk dat de monteur abusievelijk een instelling foutief instelt. Op het moment is dat lastig te achterhalen terwijl het wel invloed heeft op de meetwaarden. Daarom wordt het loggen en controleren van instellingsaanpassingen verbeterd. Tevens biedt het digitaal uitlezen onder andere de mogelijkheid om op afstand de instellingen te controleren waardoor inconsistentie in instellingen beter voorkomen kan worden.

De beide laatste punten zijn nog niet verholpen. Omdat beide punten eveneens van invloed zijn op de monitoren die gebruikt zijn in het equivalentieonderzoek is het effect wel verdisconteerd in de kalibratie en de onzekerheidsschattingen.

3. Equivalentieonderzoek

3.1 Inleiding

In het voorjaar van 2006 heeft de Europese CAFE stuurgroep besloten de procedures van de EC Working Group on Guidance for the Demonstration of Equivalence over te nemen. Deze procedures zijn vastgesteld om PM₁₀-metingen in Europa te harmoniseren en vergelijkbaar te maken. Tegelijkertijd is het aantal vergelijkende metingen in het Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit (LML) vergroot. Daardoor is het nu mogelijk om een nieuwe kalibratie voor de PM₁₀-metingen te bepalen aan de hand van de door de werkgroep aanbevolen procedures.

3.2 Methode

Differentiatie

Onder meer de configuratie van de monitor (bijvoorbeeld inlaatverwarming), de fijnstofsamenstelling, de omgevingstemperatuur en de luchtvochtigheid hebben een invloed op eventuele onder- of overschattingen bij de automatische PM-metingen. De EC Working Group on Guidance for the Demonstration of Equivalence (2005) stelt daarom ook dat de gebruikte dataset representatief moet zijn voor veranderingen in deze factoren. Bij het equivalentieonderzoek is daarom zoveel als mogelijk geprobeerd deze factoren mee te nemen in het aantonen van equivalentie tussen de automatische en referentiemethode.

Het aantonen van equivalentie gebeurt per monitortype. Twee typen bèta-stofmonitoren worden momenteel in het LML ingezet: de (oudere) FH62 I-N en de (nieuwe) FH62 I-R. De inlaatverwarming van de oude FH62 I-N is in 2006 vervangen. Gebleken is dat de inlaatverwarming grote invloed heeft op de kalibratie. Daarom wordt in het equivalentieonderzoek onderscheid gemaakt tussen een FH62 I-N met oude en nieuwe verwarming (respectievelijk 'ov' en 'nv'). Voor drie methoden is zodoende de kalibratie en equivalentie bepaald: de FH62 I-N ov, de FH62 I-N nv en de FH62 I-R.

Vervolgens is onderzocht of er onderscheid tussen stedelijke en regionale locaties gemaakt kan/moet worden. Verder zijn voor alle categorieën data uit zomer- en winterperioden gebruikt om representatief te zijn voor verschillende meteorologische condities.

Bepalen van equivalentie

De EC Working Group on Guidance for the Demonstration of Equivalence (2005) beveelt orthogonale regressie aan voor het bepalen van equivalentie tussen de kandidaatmethode en de referentiemethode. Toepassen van kalibratie wordt aanbevolen wanneer bij orthogonale regressie de helling significant van 1 afwijkt of wanneer de intercept significant van 0 afwijkt. Wanneer de intercept niet significant van 0 afwijkt wordt de regressie door de oorsprong uitgevoerd. De werkgroep geeft geen methode voor de berekening van de meetonzekerheid bij orthogonale regressie door de oorsprong omdat er voor één van de bijdragen aan de meetonzekerheid, namelijk de onzekerheid in de helling, geen standaardformule bekend was. Dit is opgelost door via een simulatietechniek, de 'bootstrap'-methode, deze onzekerheid te schatten.

3.3 Invloed meteorologische condities en PM samenstelling

Tegelijk met de herkalibratie van de monitoren is onderzocht of met externe parameters de onzekerheid van de PM₁₀-metingen verkleind kan worden. Meteorologische condities en fijnstofsamenstelling bepalen voor een belangrijk deel het variërende verschil tussen de automatische- en referentiemeting. Door middel van het koppelen van de verschillen tussen automatische en referentiemetingen aan meteorologische condities en simultaan gemeten gas- en aerosolconcentraties is gepoogd deze verschillen te verklaren. Met de uitkomsten zou wellicht een kalibratie met een kleinere meetonzekerheid bepaald kunnen worden. Tot op heden zijn de diverse relaties echter nog te zwak, diffuus en lastig van elkaar te scheiden om verder te verwerken in het equivalentieonderzoek (Beijk, 2007).

3.4 Beschikbare data voor de verschillende categorieën

Voor stedelijke locaties zijn equivalentiemetingen (vergelijkende referentiemetingen) voor de FH62 I-N ov en nv (oude en nieuwe verwarming) en FH62 I-R beschikbaar. Voor regionale locaties zijn alleen voor de FH62 I-R equivalentiemetingen beschikbaar. In het advies van de EC werkgroep wordt een minimum van vier vergelijkingen per kandidaatmethode aanbevolen, met minimaal veertig meetparen per vergelijking. Tevens moeten de data per vergelijking onder andere representatief zijn voor verschillen in meteorologische condities.

Tabel 2: Beschikbaarheid van data voor de drie kandidaatmethoden.

	Kandidaatmethode I		Kandidaatmethode II		Kandidaatmethode III	
Type	FH62 I-R		FH62 I-N nieuwe inlaatverwarming		FH62 I-N oude inlaatverwarming	
Locatie	Stedelijk	Regio	Stedelijk	Regio	Stedelijk	Regio
LML 2007	6 stations	14 stations	14 stations	3 stations	2 stations	0 stations
Referentie- metingen	4 stations 463 metingen	8 stations 763 metingen	2 stations 239 metingen		2 stations 181 metingen	

Onderscheid oude en nieuwe verwarming bij FH62 I-N

Bij strikte naleving van het adviesrapport van de EC werkgroep zou geen onderscheid gemaakt kunnen worden tussen de oude FH62 I-N monitor met oude en nieuwe verwarming vanwege een te klein aantal vergelijkende meetreeksen. Desondanks laten de resultaten een belangrijk verschil zien tussen beide configuraties. Wanneer er geen onderscheid gemaakt wordt, zal dit voor historische data leiden tot een overschatting in concentraties dan wel een onderschatting van de concentraties gemeten op stedelijke stations vanaf begin 2006.

Het verschil tussen de oude en nieuwe verwarming bij een FH62 I-N is theoretisch te onderbouwen. Beide verwarmingen staan op 50 °C ingesteld. De nieuwe verwarming is een stuk langer en heeft een directere warmteoverdracht waardoor de effectiviteit van de deze verwarming hoger is vergeleken bij de oude verwarming. De prestaties van de nieuwe verwarming liggen daardoor dicht bij de instellingspecificaties met als gevolg dat er een grotere fractie vluchtige componenten verdampt wordt. Dit leidt voor de oude FH62 I-N monitor met een nieuwe verwarming tot een hogere kalibratiefactor. Het verschil tussen beide kalibratiefactoren wordt tevens bevestigd wanneer de LML meetgegevens van voor en na plaatsing van de nieuwe verwarming vergeleken worden. Om een trendbreuk te voorkomen is er daarom voor gekozen om wel onderscheid te maken tussen beide configuraties.

3.5 Resultaten

De resultaten van de regressies voor de verschillende categorieën zijn geïllustreerd in Figuur 1 en gepresenteerd in Tabel 3. De uitkomst laat zien dat de FH62 I-R monitor op stedelijke locaties een niet-significante intercept heeft met een kalibratiefactor van 1,20. Op regionale locaties vertoont de nieuwe FH62 I-R een significante intercept ($2,7 \mu\text{g}/\text{m}^3$) met een kalibratiefactor van 1,17. In 2003 stond op een aantal regionale locaties voor een aantal maanden de inlaatverwarming van de FH62 I-R op $+5 \text{ }^\circ\text{C}$ ingesteld. Uit een vergelijkingsstudie met deze configuratie blijkt dat de benodigde kalibratie van de FH62 I-R op $+10 \text{ }^\circ\text{C}$ vergelijkbaar is aan die van de FH62 I-R op $+5 \text{ }^\circ\text{C}$ (Beijk, 2007).

