

BUNDESAMT FÜR UMWELT, WALD UND LANDSCHAFT (BUWAL)

PM10-UMRECHNUNGSMODELLE FÜR TEOM- UND BETAMETER- MESSREIHEN

KOOPERATION KANTONE AG, BL,
BS, GR, LU, ZH, STADT ZH, EMPA

Kurzfassung

Zürich/Bern, 21. Januar 2005

Jürg Heldstab, INFRAS

Marx Stampfli, stampfli MATHEMATICS

KURZFASSUNG SCHLUSSBERICHT-050121.DOC

stampfli
MATHEMATICS

STAMPFLI MATHEMATICS
BERNER TECHNOPARK,
MORGENSTRASSE 129,
CH-3018 BERN,

t +41 31 998 45 55,
STAMPFLI@MATHEMATICS.CH

INFRAS

INFRAS

GERECHTIGKEITSGASSE 20
POSTFACH
CH-8039 ZÜRICH
t +41 1 205 95 95
f +41 1 205 95 99
ZUERICH@INFRAS.CH

MÜHLEMATTSTRASSE 45
CH-3007 BERN

WWW.INFRAS.CH

PM10-UMRECHNUNGSMODELLE FÜR TEOM- UND BETAMETER- MESSREIHEN

KOOPERATION KANTONE AG, BL, BS, GR, LU, ZH, STADT ZH, EMPA

Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft (BUWAL)

Entwurf Schlussbericht, Zürich/Bern, 21. Januar 2005

Mitwirkende

Hugo Amacker, BUWAL (Auftraggeber)

Robert Gehrig, EMPA

Hanspeter Lötscher, ANU Kt. GR

Markus Meier, Roy Eugster, AWEL Kt. ZH

Hansruedi Moser, LHA Kte. BS/BL

Susanne Schlatter, GUD Stadt Zürich

Thomas Zünd, Peter Böhler, innet AG

Autoren

Jürg Heldstab, INFRAS

Marx Stampfli, stampfli MATHEMATICS

Kurzfassung Schlussbericht-050121.doc

INHALT

1.	AUSGANGSLAGE	5
2.	RESULTATE	5
2.1.	UMRECHNUNGSMODELLE FÜR TEOM-GERÄTE	5
2.2.	UMRECHNUNGSMODELLE FÜR BETAMETER-GERÄTE	6
2.3.	EUROPÄISCHE VERGLEICHSMESSUNGEN	7
3.	EMPFEHLUNGEN	8
3.1.	TEOM-GERÄTE	8
3.1.1.	Empfehlung für Stationen mit Teom, aber ohne HVS	8
3.1.2.	Empfehlung für Stationen mit Teom und mit HVS für ein Jahr	9
3.1.3.	Empfehlung für Stationen mit Teom und mit permanentem HVS	9
3.2.	EMPFEHLUNGEN FÜR BETAMETER-GERÄTE	10
3.2.1.	Empfehlung für Stationen mit Betameter, aber ohne HVS	10
3.2.2.	Empfehlung für Stationen mit Betameter und mit HVS für ein Jahr	10
3.2.3.	Empfehlung für Stationen mit Betameter und mit permanentem HVS	11
4.	AUSBLICK	12
	LITERATUR	13

