

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

Schlussbericht

Zürich/Bern, 21. Januar 2005

Jürg Heldstab, INFRAS

Marx Stampfli, stampfli MATHEMATICS

~\$50C-SCHLUSSBERICHT-050121-2.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

PM10-Schlussbericht-050121.doc

ÜBERSICHT

ZUSAMMENFASSUNG UND EMPFEHLUNG NEUER MODELLE	7
RESUMÉ ET RECOMMANDATION DE NOUVEAUX MODÈLES	9
SUMMARY AND RECOMMENDATIONS FOR NEW CORRECTION FUNCTIONS	13
1. EINLEITUNG	15
2. MESSPROGRAMM	17
3. METHODISCHES VORGEHEN	22
4. UMRECHNUNGSMODELLE FÜR TEOM-MESSREIHEN	25
5. UMRECHNUNGSMODELLE FÜR BETAMETER-MESSREIHEN	37
6. SCHLUSSFOLGERUNGEN, EMPFEHLUNGEN UND AUSBLICK	57
ANNEX ERGÄNZENDE MODELLRESULTATE	64
A1. TEOM-MESSREIHEN	64
A2. BETAMETER-MESSREIHEN	68
LITERATUR	73

INHALT

ZUSAMMENFASSUNG UND EMPFEHLUNG NEUER MODELLE	7
RESUMÉ ET RECOMMANDATION DE NOUVEAUX MODÈLES	9
SUMMARY AND RECOMMENDATIONS FOR NEW CORRECTION FUNCTIONS	13
1. EINLEITUNG	15
1.1. FORTSETZUNG FRÜHERER ANALYSEN - ZIELE	15
1.2. TECHNISCHE ENTWICKLUNGEN	16
2. MESSPROGRAMM	17
2.1. STANDORTE, MESSGERÄTE	17
2.2. MESSPERIODEN	17
2.2.1. Teom-Geräte	18
2.2.2. Betameter-Geräte	19
2.3. BEZUGSBEDINGUNGEN	20
2.3.1. PM10 (Betameter, Teom) und gasförmige Komponenten	20
2.3.2. PM10 (HVS)	20
3. METHODISCHES VORGEHEN	22
3.1. STATISTIK	22
3.2. TEOM-MESSREIHEN	22
3.3. BETAMETER-MESSREIHEN	23
3.4. WAHL DER AUSWERTUNGSPERIODEN	24
4. UMRECHNUNGSMODELLE FÜR TEOM-MESSREIHEN	25
4.1. DAS AUSSICHTSREICHSTE TEOM-MODELL	25
4.2. VERIFIKATION KORREKTURFAKTORMODELL	25
4.2.1. Modellstruktur	25
4.2.2. Resultate Korrekturfaktormodell	26
4.3. VERIFIKATION PERIODENMODELL	27
4.3.1. Modellstruktur	27
4.3.2. Resultate Periodenmodell	28
4.4. NEU: ENERGIEMODELL	29
4.4.1. Modellstruktur	29
4.4.2. Regressionsresultate	30
4.4.3. Vergleich des Energiemodells mit HVS Daten	30
4.5. MODELL DER EC WORKING GROUP ON PARTICULATE MATTER	34

4.6.	TEOM MIT FDMS	35
5.	UMRECHNUNGSMODELLE FÜR BETAMETER-MESSREIHEN	37
5.1.	DAS AUSSICHTSREICHSTE BETAMETER-MODELL	37
5.2.	LINEARE REGRESSIONSMODELLE	37
5.2.1.	Modellstruktur	37
5.2.2.	Zwei Regressionsmethoden	38
5.2.3.	Regression mit kleinsten Quadraten	38
5.2.4.	Regression mit robuster Methode	39
5.2.5.	Vergleich des linearen Modells mit HVS-Daten	40
5.3.	KORREKTURFAKTORMODELLE BETAMETER	41
5.3.1.	Modellstruktur	41
5.3.2.	Konstanter Korrekturfaktor	42
5.3.3.	Räumliche und Zeitliche Veränderungen des k-Faktors	43
5.3.4.	Multilineare Regression des K-Faktors	46
5.3.5.	Quadratische Regression des K-Faktors	48
5.3.6.	Modellvergleich	54
5.4.	UMRECHNUNGSMODELL NABEL	55
5.5.	EMPFEHLUNGEN DER EC WORKING GROUP ON PARTICULATE MATTER	55
6.	SCHLUSSFOLGERUNGEN, EMPFEHLUNGEN UND AUSBLICK	57
6.1.	SCHLUSSFOLGERUNGEN	57
6.1.1.	Teom-Geräte	57
6.1.2.	Betameter-Geräte	57
6.2.	MODELLEMPFEHLUNGEN	59
6.2.1.	Teom-Geräte	59
6.2.2.	Betameter-Geräte	61
6.3.	AUSBLICK	63
	ANNEX ERGÄNZENDE MODELLRESULTATE	64
	A1. TEOM-MESSREIHEN	64
A1.1	PERIODENMODELL	64
A1.2	ENERGIEMODELL	66
A1.3	ANALOGIE ENERGIEMODELL – PERIODENMODELL	67
	A2. BETAMETER-MESSREIHEN	68
A2.1	PRÜFUNG DER VORAUSSETZUNGEN FÜR REGRESSION	68
A2.2	REGRESSIONSRESULTATE MULTI-LINEARES MODELL	71

A2.3 RÄUMLICHE KORRELATION DER BETAMETER-STATIONEN _____	72
LITERATUR _____	73

ZUSAMMENFASSUNG UND EMPFEHLUNG NEUER MODELLE

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 auch in den Folgejahren weitergeführt, ebenso die Auswertungen. Der vorliegende Bericht dokumentiert die Resultate der neuen statistischen Analysen, Verifikation der bisherigen Modelle, Vorschlag und Empfehlungen für neue Modelle:

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 an den verschiedenen Stationen wenig, sodass sich ein regionales Modell definieren lässt.

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

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

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 gefordert ist), streuen aber in den Regressionskoeffizienten von Station zu Station zu stark, um für ein regionales Modell verallgemeinert werden zu können. Diese 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.

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-tägig messenden HVS-Geräten Modellreihen erzeugt, welche die Bedingungen für Gleichwertigkeit erfüllen.

Von Seite der europäischen Vergleichsversuche sind noch keine neuen Erkenntnisse bekannt. Die Empfehlungen aus dem Jahr 2001 (EC PM 2001) wurden seither nicht aktualisiert: Es sollen lokale Modelle entwickelt oder Teom- und Betameter-Messdaten mit dem Faktor 1.3 umgerechnet werden, falls keine Parallelmessungen vorhanden sind.

Die zwei wichtigsten Empfehlungen der vorliegenden Studie lauten:

EMPFEHLUNG FÜR REGIONALE UMRECHNUNGSMODELLE
<p>Teom-Geräte (mit Nafion-Dryer): „Energiemodell“ $Y = (1.35 - 0.014 \cdot T) \cdot X$ im 1. Betriebsjahr Nafion $Y = (1.36 - 0.012 \cdot T) \cdot X$ im 2. Betriebsjahr Nafion</p>
<p>Betameter-Geräte: „Quadratisches Korrekturfaktormodell“ $Y = k(T, F) \cdot X = \left(\frac{-0.778}{1000} \cdot T^2 + \frac{19.3}{1000} \cdot T + \frac{4.57}{1000} \cdot F + 0.787 \right) \cdot X$</p>
<p>Y: Modellwert Tages- oder Halbstundenmittel ($\mu\text{g}/\text{m}^3$), X: Tagesmittel oder Halbstundenmittel Teom- resp. Betameter-Messwerte ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) T: Tagesmitteltemperatur in °C F: Tagesmittel relative Feuchte in %</p>

Tabelle 1 Weitere Empfehlungen sind im Kapitel 6.2 gegeben.