Tabel 3: Statistische resultaten van het equivalentieonderzoek bij toepassing van de kalibratie die volgt uit de vergelijkingen met de referentiemethode.

Monitor type	Kandidaatmethode I		Kandidaatmethode II	Kandidaatmethode III
	FH62 I-R		FH62 I-N	FH62 I-N
	<i>Regio</i>	<i>Stedelijk</i>	nieuwe verwarming	oude verwarming
Kalibratie	1,17 x + 2,7	1,20 x	1,30 x	1,17 x
Relative Uncertainty	16,4 %	16,8 %	17,7 %	21,2 %
FH62 > 50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (dagen overschrijding)	48	47	22	19
Referentie > 50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (dagen overschrijding)	46	46	22	20
Gemiddelde (FH62)	26,8	31,8	32,5	33,4
Gemiddelde (Referentie)	27,1	31,9	32,3	32,8
Samples	763	463	239	181

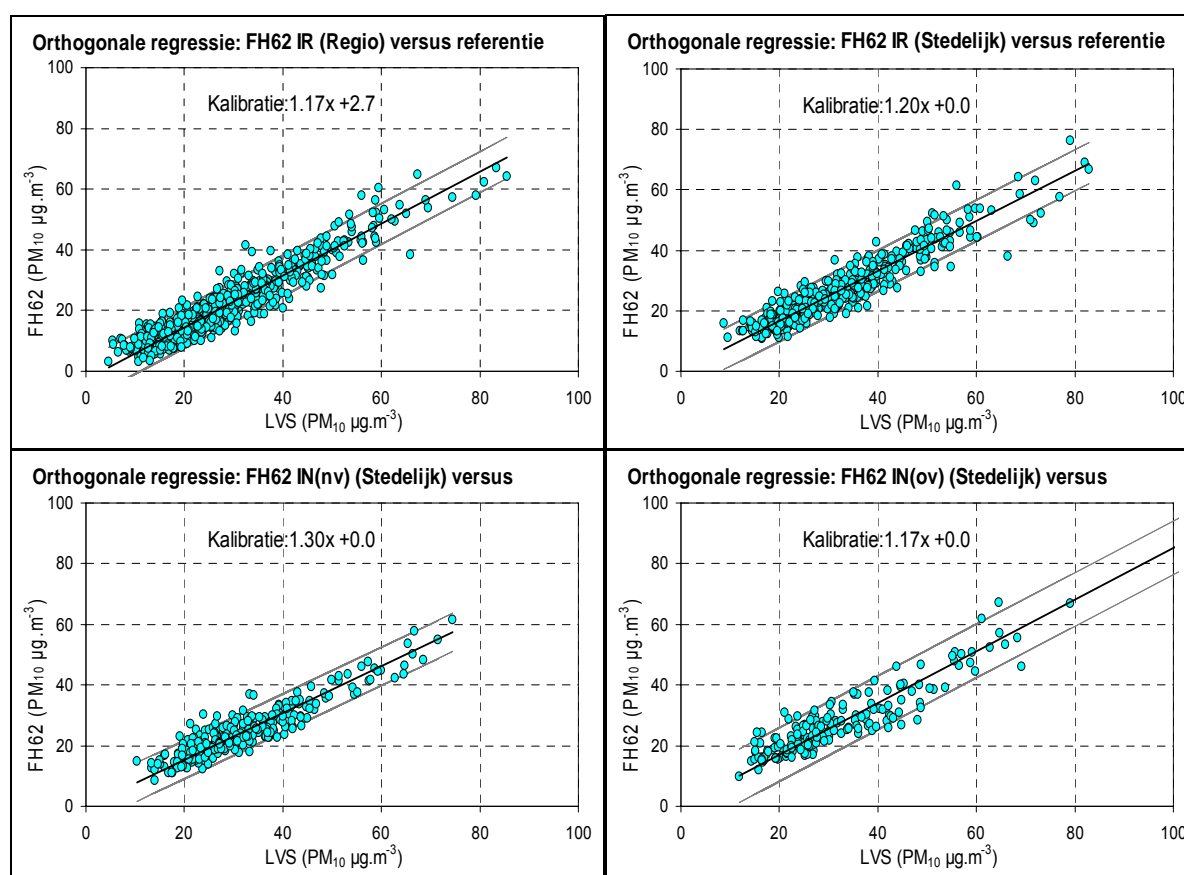
Op stedelijke locaties hebben de oude FH62 I-N monitoren met oude (ov) en nieuwe verwarming (nv) een kalibratiefactor van respectievelijk 1,17 en 1,30 en hebben beide een niet-significante intercept. Voor de oude FH62 I-N (oude en nieuwe verwarming) op regionale locaties zijn geen vergelijkende referentiemetingen beschikbaar. Tot medio 2003 stond op alle regionale locaties het oude type FH62 I-N monitor. Om consistentie van de meetreeks te waarborgen is het belangrijk om ook voor deze categorie een zo nauwkeurig mogelijke kalibratiefactor te bepalen. Omdat dit type monitor niet langer ondersteund wordt en er geen vervangende onderdelen meer beschikbaar zijn, kan equivalentie met referentiemetingen voor deze configuratie waarschijnlijk ook op een later tijdstip niet meer vastgesteld worden. Verondersteld is dat de FH62 I-N op regionale locaties vergelijkbaar is met hetzelfde type monitor op stedelijke locaties. Dit komt neer op een kalibratiefactor van 1,17 en 1,3 voor respectievelijk de FH62 I-N met oude en nieuwe verwarming op regionale locaties.

Alternatief zou zijn om aan te nemen dat de verhouding tussen de FH62 I-N op regionale en stedelijke locaties overeenkomt met die bij de FH62 I-R. Er zijn echter aanwijzingen dat de FH62 I-N in stad en regio zich juist anders verhoudt dan de FH62 I-R. Het type

voorverwarming is verschillend tussen beide type monitoren. Vrijwel alle stedelijke locaties hebben geen airco, de regionale wel. De minder effectieve en constant ingestelde FH62 I-N oude voorverwarming kan gevoelig zijn voor airconditioning waardoor wel degelijk een verschil in kalibratie tussen beide monitoren aanwezig kan zijn. Het systematische verschil bij de FH62 I-R tussen stedelijke en regionale locaties hoeft dus niet noodzakelijk representatief te zijn voor de FH62 I-N.

Door voor de FH62 I-N in de regio dezelfde kalibratiefactor toe te passen als in stedelijk gebied lijkt het resultaat beter in overeenstemming met eerder equivalentieonderzoek (Van Putten et al., 2002) en vergelijkende metingen op Vredepeel. Daarom is de FH62 I-N kalibratiefactor voor stedelijke en regionale locaties gelijk verondersteld. De representativiteit van de kalibratie voor de FH62 I-N op regionale locaties kan echter niet exact bepaald worden en blijft daarom omgeven door een grote onzekerheid.

Gebaseerd op de resultaten van de vergelijkingen met de referentiemethode is de kalibratie voor de fijnstofmonitoren in het LML bepaald. Deze staan samen met de statistische resultaten weergegeven in Tabel 3. Bij het uitvoeren van de (nieuwe) kalibratie mag de relatieve onzekerheid volgens de norm niet groter zijn dan 25%. De statistische resultaten in Tabel 3 laten zien dat met de nieuwe kalibratie aan deze randvoorwaarde wordt voldaan.



Figuur 1: Orthogonale regressies voor de vier categorieën IR_{regio} , $IR_{stedelijk}$, $IN^{ov}_{stedelijk}$ en $IN^{nv}_{stedelijk}$ met de referentie (LVS) op de x-as. De regressies zijn bij een niet-significante intercept geforceerd door de oorsprong (categorieën $IR_{stedelijk}$, $IN^{ov}_{stedelijk}$ en $IN^{nv}_{stedelijk}$). Boven en onder de regressielijn is het 95%-betrouwbaarheidsinterval weergegeven.

4. Gevolgen hervalidatie en kalibratie

Zowel de hervalidatie als de nieuwe kalibratie heeft invloed op de gemeten PM₁₀-niveaus. Het uitvoeren van de hervalidatie en het toepassen van de nieuwe kalibratie heeft daarmee ook consequenties voor de resultaten van modelvergelijkingen, normoverschrijdingen en vergelijkende ringstudies. De vergelijkende ringstudies met buurlanden zijn belangrijk voor het waarborgen van de kwaliteit van de metingen en voor het bepalen van de vergelijkbaarheid van metingen door verschillende instituten binnen de Europese Unie. Daarom wordt in dit hoofdstuk het effect van de hervalidatie en van de kalibratie op deze vergelijkingen weergegeven.