1. AUSGANGSLAGE

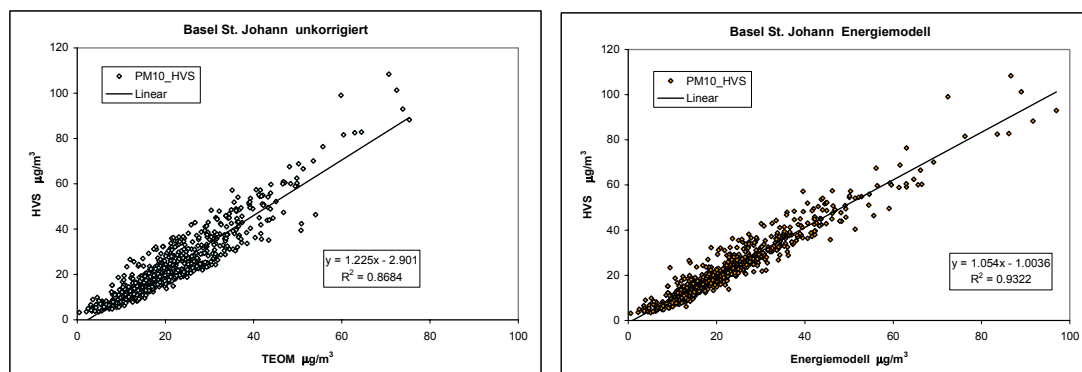
PM10-Vergleichsmessungen (High Volume Sampler als Referenzgeräte, Teom- und Betameter- als Testgeräte) von mehreren Stationen in der Schweiz aus der Periode 1999-2001 wurden im Auftrag des BUWAL ausgewertet und publiziert (BUWAL 2001). Hauptresultate waren Umrechnungsmodelle, um Teom- und Betameter-Datenreihen möglichst gut den HVS-Referenzwerten anzugleichen. Die Vergleichsmessungen wurden in den Folgejahren weitergeführt, ebenso die Auswertungen. Dabei konnten bisherige Modelle verifiziert und neue Modelle vorgeschlagen werden. Die Resultate der neuen statistischen Analysen sind in einem Hauptbericht dokumentiert (BUWAL 2005) und im vorliegenden Papier zusammengefasst.

2. RESULTATE

2.1. UMRECHNUNGSMODELLE FÜR TEOM-GERÄTE

Für Teom-Geräte wird ein neues Umrechnungsmodell unter der Bezeichnung „Energiemodell“ vorgeschlagen. Es besitzt ebenso gute oder bessere Eigenschaften wie das frühere empfohlene „Periodenmodell“ und ist dem gegenüber einfacher in der Umsetzung. Kernstück ist ein Produktterm aus Temperatur und PM10-Messwert (der proportional zu einer Energie ist). Die Korrelation zwischen den modellierten Daten und den HVS-Daten liegt im Intervall $R^2 = 0.86$ bis 0.94 . Das Modell kann nicht nur für die Umrechnung von Tagesmittelwerten benutzt werden, sondern auch für höhere zeitliche Auflösungen (z.B. Halbstundenwerte). Die Parameterwerte streuen zwischen verschiedenen Stationen nur wenig, sodass sich ein regionales Modell definieren lässt.

Ein Beispiel für die Qualität des Energiemodells zeigt Figur 1 für die Station Basel St. Johann. Auf der x-Achse sind die unkorrigierten respektive die modellierten Teom-Werte, auf der y-Achse HVS-Werte aufgetragen.



Figur 1 Scatterplots HVS-Teom für die Messstation Basel St. Johann: unkorrigierte Teom Daten (links), Energie-modellierte Daten (rechts)

Die bisherigen Teom-Modelle (Korrekturfaktor- und Periodenmodell) wurden verifiziert. Kleine Abweichungen in den früheren berechneten Parameter können zumindest teilweise auf die neu gefundene Abhängigkeit vom Alter des Nafion-Dryers zurückgeführt werden.