RESUMÉ ET RECOMMANDATION DE NOUVEAUX MODÈLES

Durant la période 1999-2001, plusieurs stations suisses ont effectué des mesures de PM₁₀ par des méthodes gravimétriques manuelles avec des „High Volume Sampler“ (HVS), d’une part, et des appareils de mesures en continu comme le système TEOM (Tapered Element Oscillating Microbalance) par la variation de la fréquence de résonance ou des bétamètres, mesurant l’absorption des rayonnements β , d’autre part, afin d’en comparer les résultats. Les résultats des HVS servent de référence. À la demande de l’OFEFP (BUWAL), les résultats de ces mesures comparatives ont été évalués et publiés (BUWAL 2001). Ces mesures ont principalement livré des modèles de conversion devant permettre d’adapter au mieux les séries de données fournies par les appareils TEOM et les bétamètres aux valeurs de référence fournies par les HVS. Les mesures comparatives ainsi que leurs évaluations ont été poursuivies. Le présent rapport présente les résultats des dernières analyses statistiques et la vérification des modèles existants ainsi qu’une proposition et des recommandations pour de nouveaux modèles.

Un nouveau modèle de conversion est proposé pour les appareils TEOM sous le nom de „modèle énergétique“. Ses caractéristiques sont aussi bonnes voire meilleures que celles du „modèle périodique“ recommandé jusqu’ici; en outre, il est plus facile à utiliser. La partie essentielle du modèle est un terme constitué par le produit de la température et du résultat de la mesure de PM₁₀ (qui est proportionnel à l’énergie). La corrélation entre les données fournies par le modèle et les données HVS se situe dans l’intervalle $R^2 = 0,86$ à $0,94$. Le modèle peut être utilisé non seulement pour la conversion des valeurs journalières moyennes mais également pour des valeurs mesurées à des intervalles plus courts (p. ex. des valeurs semi-horaires). Les paramètres différant peu d’une station à l’autre, il est possible de définir un modèle régional.

Les modèles existants concernant les TEOM (modèle du facteur correctif et modèle périodique) ont été vérifiés. De légères déviations par rapport aux paramètres calculés précédemment peuvent, du moins en partie, être expliquées – cela vient d’être mis en évidence – par l’âge du sècheur Nafion.

Les premiers résultats concernant les Teom équipés du nouveau „Filter Dynamics Measurement System (FDMS)“ donnent à penser que de tels Teom sont équivalents aux instruments de référence, ce qui ne nécessitera plus de conversions.

En ce qui concerne les bétamètres, on a trouvé une relation convenant à la définition d'un modèle régional: le facteur k , c'est-à-dire le quotient HVS/bétamètre, est en effet une fonction quadratique de la température et une fonction linéaire de l'humidité.

Des modèles plus simples, linéaires, possédant parfois des corrélations supérieures à la valeur $R^2 \geq 0,95$ (comme cela est exigé par les conditions d'équivalence) sont également très bons, mais les coefficients de régression diffèrent trop d'une station à l'autre pour pouvoir être intégrés dans un modèle régional. Cela ne vaut pas uniquement pour les régressions effectuées au sens des moindres carrés mais également pour des régressions robustes. D'autres modèles comme celui d'un facteur correctif constant ou d'un facteur correctif dépendant linéairement d'autres valeurs mesurées (autres polluants de l'air, facteurs météorologiques) sont moins performants que le modèle quadratique; en outre, les coefficients de régression correspondants sont très différents d'un endroit à l'autre.

Si les facteurs k de plusieurs stations sont corrélés, on constate des relations plus ou moins importantes entre les stations. Dans ces conditions, il sera possible de procéder, pour les stations équipées uniquement d'un bétamètre et se trouvant à proximité d'une station de référence (avec bétamètre et HVS), à des conversions via le facteur k de la station de référence.

L'EMPA a élaboré pour le réseau NABEL une directive concernant les conversions et répondant aux conditions d'équivalence. Cette directive permet en effet d'établir des séries de données à partir des résultats obtenus avec les bétamètres des stations NABEL, mesurant en permanence, et à l'aide de ceux des HVS également présents dans lesdites stations mais ne mesurant que tous les quatre jours.

Rien de neuf en ce qui concerne les essais comparatifs européens, les recommandations de 2001 (EC PM 2001) n'ayant pas été actualisées: au sens de celles-ci, s'il n'est pas possible d'effectuer des mesures en parallèle, il faut développer des modèles locaux ou convertir les mesures des Teom et des bétamètres au moyen du facteur 1,3.

Voici les deux principales recommandations issues de la présente étude:

RECOMMANDATION POUR LES MODÈLES DE CONVERSION RÉGIONAUX
<p>TEOM (équipés de sècheurs Nafion): „modèle énergétique“</p> <p>$Y = (1.35 - 0.014 \cdot T) \cdot X$ durant la première année d'utilisation du Nafion $Y = (1.36 - 0.012 \cdot T) \cdot X$ durant la seconde année d'utilisation du Nafion</p>
<p>Bétamètres: „modèle quadratique du facteur de correction“</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>Y: moyenne journalière ou semi-horaire – résultat fourni par le modèle ($\mu\text{g}/\text{m}^3$), X: moyenne journalière ou semi-horaire – résultat fourni par les TEOM ou les bétamètres ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) T: température journalière moyenne en °C H: humidité relative journalière moyenne en %</p>

Table 2 D'autres recommandations figurent au 6.2.

SUMMARY AND RECOMMENDATIONS FOR NEW CORRECTION FUNCTIONS

Comparative PM10 measurements were taken at several stations in Switzerland over the period 1999-2001 using high volume samplers (reference instruments) and Teom and Betameters (test instruments). The results were then evaluated and published. This work was performed on contract to the SAEFL (BUWAL 2001). Correction functions are presented permitting sufficiently precise adjustment of the Teom and Betameter data to the HVS reference values. The comparative tests and evaluations were further pursued in subsequent years. The report presents the results of new statistical analyses, and includes verifications of previous, and suggestions and recommendations for new, functions.

For Teom meters, a new conversion function designated „energy function“ is put forward. The results of the new function prove to be at least as good as the previously recommended „period function“, and the method is easier to implement. The principal feature is a term consisting of the product of the temperature and the PM10 value. The new term is proportional to an energy value. The correlation between the adjusted and HVS data lies within the interval $R^2 = 0.86$ to 0.94 . The function can be applied to the conversion both of daily average values and values taken at shorter intervals (e.g. half-hourly values). The resulting parameters fluctuate only slightly between stations, permitting a regional function to be specified.

The existing Teom functions (correction factor function and periodic function) were verified. Minor deviations from previously calculated parameters could be attributed at least partly to the Nafion dryer, whose age was found to affect the results.

Initial Teom results using the new filter dynamics measurement system (FDMS) indicate that Teom meters equipped with this provide equal precision to reference meters, and do not therefore require further adjustment.

For Betameters, a new correction function was discovered that is suitable as the basis of a regional function. The k factor, i.e. the quotient of HVS and Betameter values, is a quadratic function of the temperature and a linear function of the humidity.

It was found that although linear functions are quite satisfactory, with correlation coefficients at or above $R^2 \geq 0.95$ (the value required for equivalence), the regression coefficients vary too greatly from one station to another to enable these to be generalised to obtain a regional model. This applies not only to regressions based on least squares, but also to more robust procedures. Other approaches such as the use of a constant correction factor or correction factors with linear dependency on other measured values (e.g. other pollutants

and meteorological values) proved to be less satisfactory than the least squares method. Furthermore, the regression coefficients of these vary greatly from one location to another.

A comparison of the k factors at different stations shows that these diverge to varying degrees. Where the values lie closer together, e.g. for reference stations and stations nearby, the Betameter values of the latter may be converted using the k factor of the reference station (which disposes of both Betameter and HVS meters).