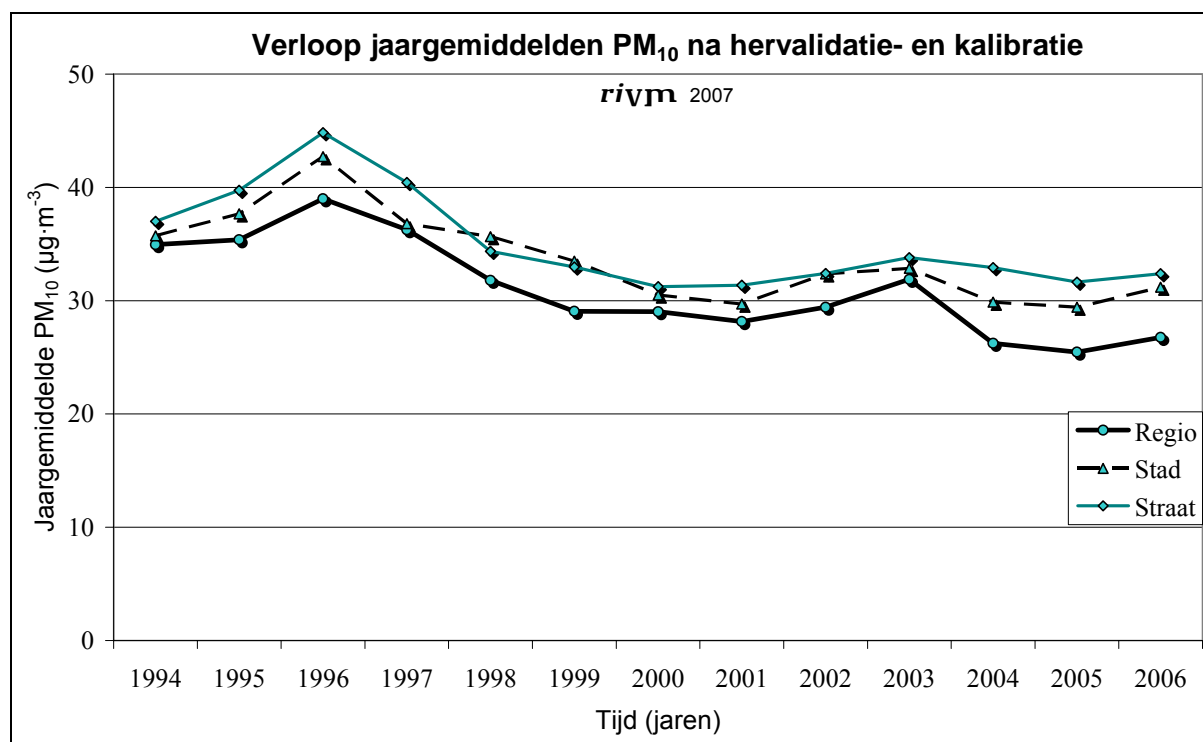
4.1 Effect op het jaargemiddelde en vergelijkende ringstudies

Het resultaat van de hervalidatie en kalibratie van automatische fijnstofmetingen op het jaargemiddelde is te zien in Figuur 2. In Figuur 3 is het verschil tussen deze nieuwe jaargemiddelden en het jaargemiddelde zoals deze eerder in 2006 gerapporteerd is uitgezet. Op stedelijke locaties treedt er een verlaging op variërend van -3 tot -5 µg/m³ tot 2006. Op regionale locaties is een vergelijkbare verlaging zichtbaar tot 2003. Na 2003 neemt het verschil op regionale locaties af tot een minimum in 2005 (< 0,5 µg/m³). Zie ook Bijlage 2 voor de verandering per station.

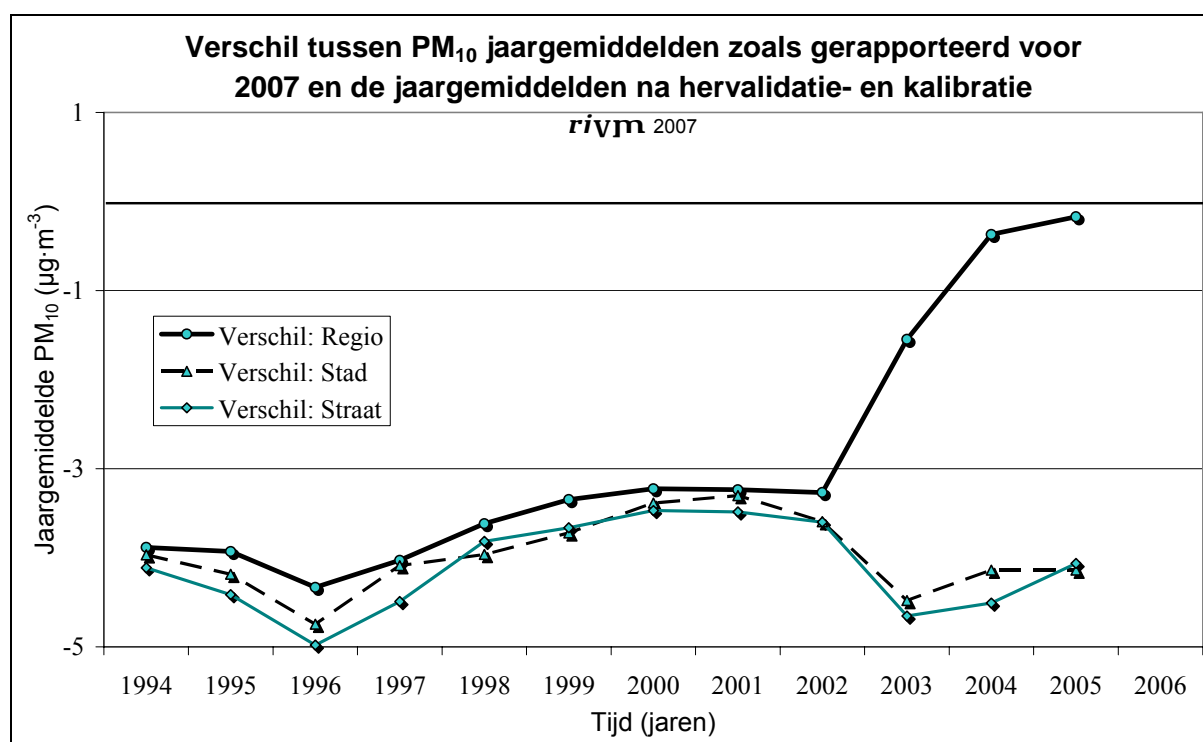
Het gevolg van de nieuwe kalibratie voor het resultaat van vergelijkende studies bij grensgebieden is te zien in Tabel 4. De vergelijking in 2001 met Nedersachsen verbetert met circa 1 µg/m³. Het netto verschil in 2004 verandert daarentegen niet. Omdat in 2004 de betrokken monitor afwijkende metingen produceerde (zie paragraaf 2.6) is de onzekerheid in deze tweede vergelijking groot. De vergelijkbaarheid met Nordrhein Westfalen en de referentiemetingen in Vredepeel verbetert na het toepassen van de nieuwe kalibratie sterk. In de tweede vergelijking met NRW in Bottrop is de verandering marginaal. Hetzelfde geldt voor de vergelijking met de Vlaamse Milieu Maatschappij (VMM) waar de nieuwe kalibratie geen gevolgen heeft voor de vergelijkbaarheid; die blijft zeer groot.

Tabel 4: Overzicht van de resultaten uit diverse vergelijkende studies in grensgebieden. In de voorlaatste kolom staan de herberekende uitkomsten bij nieuwe kalibratie en eventuele correcties.

Locatie	Jaar	Vergelijkend instituut	Jaargemiddelde Vergelijkend instituut	Jaargemiddelde RIVM (origineel)	Jaargemiddelde RIVM (2007)	Duitse Referentie meting
Valthermond	2001	Niedersachsen	24,7	26,7	23,5	
Valthermond	2004	Niedersachsen	21,6	18,8	24,2	
Vredepeel	2002/03	Nordrhein Westfalen	29,0	39,2	35,3	33,6
Bottrop	2003/04	Nordrhein Westfalen	35,1	33,0	32,4	32,9
Biest	2005	VMM	28,0	29,0	29,0	



Figuur 2: Jaargemiddelden PM₁₀ berekend met de in januari 2007 gehervalideerde en gekalibreerde fijnstofmetingen.