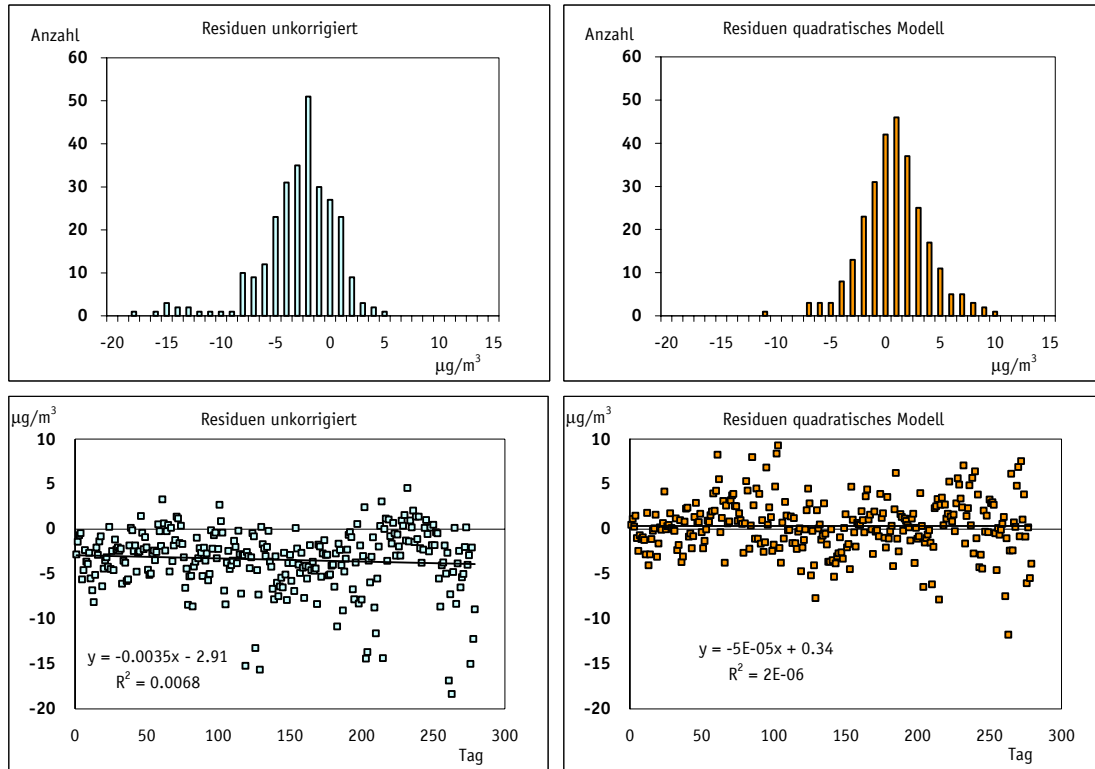
Erste Resultate für Teom-Geräte mit dem neuen Filter Dynamics Measurement System (FDMS) deuten daraufhin, dass solcherart ausgerüstete Teom gleichwertig zum Referenzgerät sind und damit keine Umrechnungen mehr erfordern.

2.2. UMRECHNUNGSMODELLE FÜR BETAMETER-GERÄTE

Für Betameter-Geräte wurde erstmals ein Zusammenhang gefunden, welcher sich für die Bestimmung eines regionalen Modells eignet. Der k-Faktor, d.h. der Quotient aus HVS und Betameter, hängt quadratisch von der Temperatur und linear von der Feuchte ab.

Auch einfachere, lineare Modelle sind zwar sehr gut, besitzen Korrelationen, die teilweise über dem Wert $R^2 \geq 0.95$ liegen (wie er für die Gleichwertigkeit mit der Referenzmethode gefordert ist), streuen aber in den Regressionskoeffizienten von Station zu Station zu stark, um auf ein regionales Modell verallgemeinert werden zu können. Dieses Ergebnis trifft nicht nur für Regressionen nach der Methode der kleinsten Quadrate, sondern auch für robuste Regressionen zu. Andere Modellansätze wie ein konstanter Korrekturfaktor oder Korrekturfaktoren mit linearer Abhängigkeit von weiteren Messgrößen (andere Luftschadstoffe, meteorologische Größen) schneiden im Vergleich mit dem quadratischen Modell schlechter ab und haben zudem lokal sehr unterschiedliche Regressionskoeffizienten.

Figur 2 zeigt die Qualität des quadratischen Modells am Beispiel von Basel.



Figur 2 Basel-Binningen, Häufigkeitsverteilung der Residuen. Links oben unkorrigierte Betameter-Messwerte, rechts mit dem lokalen quadratischen Modell korrigierte Daten. Die Verteilung verbessert sich Richtung Normalverteilung. Unten die Residuen in Funktion der Zeit (Tage). Die Wirkung des Modells schwächt - wie erwünscht - die Autokorrelationen ab.