The EMPA has developed a conversion algorithm for the NABEL measurement network permitting generation of a data series that satisfies the conditions for equivalence based on continuous measurements of Betameters and supplementary values from HVS meters (which, however, measure only at four-day intervals).

To our knowledge, no new results are as yet available from the comparative European tests. Furthermore, the 2001 recommendations (EC PM 2001) have not since been updated. Where parallel measurements are not available, it is recommended there to define local functions, or alternatively use the factor 1.3, to convert the Teom and Betameter data.

The two most important recommendations of this study are:

RECOMMENDATION FOR REGIONAL CORRECTION FUNCTIONS
<p>Teom meters (with Nafion dryer): „energy function“ $Y = (1.35 - 0.014 \cdot T) \cdot X$ in the first year of Nafion operation $Y = (1.36 - 0.012 \cdot T) \cdot X$ in the second year of Nafion operation</p>
<p>Betameters: „quadratic function“ $Y = k(T, F) \cdot X = \left(\frac{-0.778}{1000} \cdot T^2 + \frac{19.3}{1000} \cdot T + \frac{4.57}{1000} \cdot F + 0.787 \right) \cdot X$</p>
<p>Y: corrected daily or half-hourly average value ($\mu\text{g}/\text{m}^3$), X: daily or half-hourly average Teom and Betameter measurements ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) T: daily average temperature in $^{\circ}\text{C}$ F: daily average relative humidity in %</p>

Tabelle 3 Further recommendations are given in Chapter 6.2.

1. EINLEITUNG

1.1. FORTSETZUNG FRÜHERER ANALYSEN - ZIELE

Seit einigen Jahren werden in der Schweiz wie im Ausland PM10-Vergleichsmessungen durchgeführt. Anlass ist die Tatsache, dass die (gravimetrische) Referenzmethode (CEN 1999) aufwändig ist und nur eine beschränkte Zeitauflösung besitzt. Mit Monitoren kann die PM10-Konzentration heute kontinuierlich überwacht werden. Die beiden am häufigsten benutzten Monitoren, Teom und Betameter-Geräte, liefern jedoch Messreihen, die im Allgemeinen nicht gleichwertig zu den Referenzmessungen im Sinne der Norm CEN (1998) sind. Aus diesem Grund sind Umrechnungsmodelle gesucht, die die Differenzen so weit als möglich reduzieren.

Im Folgenden werden Auswertungen zu den schweizerischen Vergleichsmessungen vorgestellt. In einer Vorgängerstudie wurden bereits vor 3 Jahren Resultate publiziert (BUWAL 2001). Seither sind nicht nur die Vergleichsmessungen weitergelaufen, sondern es wurden auch weitere Stationen mit parallelen Messgeräten ausgerüstet (NABEL), sodass jetzt neue Auswertungen zu einem deutlich erweiterten Messdatensatz vorliegen.

Ziele der neuen Studie sind, erstens die in der Vorgängerstudie empfohlenen Umrechnungsmodelle zu verifizieren und zweitens verbesserte Modelle namentlich für die Betameter-Geräte zu suchen. Es sollen Gemeinsamkeiten in den Abweichungen identifiziert und Modelle entwickelt werden, die innerhalb einer Region zu einer Annäherung der Datenreihe (Teom, Betameter) an eine Referenz-Datenreihe (HVS) führen. Diese Modelle sollen in der Folge auch an Standorten benutzt werden können, an denen kein Referenzgerät zur Verfügung steht. Als Bezug zur Norm EN12341 wird dabei nur auf das Kriterium „Gleichwertigkeit mit dem Testgerät“, $R^2 \geq 0.95$ (siehe unten), geachtet.

Es geht demnach in dieser Studie nicht darum, für die einzelnen Stationen das optimale Modell zu finden und ggf. die Gleichwertigkeit mit der Referenzmethode nachzuweisen.

Um die Gleichwertigkeit nachzuweisen, müssen je nach Fragestellung eine oder mehrere der folgenden Bedingungen erfüllt sein (CEN 1998, Ziff. 4.2, 5.2.4):

- › **Vergleichbarkeit von Testgeräten:** Statistischer Test für die Unsicherheit (95%-Vertrauensniveau): $\leq 5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ wenn die Mittelwerte der beiden Konzentrationen $(X_{i1}+X_{i2})/2$, die durch die Doppelbestimmung mit nebeneinander aufgestellten Testgeräten ermittelt wurden $\leq 100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ betragen, oder $\leq 5 \%$ der Mittelwerte der beiden Konzentrationen, wenn diese $> 100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ betragen.

- › **Vergleichbarkeit mit einem Referenzgerät:** Begrenzung der Referenz-Äquivalenz-Funktion im betreffenden Konzentrationsbereich durch einen beidseitig begrenzten Akzeptanzbereich: $\leq 10 \mu\text{g}/\text{m}^3$, wenn die Referenzkonzentrationen $Y_i \leq 100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ betragen, oder $\leq 10 \%$, wenn die Referenzkonzentrationen $Y_i > 100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ betragen.
- › **Gleichwertigkeit für das Testgerät** ist erfüllt, wenn der Variationskoeffizient (das Bestimmtheitsmass) R^2 der berechneten Referenz-Äquivalenz-Funktion im betreffenden Konzentrationsbereich ≥ 0.95 ist und die berechnete Referenz-Äquivalenz-Funktion in den Grenzen des Akzeptanzbereichs liegt.

Wie oben erwähnt, wird für die Modellvalidierung der schweizerischen Vergleichsmessungen in der vorliegenden Studie nur auf die letzte Bedingung „Gleichwertigkeit mit Testgeräten“ getestet.

1.2. TECHNISCHE ENTWICKLUNGEN

Seit Publikation der Vorgängerstudie sind die Messmethoden der Teom-Geräte weiter entwickelt worden. Erstens hat sich der Nafion-Dryer (Sampling Equilibration System, SES) an allen Station mit Teom-Geräten durchgesetzt, mit dem Effekt, dass heute in den Vergleichsmessungen keine Teom ohne Nafions-Dryer mehr im Einsatz sind. Dies hat den Nachteil, dass das früher empfohlene Umrechnungsmodell für Teom ohne Nafion nicht verifiziert werden kann. Im Weiteren hat sich gezeigt, dass das Nafion-System einen Alterungsprozess durchmacht und nach ca. 2 Jahren Betriebszeit ersetzt werden sollte. Je älter das System ist, umso mehr verliert es von seinem Soll-Effekt. Deswegen muss das **Nafion-Alter** als neue Variable in das Umrechnungsmodell aufgenommen werden.

Gleichzeitig hat aber der Nafion-Dryer der technischen Weiterentwicklung des Systems einen neuen Weg geöffnet. Teom mit Nafion-Dryer können mit einem Filter Dynamics Measurement System (FDMS)¹ aufgerüstet werden. „Mit Hilfe des FDMS können Messungen der flüchtigen und nichtflüchtigen Bestandteile im PM10 getrennt voneinander, quasi kontinuierlich durchgeführt werden. Dies geschieht unter Benutzung eines Auto-Referenzzyklus und der echten Massebestimmung durch das TEOM-Verfahren.“² Die bisher vorliegenden Vergleichsmessungen deuten daraufhin, dass die Gleichwertigkeit des Systems mit dem Referenzverfahren ohne Umrechnung gewährleistet ist. Der Nachweis ist zur Zeit aber noch ausstehend.

1 FDMS siehe Website des Herstellers http://www.rpco.com/products/ambprod/brochures/brochure8500_pages.pdf

2 Zitiert aus http://www.mlu.at/de/geraete/8500_fdms_html.htm. Dort befindet sich auch eine kurze Beschreibung des Verfahrens auf deutsch.

2. MESSPROGRAMM

2.1. STANDORTE, MESSGERÄTE

Die folgende Tabelle zeigt, welche Messstationen PM10-Vergleichsversuche durchgeführt haben und teilweise noch durchführen.