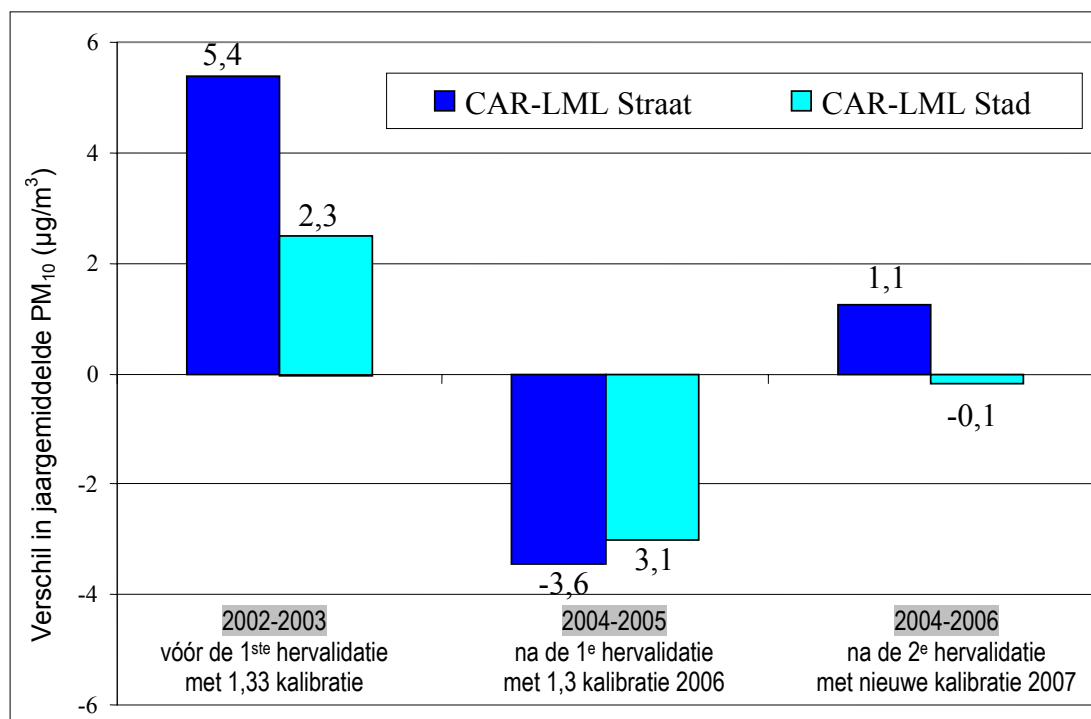
Figuur 3: Verandering in jaargemiddelden na hervaldatie- en kalibratie. Tot 2003 dalen de concentraties voor alle stations circa 3 tot 5 µg/m³. Vanaf 2003 neemt het verschil voor regionale stations tot een minimum af.

4.2 Effect op normoverschrijdingen en vergelijking model- en meetwaarden

De vergelijking tussen metingen en modelberekeningen (CAR-II) na het uitvoeren van de hervalidatie en kalibratie laten meer consistentie zien. Het absolute verschil tussen modelwaarde en meting neemt op stadsachtergrondstations af van 3,5 naar 0,6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ en voor straatstations van 2,6 naar 1,2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Zie ook Figuur 4 en Bijlage 3.

Het aantal *gemeten* overschrijdingsdagen is gevoeliger voor een verandering in kalibratie dan de gemeten jaargemiddelden doordat relatief veel concentraties rondom de normeringlimiet zitten. Het bepalen van het aantal overschrijdingsdagen voor toetsing aan de norm gebeurt echter aan de hand van modelberekeningen. Deze modelberekeningen zijn mede gebaseerd op metingen op regionale locaties waar de invloed van de hervalidatie en kalibratie gering is. De nieuwe kalibratie heeft echter wel consequenties voor het *gemeten* aantal overschrijdingsdagen zoals deze op de LML-site (www.lml.rivm.nl) tot maart 2007 gepubliceerd waren. Het aantal gemeten overschrijdingsdagen (daggemiddelde > 50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) in 2006 daalt voor de regionale-, stadsachtergrond- en straatstations na hervalidatie en toepassen van de nieuwe kalibratie gemiddeld met respectievelijk -3, -12 en -15 dagen. Zie ook de tabel in Bijlage 1 voor de exacte verandering per station.

De relatie tussen het aantal dagoverschrijdingen en het jaargemiddelde veranderd op het kritieke punt (normeringlimiet) niet significant. In Bijlage 4 wordt deze relatie verder toegelicht. Voor 2007 wordt deze relatie niet aangepast.



Figuur 4: Verschil tussen modelwaarde en metingen in het Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit (LML) voor respectievelijk 2002-2003 en 2004-2005. Het effect van de hervalidatie en nieuwe kalibratie is geïllustreerd in de derde groep, '2004-2005 na hervalidatie en kalibratie 2007'.

4.3 Discontinuïteit op regionale locaties

De jaargemiddeldeconcentraties PM₁₀ zoals gerapporteerd voor de hervalidatie lijken sinds 2004 een trendbreuk te vertonen. In dat jaar is een daling waargenomen in de fijnstofconcentraties op regionale locaties die niet helemaal begrepen wordt. Ook is het verschil tussen regionale en stedelijke locaties vanaf dat moment toegenomen (LVM, 2005). Na correctie voor meteorologische condities schat het MNP dat er zich een significante daling van circa 3,5 à 4,0 µg/m³ heeft voorgedaan op regionale locaties bovenop de berekende trend als gevolg van verminderde emissies (MNP, 2006). De oorzaak van deze discontinuïteit kan mogelijk gezocht worden in een combinatie van factoren: *i*) verandering in emissies, *ii*) variaties in meteorologische omstandigheden, *iii*) veranderingen in het meetnet of *iv*) andere onbekende factoren.

Na het toepassen van de nieuwe kalibratie verandert het verloop van de jaargemiddelde concentraties en is de mogelijke trendbreuk waarschijnlijk verdwenen. Het nieuwe verloop (Figuur 2) laat zien dat vooral 2003 een uitzonderlijk jaar is wat betreft de hoge fijnstofconcentratie. Dit is een fenomeen wat in meerdere landen in Europa is waargenomen en te verklaren is door weersomstandigheden. Hoewel de trendbreuk daarmee nu verdwenen lijkt, geldt toch dat de meetreeks voor 2004 met grote onzekerheid is omgeven omdat voor de regionale stations in die jaren geen nauwkeurige kalibratie bepaald is.

5. Conclusie

Procedures, meetconfiguraties en instellingen in Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit (LML) zijn grondig doorgelicht en geconstateerde afwijkingen zijn gecorrigeerd. Het effect van deze hervalidatie op de metingen is gering, circa $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$, maar vermindert wel de meetonzekerheid.

Equivalentie tussen de automatische meetmethode en de referentiemethode is vastgesteld conform de aanbevelingen van de CAFE steering comitee. De verschillende apparaattypen voor regionale en stedelijke locaties zijn gekalibreerd ten opzichte van de referentiemethode. Hierdoor werkt het LML conform de Europese voorschriften en is het niet langer nodig de standaard EU omrekeningsfactor van 1,3 te gebruiken. Het effect van de nieuwe kalibratie op eerder gepresenteerde meetgegevens loopt uiteen van 0 tot $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Voor regionale stations na 2003, die gebruikt worden voor het opstellen van de GCN-kaarten, bedraagt het verschil minder dan $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

De resulterende meetonzekerheden liggen tussen 16% en 22% en voldoen daarmee aan de eis uit de EU Richtlijn 1999/30/EC ($\leq 25\%$). De verschillen tussen automatische- en referentiemetingen worden veroorzaakt door een veelvoud aan (inter-gecorrigeerde) processen en factoren. In het verklaren van deze afwijking zitten nog altijd kennishiaten. Hierdoor blijft het automatisch meten van PM_{10} complex met een relatief grote onzekerheid. Mede daardoor en door de grote onzekerheid in de kalibratiebepaling bij vooral historische data op regionale locaties van voor 2004 blijft de onzekerheid voor die periode extra groot.