Werden die k-Faktoren verschiedener Stationen miteinander korreliert, so zeigen sich mehr oder weniger starke Zusammenhänge zwischen den Stationen. Dies eröffnet die Möglichkeit, für Stationen mit nur einem Betameter-Gerät, das in der näheren Umgebung einer Referenzstation (mit Betameter und HVS) liegt, eine Umrechnung via k-Faktor der Referenzstation vorzunehmen.

An der EMPA wurde für das NABEL-Messnetz eine Umrechnungsvorschrift entwickelt, die aus den permanent messenden Betameter-Geräten der NABEL-Stationen mit Hilfe der ebenso vorhandenen, aber nur vier-täglich messenden HVS-Geräten Modellreihen erzeugt, welche die Bedingungen für Gleichwertigkeit erfüllen.

2.3. EUROPÄISCHE VERGLEICHSMESSUNGEN

Die Empfehlungen der EC Working Group on Particulate Matter aus dem Jahr 2001 (EC PM 2001) wurden bisher nicht aktualisiert: Es sollen lokale Modelle entwickelt oder Teom- und Betameter-Messdaten mit dem Faktor 1.3 umgerechnet werden, falls keine Parallelmessungen vorhanden sind.

3. EMPFEHLUNGEN

3.1. TEOM-GERÄTE

Bemerkung: Alle empfohlenen Umrechnungsmodelle für Teom-Geräte sind unabhängig von den **Bezugsbedingungen**, d.h. es spielt keine Rolle, ob die Konzentrationsmessungen in den früheren (9°C, 950 hPa) oder in den aktuellen Bezugsbedingungen (20°C, 1013 hPa) dargestellt sind.

3.1.1. EMPFEHLUNG FÜR STATIONEN MIT TEOM, ABER OHNE HVS

TEOM (TAGES- UND HALBSTUNDENMITTELWERTE)	
Geräteausrüstung	Modellempfehlung
	Y: Modellwert Tages- oder Halbstundenmittel ($\mu\text{g}/\text{m}^3$), X: Tagesmittel oder Halbstundenmittel Teom-Messwerte ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
Teom mit Nafion-Dryer (Mittelland, Jura)	Energiemodell: 1. Betriebsjahr Nafion $Y = (1.35 - 0.014T) \cdot X$ 2. Betriebsjahr Nafion $Y = (1.36 - 0.012T) \cdot X$ T Temperatur in °C
Teom mit Nafion-Dryer und FDMS	Mit grosser Wahrscheinlichkeit keine Umrechnung mehr nötig.
Teom ohne Nafion-Dryer (Mittelland, Jura)	Seit 2002 keine Teom-Geräte ohne Nafion mehr in Vergleichsversuchen, deshalb Empfehlung bisheriges Periodenmodell für Tagesmittel $Y_{per}(t) := X(t) \cdot \left[1.27 - 0.30 \cdot \sin\left(2\pi \cdot \frac{t - t_0 - 7.8d}{365} \right) \right]$ $t - t_0$: Differenz zwischen Messdatum und 21. März (Funktion DateDiff) für Halbstundenmittel siehe in-LUFT (2002)

Tabelle 1 Teom-Modellempfehlung für Tages und Halbstundenwerte

Hinweis zur Umrechnung Halbstundenmittel: Wenn die Umrechnung auf Halbstundenwerten erfolgt, werden Modell-Tageswerte durch arithmetische Mittelwertbildung der modellierten Halbstundenwerte erzeugt (nicht zweimal umrechnen).

TEOM (JAHRESMITTELWERTE)	
Geräteausrüstung	Modellempfehlung Y: Modellwert Jahresmittel ($\mu\text{g}/\text{m}^3$), X: Jahresmittel Teom-Messwerte ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
Teom mit Nafion-Dryer (Mittelland, Jura)	Korrekturfaktormodell: 1. Betriebsjahr Nafion $Y = 1.16 \cdot X$ 2. Betriebsjahr Nafion $Y = 1.23 \cdot X$
Teom mit Nafion-Dryer und FDMS	Mit grosser Wahrscheinlichkeit keine Umrechnung mehr nötig.
Teom ohne Nafion-Dryer (Mittelland, Jura)	$Y = 1.27 \cdot X$