Übersicht Messstationen			
Standort	Eigentümer	PM10 Geräte	
Chur-Industrie	ANU GR	HVS	Betameter
Davos-Matta	ANU GR	HVS	Betameter
Rothenbrunnen	ANU GR	HVS	Betameter
Roveredo	ANU GR	HVS	Betameter
Erstfeld MfM-U	MfM-U	HVS	Teom mit Nafion
Erstfeld MfM-U mobil	MfM-U	HVS	Teom mit Nafion
Luzern-Museggstrasse	in-LUFT	HVS	Teom ohne/mit Nafion
Sisseln	in-LUFT	HVS	Teom mit Nafion und FDMS
Suhr-Bärenmatte	in-LUFT	HVS	Teom ohne/mit Nafion
Basel Hard	LHA beider Basel	HVS	Betameter
Basel St. Johann	LHA beider Basel	HVS	Teom mit Nafion
Basel-Binningen	NABEL	HVS	Betameter
Bern	NABEL	HVS	Betameter
Chaumont	NABEL	HVS	Betameter
Duebendorf	NABEL	HVS	Betameter
Haerkingen	NABEL	HVS	Teom/Betameter
Lausanne	NABEL	HVS	Betameter
Lugano	NABEL	HVS	Betameter
Magadino	NABEL	HVS	Betameter
Payerne	NABEL	HVS	Betameter
Rigi-Seebodenalp	NABEL	HVS	Betameter
Sion-Aérodrome	NABEL	HVS	Betameter
Taenikon	NABEL	HVS	Betameter
Zuerich-Kaserne	NABEL	HVS	Betameter
Frauenfeld	AWEL	HVS	Teom mit Nafion
Zuerich-Stampfenbachstrasse	UGZ	HVS	Betameter
Reiden	MfM-U	HVS	Teom mit Nafion
Wallisellen-Dietlikonerstrasse	AWEL	HVS	Teom mit Nafion

Tabelle 4 Beteiligte Messstationen PM10-Vergleichsversuche

2.2. MESSPERIODEN

Der Vergleichsversuch wurde nicht zentral organisiert. Verschiedene, laufende Vergleichsversuche wurden auf Initiative des BUWAL koordiniert. Die Teilnahme der Versuchsteilnehmer sind deshalb nicht alle gleich. Zudem wurden während des Versuchs Teom Geräte mit einem Nafion-Dryer System aufgerüstet mit der Folge, dass Teom Geräte ohne Nafion zunehmend aus dem Versuch ausschieden.

In den folgenden Tabellen ist die Zahl der Tage angegeben, für die gültige Parallel-Tageswerte vorliegen, das heisst gleichzeitige Messwerte von HVS und Teom resp. Betameter.

2.2.1. TEOM-GERÄTE

a) Teomgeräte ohne Nafion-Dryer (SES)

Anzahl Tage mit gültigen Teom (ohne Nafion) / HVS Mittelwerten						
Messstation	1999	2000	2001	2002	2003	alle
	Tage					
Haerkingen	143	170	0	0	0	313
Luzern-Museggstrasse		208	78	0	0	286
Suhr-Bärenmatte	31	358	89	0	0	478
Wallisellen-Dietlikonerstrasse	0	161	0	0	0	161
alle	174	897	167	0	0	1238

Tabelle 5 Anzahl Messtage mit parallelen (Teom ohne Nafio-Dryer/HVS) gültigen Tagesmittelwerten

Ab 2002 sind in den Stationen mit Vergleichsmessungen **keine Teom-Geräte ohne Nafion Dryer** mehr in Betrieb. Damit ist es nicht mehr möglich, die bisherigen Umrechnungsmodelle zu verifizieren respektive die Modellparameter zu verbessern.

In Härkingen war das Teom nur für Vergleichszwecke mit dem Betameter und dem HVS aufgestellt gewesen. Seit 2001 arbeitet die Station mit Betameter und HVS ohne Teom. An den übrigen Stationen wurden die Teom-Geräte mit Nafion-Dryers ausgerüstet.

b) Teomgeräte mit Nafion-Dryer

Anzahl Tage mit gültigen Teom (mit Nafion) / HVS Mittelwerten						
Messstation	1999	2000	2001	2002	2003	alle
	Tage					
Basel St. Johann			349	360	88	797
Erstfeld MfM-U			114	344	355	813
Erstfeld MfM-U mobil				30		30
Frauenfeld			159	355		514
Luzern-Museggstrasse		209	191	216		616
Reiden					348	348
Sisseln				111	25	136
Suhr-Bärenmatte	0	0	119	236		355
Wallisellen-Dietlikonerstrasse	0	123	299	359		781
alle	0	332	1231	2011	816	4390

Tabelle 6 Anzahl Messtage mit parallelen (Teom mit Nafio-Dryer/HVS) gültigen Tagesmittelwerten

c) Teom mit FDMS

Mit dem neuen FDMS scheint eine Erweiterung der Teom-Geräte gelungen zu sein, welche die Gleichwertigkeit nach EN 12341 mit dem Referenzverfahren erreichen könnte. Die neue Technik ist allerdings noch nicht lange verfügbar, sodass breitere Erfahrungen noch ausstehen. Ein erster Vergleichsversuch an der in-LUFT-Messstation Sisseln zeigt eine aussergewöhnlich gute Übereinstimmung mit dem HVS. Eine Auswertung der Vergleichsmessung ist vorgesehen und soll in einigen Monaten publiziert werden (innet 2004). Eine Bewertung im Rahmen des vorliegenden Projekts ist noch nicht möglich, es werden aber trotzdem schon einige der verfügbaren Resultate vorgestellt.

2.2.2. BETAMETER-GERÄTE

Im NABEL wurde PM10 seit 1997 gemessen, vorerst nur mit HVS. Ab 1999 fand ein Vergleichsversuch mit zwei kontinuierlich messenden Geräten (Betameter, Teom) in der Station Härkingen statt. Im Jahr 2001 wurden weitere elf NABEL Stationen mit Betameter-Geräten ausgerüstet. Damit hat sich die Datenbasis der Vergleichsversuche mit dem Betameter-Geräten gegenüber der Vorläuferstudie sprunghaft erweitert.

Anzahl Tage mit gültigen Betameter/HVS Mittelwerten						
Messstation	1999	2000	2001	2002	2003	alle
	Tage					
Basel-Binningen			100	89	90	279
Basel-Hard					327	327
Bern			206	203	92	501
Chaumont			213	197	91	501
Chur-Industrie				74	92	166
Davos-Matta	135	235				370
Duebendorf			312	137	92	541
Haerkingen	204	176	99	91	90	660
Lausanne			11	166	90	267
Lugano			102	89	82	273
Magadino			83	90	91	264
Payerne			227	201	91	519
Rigi-Seebodenalp			181	90	92	363
Rothbrunnen					354	354
Roveredo	66	256			288	610
Sion-Aérodrome			142	91	90	323
Taenikon			11	161	91	263
Zuerich-Kaserne			126	91	91	308
Zuerich-Stampfenbachstrasse	199	345	83	84	84	795
alle	604	1012	1896	1854	2318	7684

Tabelle 7 Anzahl Messtage mit parallelen (Betameter/HVS) gültigen Tagesmittelwerten

2.3. BEZUGSBEDINGUNGEN

Die Messdaten, die für die vorliegende Studie zur Verfügung gestellt wurden, sind auf die Bezugsbedingungen $T_B = 9^\circ\text{C} = 282\text{ K}$ und $p_B = 950\text{ hPa}$ umgerechnet. Dies gilt für PM10-Daten aus Teom- und Betametergeräten und für sämtliche gasförmigen Komponenten NO_x etc. Zur Erhaltung der Konsistenz mit den Auswertungen der Vorgängerstudie wurden die Bezugsbedingungen nicht geändert, obwohl sie in der Zwischenzeit mit Inkrafttreten der neuen Messempfehlungen (BUWAL 2004, p.22) den europäischen angepasst worden sind.