Onder andere om de meetonzekerheid verder te verkleinen is er een vernieuwingsslag ingezet in het Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit. Met de hervalidatie, het vervangen van de FH 62 I-N door het nieuwe type FH 62 I-R, het optimaliseren van de weegkamer waar de referentiemetingen bepaald worden, de verbeteringen in het loggen van instellingveranderingen en de overstap naar digitaal uitlezen van data zal de relatie tussen de automatische- en referentiemethode verder verbeteren en de onzekerheid verder verkleinen. Tevens zal met deze overgang de afwijkingen tussen individuele monitoren sneller gedetecteerd en gecorrigeerd worden en de kwaliteit van de fijnstofmetingen beter gewaarborgd worden.

Literatuur

Beijk, R. et al. (2007) PM₁₀ equivalence study 2006. Bilthoven: Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM). Rapportnummer 680708002. (In voorbereiding)

CEN (1998) Air quality – Determination of the PM₁₀ fraction of suspended particulate matter – reference method and field test procedure to demonstrate reference equivalence of measurement methods. Brussels: CEN 12341.

CEN (2006) Werkgroep bijeenkomst 27 november 2006. Brussel: CEN TC264/WG15: Air Quality PM. Rapportnummer N304

EC (2005) Proposal directive of the European Parliament and of the council on ambient air quality and cleaner air for Europe. COM/2005/447

EC Working Group on Guidance for the Demonstration of Equivalence (2005) Demonstration of equivalence of ambient air monitoring methods. Gepubliceerd op internet, 28 februari 2007: <http://ec.europa.eu/environment/air/ambient.htm>

Jonge D. de, Meulen A. van der, Elshout S. van den, Laan J. van der, Kummu P., Visser J., Weijers E., Loon J. van, Severijnen M. (2005) Overzicht van onderzoek naar correctiefactoren voor automatische PM₁₀-metingen in Nederland. Bilthoven: Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM). Rapportnummer 680500002

LVM (2005) Concentraties stikstofdioxide en fijn stof in Nederlandse lucht in 2005 iets lager dan in 2004. Infomil Maart 2005 (zie ook <http://www.infomil.nl>)

MNP (2006) Nieuwe inzichten in de omvang van de fijnstof problematiek. Bilthoven: Milieu en Natuur Planbureau. Rapportnummer 50093003/2006

Putten E.M.van, Arkel F.Th. van, Bloemen H.J., Meulen A. van der. (2002) Vergelijkende PM₁₀-metingen in Nederland. Bilthoven: Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM). Rapportnummer 650010023, -24, -25 en -26 :deel A, B en C en samenvattend overzicht.

VMM (2005) The effect of filter choice on the results of the European PM₁₀ reference method. Antwerpen: Particles in Europe Conference, Presentatie Vercauteren (Jordy), 13- en 14 juni 2006.

Vonk, J., Hafkenscheid, T.L., Mooibroek, D. (2006) Vergelijking gravimetrische PM₁₀ filtermetingen. Bilthoven: Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM). (In voorbereiding)

Williams, M., Bruckmann, P. (2002) EC working group on particulate matter: A report on guidance to the member states on PM₁₀ monitoring and intercomparisons with the reference method. Brussels: European Commission. Gepubliceerd op internet, 28 februari 2007: <http://ec.europa.eu/environment/air/ambient.htm>

Wilson, W.E., Chow, J.C., Claiborn, C., Fusheng, W., Engelbrecht, J., Watson, J.G. (2002) Monitoring of particulate matter outdoors. Chemosphere, vol 49, pp 1009-1043.

Bijlage 1 Verandering in het aantal overschrijdingen van de dagnorm in 2006

Verandering in het aantal overschrijdingen van de dagnorm (> 50 µg/m³) in 2006 per station na hervalidatie en toepassing van de nieuwe kalibratie.

Regionale locaties	Voorlopige data (website)	Definitieve data	Δ
131 Vredepeel-Vredeweg	23	16	-7
133 Wijnandsrade-Opfergeltstraat	16	12	-4
230 Biest Houtakker-Biestsestraat	35	25	-10
235 Huijbergen-Vennekenstraat	22	19	-3
318 Philippine-Stelleweg *)	14	33	19
437 Westmaas-Groeneweg	16	10	-6
444 De Zilk-Vogelaarsdreef	11	17	6
538 Wieringerwerf-Medemblikkerweg	14	7	-7
631 Biddinghuizen-Hoekwantweg	17	8	-9
633 Zegveld-Oude Meije	14	11	-3
722 Eibergen-Lintveldseweg	14	19	5
738 Wekerom-Riemterdijk	38	27	-11
807 Hellendoorn-Luttenbergerweg	21	15	-6
818 Barsbeek-De Veenen		(31)	(31)
918 Balk-Trophornsterweg	15	11	-4
929 Valthermond-Noorderdiep	25	23	-2
934 Kollumerwaard-Hooge Zuidwal	20	16	-4
<i>Gemiddelde regionale locaties</i>	<i>20</i>	<i>17</i>	<i>-3</i>
Stadsachtergrond	Voorlopige data (website)	Definitieve data	Δ
137 Heerlen-Deken Nicolayestraat	45	35	-10
241 Breda-Bastenakenstraat	54	45	-9
404 Den Haag-Rebecquestraat	50	31	-19
418 Rotterdam-Schiedamsevest	53	37	-16
441 Dordrecht-Frisostraat	32	19	-13
446 Den Haag-Bleriotlaan	27	17	-10
520 Amsterdam-Florapark	46	40	-6
<i>Gemiddelde stadsachtergrond</i>	<i>44</i>	<i>32</i>	<i>-12</i>
Straat locaties	Voorlopige data (website)	Definitieve data	Δ
136 Heerlen-Looierstraat	36	26	-10
236 Eindhoven-Genovevalaan	74	45	-29
237 Eindhoven-Noordbrabantlaan	62	31	-31
240 Breda-Tilburgseweg **)	90	43	-47
433 Vlaardingen-Floreslaan	16	16	0
445 Den Haag-Veerkaade	85	68	-17
447 Leiden-Willem de Zwijgerlaan	35	25	-10
448 Rotterdam-Bentinckplein	69	51	-18
537 Haarlem-Amsterdamsevaart	59	47	-12
544 Amsterdam-Bernhardplein	18	14	-4
636 Utrecht-de Jongweg	39	34	-5
639 Utrecht-Erzejstraat	56	43	-13
641 Breukelen-Snelweg	42	36	-6
741 Nijmegen-Graafseweg	85	70	-15
937 Groningen-Europaweg	65	50	-15
<i>Gemiddelde straat locaties</i>	<i>55</i>	<i>40</i>	<i>-15</i>

*) Een deel van de metingen op dit station zijn met een factor 1,27 gecorrigeerd vanwege een niet goed functionerende monitor. Zie ook paragraaf 2.6.

**) Door een niet te corrigeren monitor is een deel van de zomerdata van station 240 afgekeurd. Bij extrapolatie met behulp van het naburige stadachtergrondstation 241 komt het aantal overschrijdingen op 53 dagen.

Bijlage 2 Verandering in jaargemiddeldeconcentratie

Jaargemiddelde PM₁₀ voor en na toepassing van de nieuwe kalibratie en tweede hervalidatie.