Tabelle 2 Teom-Modellempfehlung für Jahresmittelwerte

3.1.2. EMPFEHLUNG FÜR STATIONEN MIT TEOM UND MIT HVS FÜR EIN JAHR

Vergleich einer ein-jährigen Parallelmessung Teom/HVS:

- › Falls die unkorrigierte Messreihe die Bedingungen für Gleichwertigkeit nach CEN (1998) erfüllen (nur für Teom mit FDMS), braucht es keine Umrechnung.
- › Falls ein einfaches lokales, lineares Modell $Y = a + bX$ schon die Bedingungen für Gleichwertigkeit erfüllt (bisher allerdings nie beobachtet), das lineare Modell verwenden.
- › Wenn das lokale, lineare Modell die Bedingung $R^2 \geq 0.95$ nicht erfüllt, optimales lokales Energie- und lokales Periodenmodell bestimmen, d.h. die Regressionsparameter für

Energiemodell
$$Y = aX - bTX + c = (a - bT)X + c$$

Periodenmodell
$$Y_{Per}(t) := X(t) \cdot \left[A - B \cdot \sin\left(2\pi \cdot \frac{t - t_0 - C}{365}\right) \right]$$

bestimmen und mit den lokalen Modellen arbeiten. Der Vergleich der beiden Modellreihen erlaubt eine Modellüberwachung: Falls sich der k-Wert systematisch ändert, werden die Modellwerte divergieren.

3.1.3. EMPFEHLUNG FÜR STATIONEN MIT TEOM UND MIT PERMANENTEM HVS

Jährlich die lokale Energie- und Periodenmodelle gemäss obiger Empfehlung b) bestimmen. Erlaubt langfristige Verbesserung der Modellparameter bzw. deren Überwachung und Kontrolle. Eine solche Station kann auch als Referenzstation für benachbarte Stationen dienen.

Falls eine räumliche Korrelation zwischen den k-Werten der benachbarten Stationen mit der Referenzstation vorhanden ist, kann umgerechnet werden mit:

$$Y_{\text{Nachbar}} = kX_{\text{Nachbar}} = (\alpha + \beta k_{\text{Ref}})X_{\text{Nachbar}} \quad \text{mit } k_{\text{Ref}} = Y_{\text{Ref}} / X_{\text{Ref}}$$

Die Koeffizienten α und β sind aus den k-Faktoren der beiden Stationen durch lineare Regression zu bestimmen während eines Jahres, in dem an beiden Stationen Teom und HVS zur Verfügung stehen. Bevor ein solches Modell für die Routine-Messungen zum Einsatz kommt, muss es allerdings auf zeitliche Stabilität hin geprüft werden. Die bisher vorhandenen Vergleichsdaten reichen noch nicht über genügend lange Fristen hinaus.

3.2. EMPFEHLUNGEN FÜR BETAMETER-GERÄTE

Bemerkung: Nicht alle empfohlenen Umrechnungsmodelle für Betameter-Geräte sind unabhängig von den **Bezugsbedingungen**, d.h. die Regressionskoeffizienten sind abhängig davon, ob die Konzentrationsmessungen in den früheren (9°C, 950 hPa) oder in den aktuellen Bezugsbedingungen (20°C, 1013 hPa) angegeben sind. Wo eine Abhängigkeit besteht, wird unten darauf hingewiesen.

3.2.1. EMPFEHLUNG FÜR STATIONEN MIT BETAMETER, ABER OHNE HVS

BETAMETER
<p>Quadratisches Korrekturfaktormodell</p> $Y = k(T, F) \cdot X = \left(\frac{-0.778}{1000} \cdot T^2 + \frac{19.3}{1000} \cdot T + \frac{4.57}{1000} \cdot F + 0.787 \right) \cdot X$ <p>T: Tagesmitteltemperatur in °C F: Tagesmittel relative Feuchte in % Die Parametrisierung ist unabhängig von Bezugsbedingungen</p>

Tabelle 3 Betameter Modellempfehlung für Tagesmittelwerte

3.2.2. EMPFEHLUNG FÜR STATIONEN MIT BETAMETER UND MIT HVS FÜR EIN JAHR

Vergleich einer ein-jährigen Parallelmessung Betameter/HVS:

- › Falls die unkorrigierte Messreihe die Bedingungen für Gleichwertigkeit nach CEN (1998) erfüllen, braucht es keine Umrechnung.