2.3.1. PM10 (BETAMETER, TEOM) UND GASFÖRMIGE KOMPONENTEN

Sämtliche Messdaten (ohne HVS), die im Vergleichsversuch ausgewertet und benutzt wurden, sind auf folgende Bezugsbedingungen umgerechnet:

$$c_{\text{kor}} = c_0 \cdot \frac{T(\text{aussen, effektiv})}{p(\text{aussen, effektiv})} \cdot \frac{p_B}{T_B} = c_0 \cdot f$$

c_{kor} , c_0 korrigierte resp. unkorrigierte Konzentration

Bezugstemperatur $T_B = 9^\circ\text{C} = 282\text{ K}$,

Bezugsdruck $p_B = 950\text{ hPa}$

$f = 3.3688\text{ hPa/K}$

Für den Vergleichsversuch wurden bei den Auswertungen der Vorgängerstudie Bezugsbedingungen festgelegt, welche den damals geltenden, schweizerischen Messempfehlungen entsprachen. In der Zwischenzeit wurden die Bezugsbedingungen jenen der EU zwar angepasst. Damit aber alle Daten in die Auswertungen einbezogen werden konnten, wurden sie einheitlich auf die bisherigen Bedingungen umgerechnet (9°C , 950 hPa).

2.3.2. PM10 (HVS)

Für den routinemässigen Messbetrieb im schweizerischen Mittelland wird das Rotameter des Geräts so eingestellt, dass bei einer Aussentemperatur von 9°C und einem Aussendruck von 950 hPa exakt 500 l/min (bezogen auf 9°C und 950 hPa) angesaugt werden. Dies entspricht für Glasfaserfilter den Rotameter-Betriebsbedingungen von 19°C und 920 hPa (Erwärmung im Gerät und Druckabfall über das Filter). Unter Berücksichtigung der Kalibrierbedingungen des Rotameters entspricht dies dem Skalenpunkt 506 l/min (näheres siehe Anleitung zur Einstellung der Rotameter). Weichen nun die effektiven Aussentemperaturen und Drücke erheblich von 9°C und 950 hPa ab, so ist das tatsächlich angesaugte Volumen nicht mehr exakt

500 l/min (bezogen auf 9°C und 950 hPa). Diese Abweichungen sind sehr gering, weshalb die Korrektur in den Routinemessungen nicht durchgeführt wird. Zwecks Minimierung geräteabhängiger Abweichungen werden im Vergleichsversuch die Messdaten jedoch entsprechend korrigiert. Eine detaillierte Beschreibung für die Herleitung findet sich in BUWAL 2001 (p. 65ff.)

$$c_{\text{kor}} = c_0 \cdot f_{\text{HVS}} = c_0 \cdot \sqrt{\frac{920 \cdot [T(\text{aussen}, \text{eff}) + 10]}{[p(\text{aussen}, \text{eff}) - 30] \cdot 292}}$$

3. METHODISCHES VORGEHEN

3.1. STATISTIK

Das methodische Vorgehen schliesst an die Vorgängerstudie an. Die bisherigen Methoden sollen wieder zum Einsatz kommen. Zusätzlich sollen

- › robuste Regressionen durchgeführt und mit den Regressionen nach kleinsten Quadraten verglichen werden (sofern robuste Methoden überhaupt angezeigt sind);
- › die Bezugsbedingungen neu und alt berücksichtigt werden;
- › die Frage nach der Modellierung von Halbstundenwerten diskutieren;
- › Bezug zu europäischen Umrechnungsmodellen herstellen.

3.2. TEOM-MESSREIHEN

In der Vorgängerstudie wurden folgende Modelle empfohlen.

- › Für hohe Ansprüche an Genauigkeit, für Schätzungen des Jahresmittelwerts und der Anzahl Tage mit Überschreitung des max. Tageswerts ($50 \mu\text{g}/\text{m}^3$): Periodenmodell mit unterschiedlicher Parametrisierung für Teom ohne respektive mit Nafion-Dryer.
- › Für einfache Schätzung des Jahresmittelwerts: Korrekturfaktor für die Teom-Geräte (technisch ein lineares Modell ohne Achsenabschnitt), wiederum unterschiedlich für Teom ohne respektive mit Nafion-Dryer.

Für die neue Studie sah man mehrere Analysen vor:

- › Verifikation des Korrekturfaktormodells mit neuen Messdaten;
- › Verifikation des Periodenmodells mit neuen Messdaten;
- › Suche nach weiteren Modellen, welche insbesondere eine einfache Modellierung von Halbstunden- oder Stundenwerten ermöglichen. Zwar gibt es für solche Werte selber keine Möglichkeit, diese auf Gleichwertigkeit zu prüfen, weil mit dem HVS üblicherweise nur über 24h gemessen wird. Für die Bestimmung des „Luftqualitätsindex“ werden aber 1h-Mittelwerte benötigt. Diese sollen so gut wie möglich einem Referenzwert entsprechen und sind deshalb umzurechnen. Dank eines neuen Modells ist dies möglich geworden. Siehe dazu Kap. 4.4.

Bei der Verifikation von Korrekturfaktor- und Periodenmodell ist zu beachten, dass in der Messperiode ab Mitte 2001 alle Teom-Geräte mit Nafion-Dryers ausgerüstet waren, so dass keine Vergleichsmessdaten ab 2001 mehr vorliegen und damit auch keine Verifikation der Modelle mehr möglich sind.

3.3. BETAMETER-MESSREIHEN

In der Vorgängerstudie standen erst wenige Betameter-Messreihen für die Auswertung zur Verfügung. Die damals gefundenen Umrechnungsmodells standen statistisch noch auf wackeligen Füßen. Inzwischen wurden, wie erwähnt, die NABEL-Stationen mit Betameter-Geräten ausgerüstet, sodass für die Fortsetzungsstudie wesentlich mehr Daten verfügbar waren. Dabei muss allerdings eine Einschränkung gemacht werden. An den NABEL Stationen werden nämlich nur jeden 4. Tag HVS Werte erhoben (siehe dazu Kap. 5.4). Damit wird eine Auswahl getroffen, die es für die statistische Auswertung schwierig macht, mit den Messungen früherer Jahre (Station Härkingen) zu vergleichen. Zudem sind saisonale Schwankungen weniger eindeutig feststellbar, was sich statistisch durch eine Abschwächung von möglichen Einflüssen bemerkbar macht. Trotzdem gilt natürlich, dass mit den neuen PM10-Messungen an den NABEL Stationen der Datensatz für Vergleichsversuche wesentlich erweitert werden konnte, was für die Resultate effektiv auch von grosser Bedeutung ist.

Methodisch stand weniger die Verifikation der bisherigen, schwach abgestützten Modelle im Vordergrund als vielmehr die Frage, ob sich mit den neuen Daten überhaupt eine generelle Tendenz in den Abweichungen zum HVS abzeichnen würde und wenn ja, wie diese am besten in Form eines Umrechnungsmodells formuliert werden könnte. Folgende statistische Auswertungen wurden durchgeführt (Y : HVS Messwert, X : Betameter Messwert):

- › Lineare Regression mit Betameter als einzige, erklärende Variable: $Y = a + bX$, Koeffizienten mit 2 Methoden: kleinsten Quadrate und robuste Regression.
- › Multilineare Regression mit Betameter und weiteren erklärenden Variablen:
 $Y = a + bX + cF + dT + eNO_x$, Koeffizienten mit 2 Methoden: kleinsten Quadrate und robuste Regression.
- › Korrekturfaktormodell mit festem Korrekturfaktor, d.h. lineare Regression mit Betameter als einzige, erklärende Variable, Achsenabschnitt gleich Null: $Y = kX$, $k =$ Korrekturfaktor.
- › Korrekturfaktormodell mit multilinearer linearer Regression für k mit verschiedenen, erklärenden Variablen: Temperatur, relative Feuchte, Ozon, Stickoxide:
 $k = Y/X = a + bX + cF + dO_3 + eNO_x$.
- › Korrekturfaktormodell mit quadratischer Regression des k -Faktors: $k = Y/X = aT^2 + bT + cF + d$
- › Zusätzlich wurde eine Reihe weiterer Modelle untersucht, die jedoch alle weniger gute Resultate zeigten und die in diesem Bericht nicht dokumentiert werden.