Regionale locaties	2004			2005			2006
	Vóór herkalibratie	Na herkalibratie	Δ	Vóór herkalibratie	Na herkalibratie	Δ	Na herkalibratie
131	25,5	25,7	0,1	24,6	24,9	0,2	26,6
133	25,3	25,5	0,2	24,7	24,9	0,2	25,4
230	31,4	30,9	-0,4	31,3	30,8	-0,4	29,9
235	29,5	29,2	-0,2	29,7	30,0	0,2	29,0
318	25,1	25,3	0,2	20,1	23,5*	3,4	29,2
437	30,2	29,9	-0,3	25,0	25,2	0,2	23,9
444	27,8	28,7	0,9	24,2	25,3	1,1	27,3
538	23,3	23,7	0,4	21,0	21,6	0,6	24,6
631	24,4	24,6	0,3	24,7	25,0	0,2	25,1
633	23,4	23,8	0,4	21,6	22,1	0,5	23,9
722	26,9	27,9	1,1	24,5	25,6	1,2	26,8
738	26,9	23,5	-3,4	29,8	28,1	-1,7	30,1
807	30,8	26,9	-3,9	25,8	22,5	-3,3	24,4
818	29,6	25,9	-3,8	30,7	26,7	-4,0	30,2
918	27,5	24,0	-3,5	27,5	23,9	-3,6	24,8
929	18,8	24,6 *	5,8	23,3	25,5	2,2	27,2
934	25,8	25,9	0,1	27,2	27,2	0,0	26,6
Gemiddeld	26,6	26,2	-0,4	25,6	25,5	-0,2	26,8
Stadsachtergrond							
137				32,3	29,1	-3,2	30,6
241				37,8	32,7	-5,0	32,5
404	35,7	31,1	-4,6	33,2	28,9	-4,3	33,7
418	38,0	33,1	-4,9	37,3	32,5	-4,9	32,9
441	30,8	26,8	-3,9	29,1	25,3	-3,8	29,0
446							26,0
520	31,6	28,5	-3,2	30,6	28,1	-2,6	33,7
Gemiddeld	34,0	29,9	-4,1	33,4	29,4	-4,0	31,2
Straat locaties							
136				31,5	28,3	-3,1	27,8
236	40,5	35,4	-5,1	38,1	33,2	-4,9	33,7
237	37,8	33,0	-4,8	38,5	33,5	-4,9	31,8
240				43,3	37,4**	-5,9	34,7
433	30,7	29,4	-1,2	29,0	27,8	-1,2	26,3
445	44,5	38,8	-5,7	42,1	36,7	-5,5	37,9
447				33,3	29,0	-4,4	28,8
448				36,4	33,6	-2,8	34,0
537	38,7	33,7	-5,0	39,0	33,9	-5,1	36,5
544				26,9	24,9	-2,1	26,5
636	34,5	30,1	-4,4	31,0	27,0	-4,0	31,6
639	34,8	30,3	-4,4	38,7	33,6	-5,0	32,8
641	40,5	35,2	-5,3	33,8	32,3	-1,5	32,6
741	37,3	32,6	-4,7	39,2	34,2	-5,0	37,7
937	35,1	30,6	-4,5	34,6	30,1	-4,5	33,8
Gemiddeld	37,4	32,9	-4,5	35,7	31,7	-4,0	32,4

*) Een deel van de metingen op dit station zijn met een factor 1,27 gecorrigeerd vanwege een niet goed functionerende monitor. Zie ook paragraaf 2.6.

**) Door een niet te corrigeren monitor is een deel van de zomerdata van station 240 afgekeurd. Zie ook paragraaf 2.6.

Bijlage 3 PM₁₀-concentraties: LML versus CAR/GCN

Om een indruk te krijgen van de mate waarin de resultaten van CAR en het LML voor PM₁₀ een consistent geheel vormen zijn CAR berekeningen en GCN achtergronden op een aantal straat- en stadstations van het Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit (LML) vergeleken met metingen op het LML. Dit is eerst voor de oude kalibratie (kalibratiefactor 1,33) van het LML gedaan, zoals die in de jaren tot en met 2003 in gebruik was. Vervolgens is een vergelijking gemaakt tussen CAR en LML met de Europese omrekeningsfactor van 1,3 zoals die in 2006 voor de jaren 2004-2005 is gebruikt (hervalidatie 2006). Uiteindelijk is de consistentie bepaald na de huidige kalibratie van het LML.

Straatstations

Alle CAR-berekeningen zijn gebaseerd op de verkeersgegevens die in het kader van de CAR vergelijkingstudie zijn verzameld. De berekeningen zijn verricht met CAR II, versie 5.0 van 2006. Om te voorkomen dat veranderingen in het meetnet, in het bijzonder de toename van het aantal (straat)stations, de effecten van wijzigingen in de kalibratie overstemmen is voor de huidige analyse met een subset van stations gewerkt. Hierbij zijn de stations gekozen waarvoor sedert minimaal 2002 of 2003 gegevens beschikbaar zijn. De met CAR berekende totale PM₁₀-concentraties zijn hieronder voor de verschillende stations en jaren weergegeven, alle eenheden zijn in $\mu\text{g}/\text{m}^3$:

Tabel B3.1 CAR-berekeningen voor straatlocaties voor de jaren 2002 tot 2006

LML STATION	CAR 2002	CAR 2003	CAR 2004	CAR 2005
236	42	42	31	34
237	43	43	32	35
433	40	44	33	34
445	45	51	40	39
537	41	43	33	33
544	45	48	38	37
639	42	43	33	34
741	43	42	33	34

De meetdata voor de jaren 2002/2003 zijn de toen gerapporteerde jaargemiddelden. De data voor 2004/2005 zijn de meetdata zoals vastgesteld na de hervalidatie in begin 2006. Vervolgens worden de jaargemiddelden weergegeven na de kalibratie van begin 2007. De gemarkeerde data voldoen niet aan de regels van de EU ten aanzien van 90% databeschikbaarheid.

Tabel B3.2 LML-metwaarden voor straatstations voor de jaren 2002 tot 2007

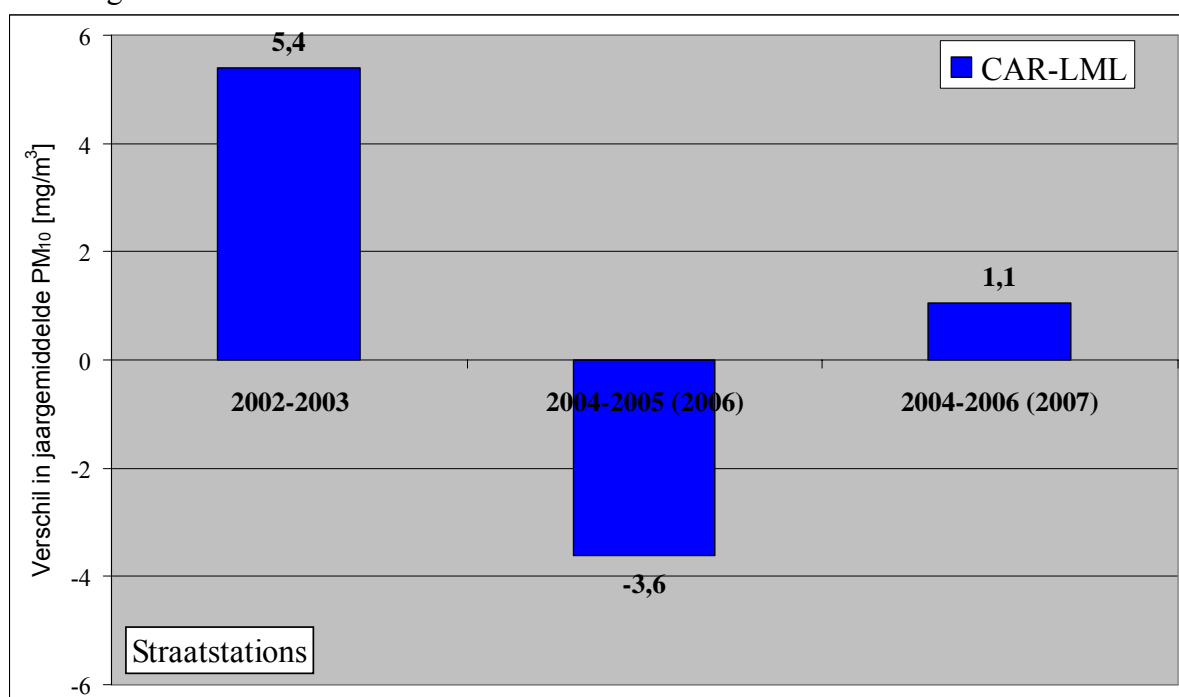
STATION	LML 2002	LML 2003	LML 2004	LML 2005	LML 2004	LML 2005	LML 2006
	Oude kalibratie		Hervalidatie 2006		Kalibratie 2007		
236	37	40	40	38	35	33	34
237		36	38	38	33	34	32
433	32	37	31	29	29	28	26
445		49	44	42	39	37	38
537		37	39	39	34	34	37
639	37	39	35	39	30	34	33
741		36	37	39	33	34	38