- › Falls ein einfaches lokales, lineares Modell $Y = a + bX$ schon die Bedingungen für Gleichwertigkeit erfüllt, das lineare Modell verwenden. Falls die Residuen symmetrisch verteilt sind, reicht eine Berechnung mit der Methode der kleinsten Quadrate. Sie ist einfach mit Excel ausführbar und stimmt in den hier untersuchten Stationen mit den LRV-Parametern besser überein als die robuste Regression. Diese empfiehlt sich aber bei asymmetrischer Verteilung der Residuen (Ausführung z. B. mit dem Software Paket S+). Achtung: Im linearen Modell hängt der Wert des Regressionsparameters von den Bezugsbedingungen ab!¹
- › Wenn das lokale, lineare Modell die Bedingung $R^2 \geq 0.95$ nicht erfüllt, optimales quadratisches Korrekturfaktormodell bestimmen, d.h. die Regressionsparameter für

$$Y = k(T, F) \cdot X = \left(\frac{a}{1000} \cdot T^2 + \frac{b}{1000} \cdot T + \frac{c}{1000} \cdot F + d \right) \cdot X$$

bestimmen und mit dem lokalen Modell arbeiten (keine Abhängigkeit der Bezugsbedingungen).

3.2.3. EMPFEHLUNG FÜR STATIONEN MIT BETAMETER UND MIT PERMANENTEM HVS

Es wird empfohlen, die Betameter-Messreihen gemäss **NABEL-Methode** umzurechnen. Das HVS wird nur an jedem 4. Tage in Betrieb gesetzt. Für diese Tage werden die k-Faktoren berechnet. Für die übrigen Tage wird zwischen den k-Faktoren des Vortags und des Folgetags linear interpoliert. Einzelheiten siehe Gehrig et al. (2005). Die Ergebnisse des NABEL lassen erarten, dass mit dieser Umrechnung alle Bedingungen für die Gleichwertigkeit erfüllt werden können.

Eine solche Station kann auch als Referenzstation für benachbarte Stationen dienen. Falls eine räumliche Korrelation zwischen den k-Werten der benachbarten Stationen mit der Referenzstation vorhanden ist, kann umgerechnet werden mit:

$$Y_{Nachbar} = kX_{Nachbar} = (\alpha + \beta k_{Ref}) X_{Nachbar} \quad \text{mit } k_{Ref} = Y_{Ref} / X_{Ref}$$

1 Umrechnung: Beim Wechsel der Bezugsbedingungen $X \rightarrow X' = \xi X$ (beim Wechsel von bisherigen zu neuen Bezugsbedingungen ist $\xi = 1.026$) transformiert a wie folgt $a \rightarrow a' = \xi a$, während $b' = b$.

Die Koeffizienten α und β sind aus den k-Faktoren der beiden Stationen durch lineare Regression zu bestimmen während des einen Jahres, in dem an beiden Stationen Betameter und HVS zur Verfügung stehen. Vor der Benutzung des Modells ist die zeitliche Konstanz der Regressionsparameter zu untersuchen.

4. AUSBLICK

Die vorliegende Studie zeigt, dass sich für Teom-Geräte gute Umrechnungsmodelle angeben lassen. Falls für das Teom mit FDMS die Gleichwertigkeit nachgewiesen werden kann, werden in Zukunft die Messnetzbetreiber vermutlich ihre Geräte aufrüsten, sodass längerfristig keine Umrechnungen mehr nötig sein werden. Bis es aber so weit ist, können die hier empfohlenen Modelle zur Umrechnung dienen. Wo die Gleichwertigkeit nicht erreicht wird, sollen die Parallelmessungen HVS/Teom weitergeführt werden. Diese brauchen aber nicht durchgängig zu sein, sondern können periodisch oder stichprobenweise durchgeführt werden. Für Messdaten aus der Zeit vor der Aufrüstung, kann gemäss Empfehlungen umgerechnet werden. Bei allen Teom-Geräten mit Nafion-Dryer sollten Abhängigkeiten von dessen Alterungseffekten im Auge behalten werden. Die zur Verfügung stehenden Daten weisen im Durchschnitt aller Geräte auf einen kontinuierlichen Drift hin. Effektiv könnte aber die Änderung bei jedem Gerät sprunghaft erfolgen, was Konsequenzen auf die Umrechnungsvorschriften hätte.