3.4. WAHL DER AUSWERTUNGSPERIODEN

Für die statistischen Analysen stehen Messperioden aus den Jahren 1999–2003 zur Verfügung wie aus Tabelle 5 bis Tabelle 7 ersichtlich ist. Grundsätzlich ist zwar erwünscht, so viele Messwerte wie möglich für statistischen Auswertungen zu benutzen; das bedeutet aber nicht, dass jede Analyse mit allen Daten erfolgen kann:

Teom-Messreihen

- › Für die Auswertung der Teom-Messreihen werden die Vergleichsversuche in zwei Perioden 1999–2001 und 2002–2003 zerlegt. Die erste Periode deckt die Ergebnisse der Vorgängerstudie ab, die zweite Periode die neuen Resultate, mit denen die früheren Ergebnisse zu **verifizieren** sind.
- › In der zweiten Periode waren nur noch Teom-Geräte mit Nafion-Dryer in Betrieb. Die Verifikation ist nur noch für Teom mit Nafion-Dryer möglich.
- › Im Korrekturfaktor- und im Periodenmodell ist eine gewisse **Drift** der Parameter in der Beobachtungsperiode zu erkennen. Die Parameter werden deshalb für alle Kalenderjahre separat betrachtet.

Betameter-Messreihen

Für die Vorgängerstudie standen erst Messdaten aus vier Stationen zur Verfügung, welche von drei verschiedenen Eigentümern betrieben wurden. Die Auswertungen zeigten ein sehr heterogenes Bild, für das sich nicht kein regionales Modell angeben liess.

- › Die Station Härkingen zeigt saisonale Abhängigkeiten des k-Faktors, welche sich in der Periode 1999–2000 sehr von der Periode 2001–2003 unterscheiden (siehe Figur 8). Eine Auswertung über die gesamte Periode ist deshalb nicht angebracht. Ähnliches lässt sich auch bei einigen NABEL-Stationen beobachten, bei denen in den ersten Monaten nach Inbetriebnahme Merkmale auftreten, die nachher verschwinden. Eventuell spielen Geräteeinstellungen eine Rolle. Jedenfalls empfiehlt sich auch in diesen Fällen, die statistischen Analysen zu trennen.
- › Für die beiden Stationen Davos und Roveredo im Berggebiet (beide ANU GR) wurden im früheren Vergleichsversuch die HVS-Filteranalysen nach einem etwas verschiedenen Verfahren ausgeführt. Für die neuen Auswertungen wurden deshalb die Daten nicht benutzt.

Fazit Betameter-Messdaten: Für die Modellbildung werden primär die Daten aus den Jahren 2002 und 2003 verwendet.

4. UMRECHNUNGSMODELLE FÜR TEOM-MESSREIHEN

4.1. DAS AUSSICHTSREICHSTE TEOM-MODELL

Das nach Auswertung aller vorliegender Daten aussichtsreichste Modell für die Umrechnung von Teom-Messreihen lautet:

$$Y = (a - bT)X + c \quad \text{„Energiemodell“}$$

mit Y = Modellwert, der dem HVS-Wert am nächsten kommt.

X = Tagesmittel PM10-Messwert Teom in $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

T = Tagesmittel der Temperatur in $^{\circ}\text{C}$

a, b, c = Regressionsparameter

Das Modell geht aus vom Teom-Wert, der mit einem, von der Temperatur linear abhängigen Faktor modifiziert wird. Je tiefer die Temperatur, umso grösser der Korrekturfaktor.

Auf der Suche nach dem besten Modell wurde bereits für die Vorgängerstudie eine Vielzahl von möglichen Modellen untersucht: lineare und multilineare Modelle mit chemischen (NO , NO_2 , NO_x , O_3 , CO) und physikalischen Erklärungsgrößen (Temperatur, Druck, Feuchte), Korrekturfaktormodelle, periodische Modelle. Je nach Anspruch können einfachere oder komplexere Modelle eingesetzt werden. Das **Energiemodell** ist aber nach heutigem Stand der Analysen bezüglich Qualität und Umsetzung das am besten geeignete. Im Einzelfall kann mit der Umrechnung die eine Bedingung für Gleichwertigkeit $R^2 \geq 0.95$ erfüllt werden, im Allgemeinen trifft dies jedoch nicht zu.

Im folgenden Kapitel wird nicht nur das Energiemodell beschrieben, sondern es werden zuerst die beiden in der Vorgängerstudie empfohlenen Modelle verifiziert:

- › Der Korrekturfaktor ist besonders einfach und für eine schnelle Umrechnung des Jahresmittels geeignet.
- › Das Periodenmodell ist eine Erweiterung und Verbesserung gegenüber dem Korrekturfaktormodell und ist - gemessen an der Qualität der Resultate - etwa gleich stark wie das Energiemodell, ist allerdings in der Umsetzung anspruchsvoller.

4.2. VERIFIKATION KORREKTURFAKTORMODELL

4.2.1. MODELLSTRUKTUR

Das Korrekturfaktormodell ist das einfachste Modell. Der Teom-Wert X wird mit einem Faktor k multipliziert.

$$Y = kX$$

Das Modell gibt eine gute erste Schätzung des Referenzwerts. **Es liefert aber nur dann brauchbare Werte, wenn ein Datensatz für ein volles Jahr vorliegt.** Dies gilt sowohl für den Jahresmittelwert wie auch für die Anzahl Überschreitungen des Tagesgrenzwertes.

4.2.2. RESULTATE KORREKTURFAKTORMODELL

Bisher zeigte sich ein Unterschied zwischen Teom-Geräten ohne resp. mit Nafion-Dryer. Entsprechend gab es zwei Korrekturfaktoren. Die neuen Auswertungen zeigen folgendes Bild.

Station	Periode/Jahr	k-Faktor	Alter des Nafion Jahr

Luzern	Apr 2000 - Mar 2001	1.18	1
	Sep 2001 - Aug 2002	1.45	2
Suhr	Sep 2001 - Aug 2002	1.30	1
Basel St. Johann	Jan - Dec 2001	1.02	1
	Jan - Dec 2002	1.04	2
Erstfeld	Jan - Dec 2002	1.11	1
	Jan - Dec 2003	1.15	2
	Sep 2001 - Aug 2002	1.11	
	Sep 2002 - Aug 2003	1.11	
Frauenfeld	Sep 2001 - Aug 2002	1.24	1
	Jan - Dec 2002	1.27	2
Reiden	Jan - Dec 2003	1.16	1
Wallisellen	Jan - Dec 2001	1.26	
	Jan - Dec 2002	1.34	
	Apr 2000 - Mar 01	1.15	1
	Apr 2001 - Mar 2002	1.27	2
Mittelwert		1.16	1
		1.23	2

Tabelle 8 k-Faktoren aller Stationen mit Messwerten von 12 aufeinander folgenden Monaten. Der extrem hohe k-Faktor 1.45 in Luzern (2002) kann möglicherweise mit lokaler Bautätigkeit erklärt werden.