Met alle getallen is per jaar en station het verschil bepaald tussen de met CAR berekende en de op het LML gemeten concentraties. Voor de oude situatie zijn de berekende verschillen voor 2002 en 2003 gemiddeld. Voor de situatie van de hervalidatie van 2006 zijn de gemiddelde verschillen over de jaren 2004 en 2005 genomen. Voor de analyse van de huidige kalibratie zijn de gegevens voor 2004, 2005 en 2006 gebruikt. Hierbij is voor de eerste twee jaren in rekening gebracht dat de concentraties op de regiostations met de huidige kalibratie gemiddeld iets omlaag gaan. Voor 2004 is dat circa $0,4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ en voor 2005 is dat circa $0,2 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Omdat de PM_{10} -achtergronden in GCN in principe met de concentraties schalen is aangenomen dat de totale concentraties in de CAR berekeningen met eenzelfde aantal $\mu\text{g}/\text{m}^3$ dalen. De resterende verschillen tussen CAR en LML zijn dan:

Tabel B3.3 Resterend verschil CAR-LML voor straatlocaties

Periode en kalibratie	Vershil ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
2002-2003	5.4
2004-2005 (2006)	-3.6
2004-2005 (2007)	1.1

In een figuur is dat:



Figuur B3.1 Resterend verschil CAR-LML voor straatlocaties

Geconstateerd kan worden dat CAR en LML met de vorige en huidige kalibratie voor de gekozen set van stations gemiddeld steeds dichterbij elkaar komen te liggen. Waar eerst sprake was van een substantiële overschatting van de concentraties in de straten was er daarna sprake van een beperkte onderschatting en zijn de huidige gemiddelde concentratieniveaus van CAR en LML in goede overeenstemming.

Stadstations

Met behulp van CAR II, versie 5.0, zijn de jaargemiddelde achtergrondconcentraties volgens GCN bepaald op de locaties van stadstations.

Tabel B3.4 CAR-berekeningen voor stadsachtergrondlocaties voor de jaren 2002 tot 2007

Station	GCN/CAR 2002	GCN/CAR 2003	GCN/CAR 2004	GCN/CAR 2005	GCN/CAR 2006
137	32	34	27	28	29
241	36	36	27	29	30
404	36	38	28	28	30
418	39	41	32	31	33
441	36	36	28	28	30
446	35	38	29	29	30
520	36	40	30	30	31

De op het LML gemeten concentraties zijn gebaseerd op dezelfde bronnen als voor de straatstations. Voor de oude kalibratie en de nieuwe kalibratie:

Tabel B3.5 LML-meetwaarden voor stadsachtergrondstations voor de jaren 2002 tot 2007 met verschillende kalibraties

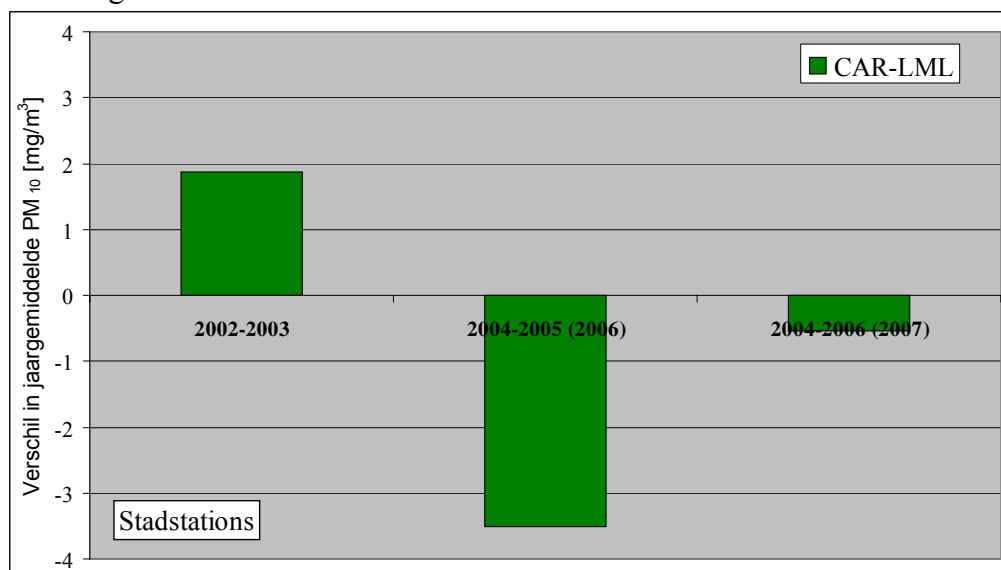
Station	LML 2002	LML 2003	LML 2004	LML 2005	LML 2004	LML 2005	LML 2006
	Oude kalibratie		Hervalidatie 2006		Kalibratie 2007		
137			33	33		29	31
241							33
404	35	37	36	33	31	29	
418	39	43			33	32	33
441	36	31	31	29	27	25	29
446				29			26
520	32	34	32	31	28		34

Geheel analoog aan eerder kan nu de gemiddelde afwijking tussen GCN en LML worden bepaald voor de verschillende kalibraties:

Tabel B3.6 Resterend verschil CAR-LML voor stadsachtergrondlocaties

Periode en kalibratie	Vershil ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) (zonder lokale bijdrage)	Vershil ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) (met lokale bijdrage)
2002-2003	1,9	2,3
2004-2005 (2006)	-3,5	-3,1
2004-2005 (2007)	-0,5	-0,1

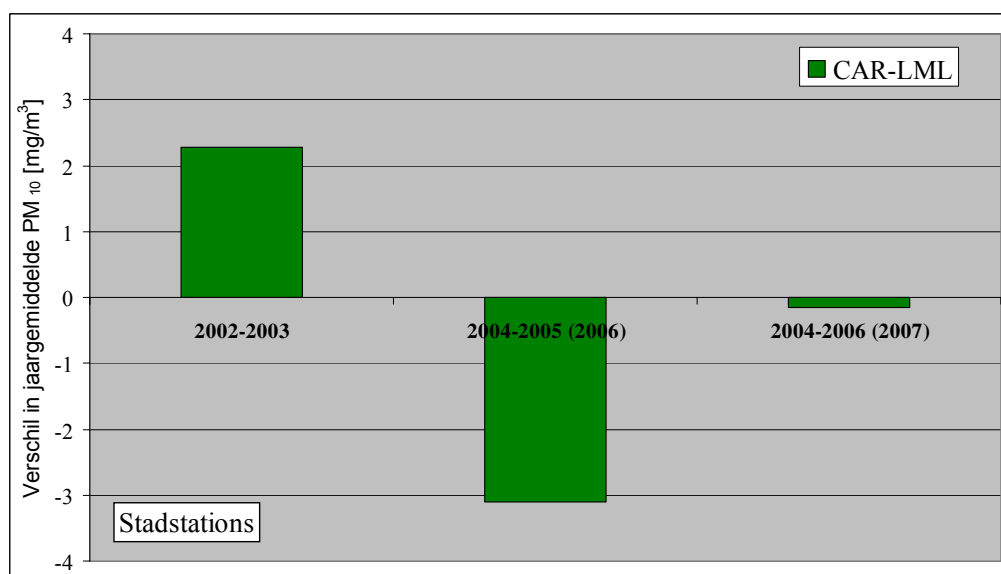
In een figuur is dat:



Figuur B3.2 Resterend verschil CAR-LML voor stadsachtergrondlocaties

In tegenstelling tot de eerdere vergelijking voor de straatstations is er geen sprake van een 'continue' afname van het absolute verschil tussen LML en GCN. In absolute zin is het verschil volgens de huidige kalibratie uit 2007 wel kleiner dan met de eerdere kalibraties het geval was.

In de praktijk worden de meeste stadsstations in meer of mindere mate door lokaal verkeer worden belast. Om een idee te krijgen van de mate waarin dit het geval is zijn CAR berekeningen uitgevoerd op de betreffende locaties ingeval voor een lokale belasting door 1500-2500 voertuigen per etmaal waarvan 1% middelzwaar en 1% zwaar verkeer. Voor PM₁₀ levert dit een belasting van circa 0,4 µg/m³ op. Deze lokale bijdrage moet eigenlijk in rekening worden gebracht om CAR/GCN zuiver met het LML te vergelijken. Het resultaat is als volgt:



Figuur B3.3 Resterend verschil CAR-LML voor stadsachtergrondlocaties met correctie voor lokale bijdragen

Conclusie

- In de jaren 2002/2003 berekende het CAR modelconcentraties die gemiddeld voor straatstations respectievelijk stadstations 5,4 en 2,3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ hoger waren dan de toen gerapporteerde meetwaarden;
- Na de hervalidatie 2006 en als gevolg van de geconstateerde daling in de GCN kaarten waren CAR berekeningen voor 2004/2005 gemiddeld 3,6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ respectievelijk 3,1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ lager dan de toen gerapporteerde meetwaarden;
- Na de huidige kalibratie van de meetwaarden en de geschatte corresponderende schaling van de GCN zijn nu de CAR berekeningen op straatstations over 2004/2006 1,1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ hoger dan de meetwaarden. Op de locaties van de stadsstations zijn de berekende concentraties gemiddeld 0,1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ lager dan de metingen op het LML.