Bei den Teom-Geräten wären weitere Parallelmessungen von Interesse, z.B. mit unterschiedlich alten Nafion-Dryern, um die Alterungsmerkmale zu verstehen, oder mit zwei FDMS-Geräten, um die Vergleichbarkeit von Verlusten flüchtiger Komponenten zu studieren (FDMS erlaubt die Bestimmung der Verluste).

Bei den Betametergeräten ist die Perspektive unsicherer. Zwar kann mit dem NABEL-Verfahren Gleichwertigkeit mit dem Referenzverfahren erzielt werden, aber kantonale und kommunale Behörden werden es sich vermutlich nicht leisten, in der heutigen, angespannten Finanzlage an ihren Stationen zwei Staubmessgeräte zu betreiben. Dieselben Fragen und Problem stellen sich nicht nur in der Schweiz, sondern auch im Ausland. Auch dort scheinen aber momentan keine einfachen Umrechnungsmethoden in Griffnähe zu sein. Man kann deshalb gespannt sein, ob sich längerfristig – wenn mehr Vergleichsdaten vorliegen – geeignete Methoden finden lassen.

Schliesslich wären Vergleichsmessungen für PM_{2.5} von grossem Interesse (Teom und Betameter). Solche sind in der Schweiz bisher noch nicht durchgeführt worden.

LITERATUR

- BUWAL 2001:** PM10-Umrechnungsmodelle für Teom- und Betameter-Messreihen PM10-Verleichsmessungen, Kooperation von Luftreinhalte-Fachstellen der Kantone AG, GR, LU, ZH, Stadt ZH, EMPA Dübendorf, Hauptbericht, INFRAS/stampfli MATHEMATICS im Auftrag BUWAL, Zürich, 9.10.2001.
- BUWAL 2005:** PM10-Umrechnungsmodelle für Teom- und Betameter-Messreihen PM10-Verleichsmessungen, Kooperation von Luftreinhalte-Fachstellen der Kantone AG, BS, BL, GR, LU, ZH, Stadt ZH, EMPA Dübendorf, Hauptbericht, INFRAS/stampfli MATHEMATICS im Auftrag BUWAL, Zürich.
- EC PM 2001:** EC Working Group on Particulate Matter, Guidance to Member States on PM10 Monitoring and Intercomparisons with the Reference Method, Martin Williams, Peter Bruckmann, 22.01.2001.
(<http://europa.eu.int/comm/environment/air/pdf/finalwgreporten.pdf>)
- CEN 1998:** Europäisches Komitee für Normung: Air quality – Determination of the PM10 fraction of suspended particulate matter. Reference method and field test procedure to demonstrate reference equivalence of measurement methods (EN 12341), CEN, Brüssel 1999
- Chang 2003:** C. T. Chang and C. J. Tsai, A model for the relative humidity effect on the readings of the PM10 beta-gauge monitor, Journal of Aerosol Science, Volume 34, Issue 12, December 2003, Pages 1685-1697
- Gehrig et al. 2005:** Gehrig R., Schwarzenbach B., Seitz T., Buchmann B., A new method to link PM10 concentrations from automatic monitors to the manual gravimetric reference method according to EN 12341, eingereicht bei Atmospheric Environment.
- in-LUFT 2002:** Technischer Bericht, stampfli MATHEMATICS im Auftrag in-LUFT, Bern, 6. Mai 2002.
- innnet 2004:** innnet-Monitoring AG, Erfahrungen mit dem TEOM FDMS, erfa Immissionen 2004, Thomas Zünd, Adligenswil