Die k-Faktoren liegen im Bereich 1.1-1.4. Bei aufeinander folgenden Jahren nehmen die Faktoren an allen Stationen systematisch leicht bis stark zu. Der k-Faktor scheint zu driften, in Basel, Erstfeld, Frauenfeld 2% bis 3%, in Wallisellen 10% und in Luzern 22% (jeweils Folgejahr bezogen auf Vorjahr). Die wahrscheinliche Erklärung des Effekts ist in der Alterung des Nafion-Dryers zu suchen. Laut in-LUFT und OSTLUFT gibt es eindeutige Hinweise darauf, dass dessen Wirkung im Laufe der Zeit nachlässt und sich damit der k-Faktor wieder dem Wert eines Teoms ohne Nafion-Dryer angleicht. Eine minimale Überprüfung ist möglich, indem eine Abhängigkeit vom Alter des Nafion-Dryers untersucht wird. Beim Ersatz eines

Nafion-Dryers sollte natürlich ein Sprung zu tieferen k-Faktoren zeigen. In den hier vorliegenden Messperioden wurden allerdings keine Ersetzungen vorgenommen, so dass dieser Effekt nicht verifiziert werden kann. In der Tabelle 8 ist in der letzten Spalte noch das „Alter“ des Nafion-Dryers (Nummer des Betriebsjahrs) angegeben. In der untersten Zeile sind beim k-Faktor die Mittelwerte für 0-1-jährige ($k = 1.16$) und 1-2-jährige ($k = 1.23$) Nafion-Dryers separat angegeben. Sie zeigen eine Zunahme von 6% vom 1. zum 2. Betriebsjahr. Man beachte, dass in der Vorgängerstudie für den k-Faktor die Werte 1.17 (Teom mit Nafion-Dryer, 1-jährig) und $k = 1.27$ (ohne Nafion-Dryer) berechnet worden waren. Diese Zahlen decken sich gut mit den neu berechneten Werten unter Berücksichtigung des Alterungseffekts.

Für die Modellbildung muss diese Drift berücksichtigt werden, erstens beim Korrekturfaktormodell, welches gerade von einem konstanten Faktor ausgeht (siehe folgende Tabelle), und zweitens auch bei den Perioden- und Energiemodellen, in denen sich eine Drift auf die Modellkonstanten überträgt.

Eine Überlagerung zweier Effekte muss jedoch beachtet werden: In den Übergangszeiten Frühling und Herbst kann bei Teom-Geräten eine Art Hysterese auftreten. Das Verhalten des k-Faktors lässt sich relativ einfach nach Sommer und Winter unterscheiden. In den Zwischenzeiten findet der Übergang vom einen ins andere Regime nicht nach Kalender oder Temperatur statt, sondern nach bisher unbekanntem Faktoren. Während das eine Teom-Gerät noch weit in den Frühling hinein sich im Winter-Regime befindet, ist ein anderes Teom-Gerät schon wie Sommer-Regime. Dasselbe Spiel lässt sich auch im Herbst beobachten. Dadurch entstehen Differenzen zwischen den modellierten Werten, die sich ihrerseits nach der Temperatur (Energiemodell) respektive nach dem Kalender (Periodenmodell) richten. Die Differenzen überlagern sich mit Differenzen, die auf Grund des Nafion-Drifts entstehen. Es sind jedoch nicht genügend Daten vorhanden, um die beiden Effekte auseinander halten zu können.

4.3. VERIFIKATION PERIODENMODELL

4.3.1. MODELLSTRUKTUR

Das Periodenmodell baut auf der Beobachtung auf, dass die Abweichungen zwischen Teom und HVS einen ausgeprägten Jahresgang aufweisen. Es ist dementsprechend ein Zeitreihenmodell und braucht zusätzlich zum Teom-Messwert noch das Datum und eine Zeitnormierung. Zur Realisierung in einem Computerprogramm wird eine trigonometrische Funktionen benötigt. Mit diesem Modell sind grundsätzlich auch Halbstundenwerte für das HVS simu-

lierbar. Dazu wird eine weitere Schwingung mit einer Tagesperiode (24 h) überlagert werden. Hinweise dazu siehe in-LUFT (2002). Die Umsetzung des Periodenmodells ist relativ anspruchsvoll. Die Struktur für die Umrechnung von Tagesmittelwerten lautet:

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

4.3.2. RESULTATE PERIODENMODELL

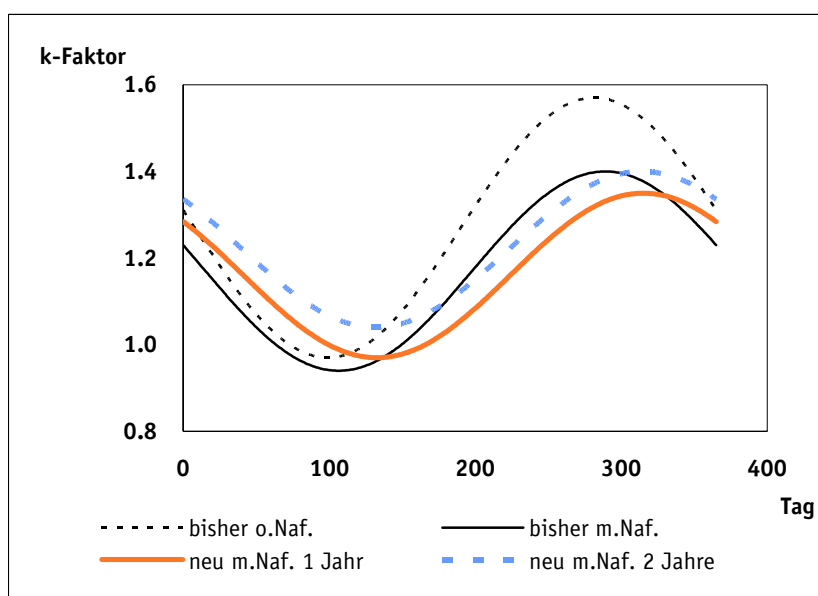
Mit den neuen Messdaten kann das Periodenmodell verifiziert werden. Die Resultate sind auf einer ähnlichen Qualitätsstufe wie in der Vorgängerstudie.

- › Der Regressionsparameter A entspricht dem zeitlich-mittleren k-Faktor. Für ihn gelten dieselben Aussagen wie beim Korrekturfaktormodell zum k-Faktor. Aufgrund des Drifts ist der Wert wieder in Abhängigkeit des Nafion-Alters angegeben. Im ersten Betriebsjahr entspricht A dem bisherigen A (mit Nafion). Im zweiten Betriebsjahr liegt der Wert von A zwischen dem ersten Betriebsjahr und dem Teom ohne Nafion.
- › Der Regressionsparameter B repräsentiert die Amplitude der Jahresschwingung. Sie ist beim Teom ohne Nafion am stärksten ausgeprägt. Die neuen Messdaten geben etwas kleinere Werte.
- › Der Regressionsparameter C steht für die Phase der Schwingung. Die Umrechnung ist nur wenig sensitiv bezüglich C. Die neuen Werte liegen höher, beeinflussen die Modellqualität aber kaum (siehe Figur).

PERIODENMODELL			
Modell Vorgängerstudie	A (---)	B (---)	C (Tage)
Teom ohne Nafion			
Mittelwert	1.27	-0.30	7.8
Standarabweichung	0.07	0.05	13.4
Teom mit Nafion			
Mittelwert	1.17	-0.23	15.3
Standarabweichung	0.02	0.00	0.46
Neue Messdaten			
	A (---)	B (---)	C (Tage)
Teom mit Nafion, 1. Betriebsjahr			
Mittelwert	1.16	-0.19	41.4
Standarabweichung	0.07	0.04	24.0
Teom mit Nafion, 2. Betriebsjahr			
Mittelwert	1.22	-0.18	40.6
Standarabweichung	0.11	0.04	20.5

Tabelle 9 Parameter des Periodenmodells für die früheren (Vorgängerstudie) und die neuen Messdaten.