Bijlage 4 Berekening relatie PM₁₀-jaargemiddelde en etmaalnorm

Aan de hand van PM₁₀-metingen is in 2006 de volgende relatie afgeleid tussen de jaargemiddeldeconcentratie \bar{C} ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) en de etmaalnorm, het aantal overschrijdingsdagen N in een jaar (het aantal dagen dat de daggemiddelde concentratie PM₁₀ boven de norm van $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ komt):

kritische waarden $N_k = 35$ dagen, $C_k = 31,2 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $C_0 = 16 \mu\text{g}/\text{m}^3$

$$\bar{C} > C_k \quad : \quad N = 5,367\bar{C} - 132,4$$

$$C_0 \leq \bar{C} \leq C_k \quad : \quad N = 0,10498(\bar{C} - C_k)^2 + 3,1092(\bar{C} - C_k) + N_k$$

$$\bar{C} < C_0 \quad : \quad N = 12 \text{ dagen}$$

Deze relatie is in het 'Meet- en rekenvoorschrift bevoegdheden luchtkwaliteit' opgenomen. De 'kritische' jaargemiddeldeconcentratie $C_k = 31,2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ is van belang aangezien uit de relatie volgt dat bij hogere jaargemiddeldeconcentraties statistisch sprake is van een overschrijding van de etmaalnorm.

Na de kalibratie van de PM₁₀-metingen is er een nieuwe dataset beschikbaar gekomen voor de jaren 1998-2005. Het belangrijkste gevolg van de kalibratie kan zijn dat de jaargemiddelde concentratie waarbij de etmaalnorm wordt overschreden gaat veranderen. Om te onderzoeken of dit met de nieuwe cijfers het geval is zijn de nieuwe gekalibreerde jaargemiddelde concentraties en de bijbehorende aantallen overschrijdingen van de etmaalnorm geanalyseerd. Hierbij is alleen uitgegaan van stations met meer dan 90% geldige meetdagen per jaar.

Als eerste is een lineaire fit gemaakt van de relatie tussen de jaargemiddeldeconcentratie en het aantal overschrijdingen van de etmaalnorm voor die situaties waarbij de jaargemiddelde concentratie boven $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ligt. Dit komt het meeste overeen met de dataset zoals die enkele jaren geleden beschikbaar was. In deze analyse wordt een nieuwe 'kritische' jaargemiddeldeconcentratie gevonden van $30,91 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Deze waarde ligt dicht bij de waarde van $C_k = 31,2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ zoals in 2006 is bepaald. Vervolgens zijn fits aan alle beschikbare data gemaakt met behulp van tweede en derde orde polynomen. De daaruit resulterende kritische concentraties zijn hieronder vermeld.

Tabel B4.1 Kritische concentraties bij verschillende fits

Fit	kritische concentratie [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]
Fit t/m 2006	31.20
lineair, $C > 30 \mu\text{g}/\text{m}^3$	30.91
2 ^e orde	30.93
3 ^e orde	30.92

Het veranderen van de waarde van de 'kritische' jaargemiddeldeconcentratie maakt dat alle toetsingen of de etmaalnorm wordt overschreden ook veranderen. Vanwege de betrekkelijk geringe verandering van de waarde van de 'kritische' jaargemiddeldeconcentratie is deze niet aangepast en zijn, net als in 2006, aparte fits gemaakt voor de delen onder en boven deze concentratie. Voor het gedeelte boven de kritische concentratie is een lineaire relatie gebruikt.

De nieuwe relatie is nu als volgt:

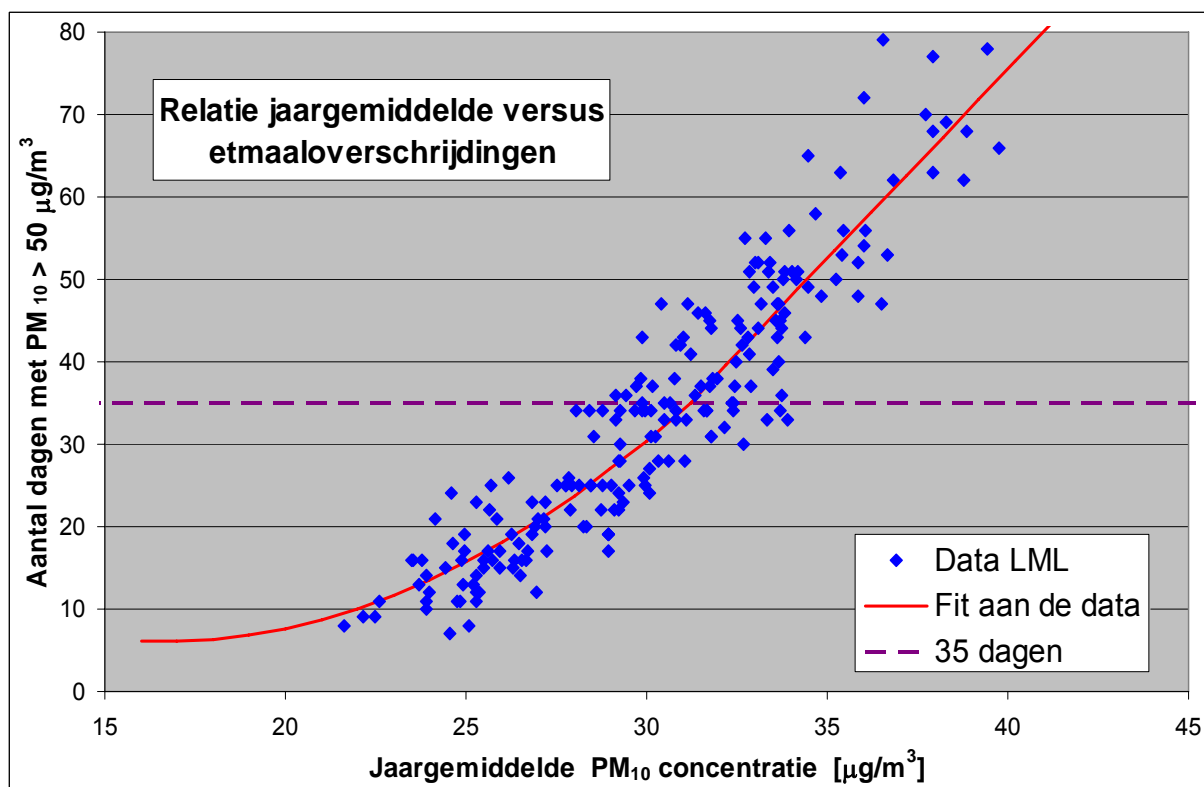
kritische waarden $N_k = 35$ dagen, $C_k = 31,2 \mu\text{g}/\text{m}^3$, $C_0 = 16 \mu\text{g}/\text{m}^3$;

$$\bar{C} > C_k \quad : \quad N = 4,6128\bar{C} - 108,92$$

$$C_0 \leq \bar{C} \leq C_k \quad : \quad N = 0,13401(\bar{C} - C_k)^2 + 3,9427(\bar{C} - C_k) + N_k$$

$$\bar{C} < C_0 \quad : \quad N = 6 \text{ dagen.}$$

Een belangrijk effect van de kalibratie op de relatie tussen de jaargemiddeldeconcentratie en de etmaalnorm is dat het aantal overschrijdingen van de etmaalnorm bij lagere jaargemiddeldeconcentraties iets afneemt. In Figuur 5 zijn de nieuwe data en de fit weergegeven.



Figuur B4.1 Relatie tussen jaargemiddeldeconcentratie en aantal overschrijdingsdagen; alle beschikbare LML stations met meer dan 90% meetdagen, voor meetdata gekalibreerd begin 2007.