Die vier Versionen sind in der folgenden Figur dargestellt. Die Kurven liegen für alle Teom mit Nafion sehr nahe beisammen, die frühere Kurve für Teom ohne Nafion weicht insbesondere in der Schwingungsamplitude von den übrigen ab.



Figur 1 Jahresschwingung des Periodenmodells mit den bisherigen und den neuen Parameterwerten.

Die Ergebnisse dürfen als Bestätigung respektive als Verifikation der früher empfohlenen Modelle interpretiert werden. Die Situation ist aus heutiger Sicht insofern komplexer geworden, als das Alter des Nafion-Dryers als zusätzlicher Parameter in der Modellbildung berücksichtigt werden muss.

Weitere Auswertungsergebnisse zum Periodenmodell finden sich unten im Kapitel 4.4.3. Die Modellempfehlung folgt im Kapitel 6.2.1.

4.4. NEU: ENERGIEMODELL

4.4.1. MODELLSTRUKTUR

Neu wird ein **statistisches Modell** vorgeschlagen, das den Referenzwert mit einem nicht-linearen Term abschätzt. Kernstück des Modells ist ein Produktterm mit den beiden Faktoren Teom-Wert und Temperatur. Weil dieses Produkt proportional zu einer Energiedichte (damit wird im Modell die Energie kompensiert, die im Teom durch Heizung zugeführt wird)

ist, sprechen wir im Folgenden vom „**Energiemodell**“.

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

Y : Messwert HVS

X : Messwert Teom

T: Aussentemperatur

a, b, c Regressionsparameter

4.4.2. REGRESSIONSRESULTATE

In der folgenden Tabelle sind Regressionsresultate zum Energiemodell zusammengefasst, die Werte fürs Bestimmtheitsmass R^2 liegen im Intervall 0.86-0.94.

Station	Energiemodell		
	Regressionsparameter		
	a	b	c
Mittelwerte 1. Betr.jahr	-0.014	1.35	-0.45
Standardabweichungen	0.005	0.06	1.80
Mittelwerte 2. Betr.jahr	-0.012	1.36	0.02
Standardabweichungen	0.003	0.09	1.22
Mittelwerte alle Stationen	-0.013	1.35	-0.25
Standardabweichungen	0.004	0.07	1.54

Tabelle 10 Regressionsparameter für das Energiemodell

Erläuterungen, Kommentare:

- › Die Parameter a und b sind zeitlich und räumlich sehr stabil. Der Variationskoeffizient von a liegt bei 30%, jener von b bei 6%. Der Parameter c hingegen ist nicht signifikant verschieden von Null. Das heisst, der Parameter wird für die Modellbildung auf Grund seiner Eigenschaften gleich Null gesetzt (siehe Modellempfehlung Kapitel 6.2.1).
- › Die Unterschiede zwischen Teom-Geräten mit unterschiedlich alten Nafion-Dryers sind sehr gering, wenn von c abgesehen wird. Werden unterschiedliche Perioden zur Bestimmung der Regressionsparameter verwendet, ist die Streuung jedenfalls grösser als bei der Unterscheidung nach Nafion-Alter.

4.4.3. VERGLEICH DES ENERGIEMODELLS MIT HVS DATEN

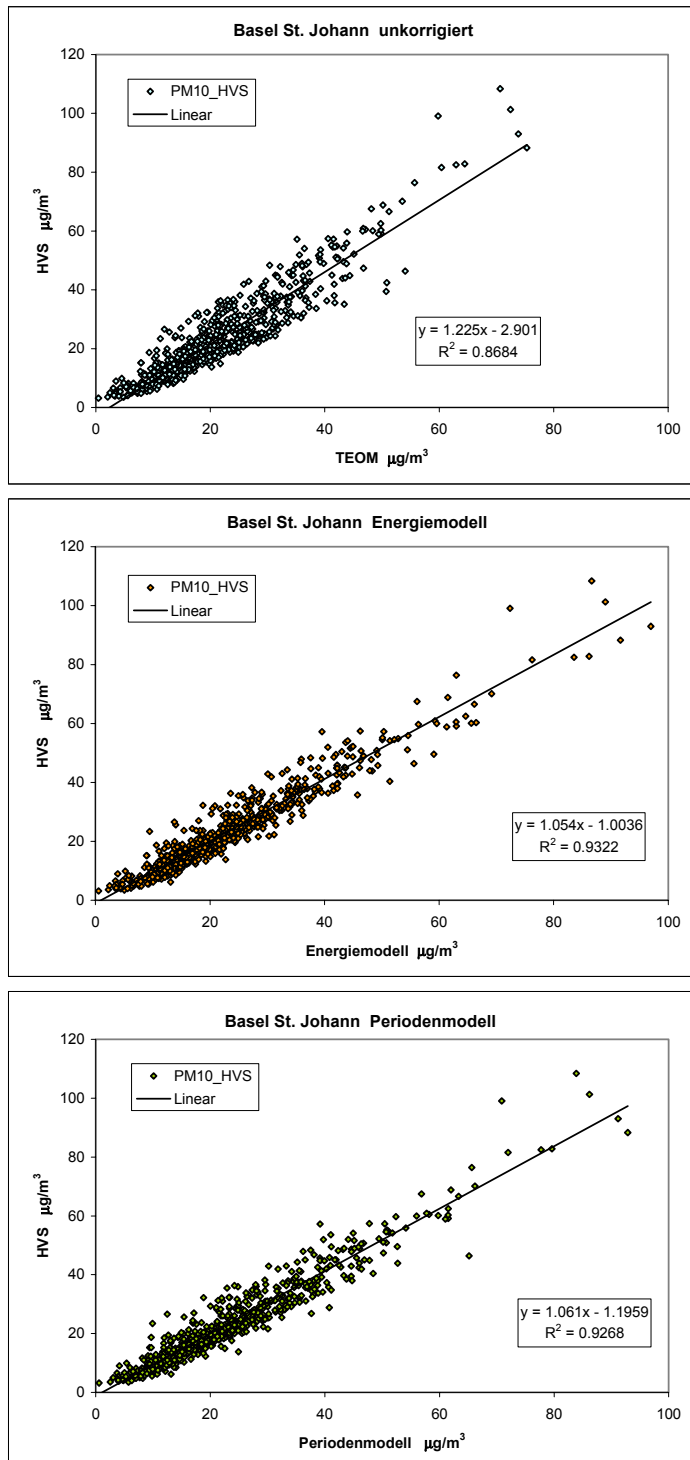
Mit den lokalen Energiemodellen wurden Mittelwerte und Zahl der Tage mit mehr als 50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ berechnet. Die Ergebnisse werden mit den HVS Daten verglichen.

Station	Periode	Mittelwert		Anzahl Tage > 50 µg/m ³	
		Energiemodell µg/m ³	HVS µg/m ³	Energiemodell Tage	HVS Tage
Luzern	4.00 bis 3.01	26.7	23.1	11	11
	9.01 bis 8.02	25.9	25.9	27	27
Suhr	9.01 bis 8.02	28.3	28.3	35	28
Basel St. Johann	2001	21.0	20.3	6	6
	2002	21.8	21.8	17	18
Erstfeld	2002	19.1	19.3	7	7
	2003	21.7	21.9	9	9
Frauenfeld	9.01 bis 8.02	24.7	24.1	19	24
	2002	24.3	24.3	20	21
Reiden	2003	28.8	28.8	35	33
Wallisellen	4.00 bis 3.01	22.6	20.7	5	4
	4.01 bis 3.02	22.6	22.6	9	14
Mittelwert		24.0	23.4	16.7	16.8
Standardabweichung		3.0	3.0	10.8	9.7
Abweichung Energiemod/HVS		2.3%		-1.0%	

Tabelle 11 Lokale Energiemodelle verglichen mit HVS Resultaten

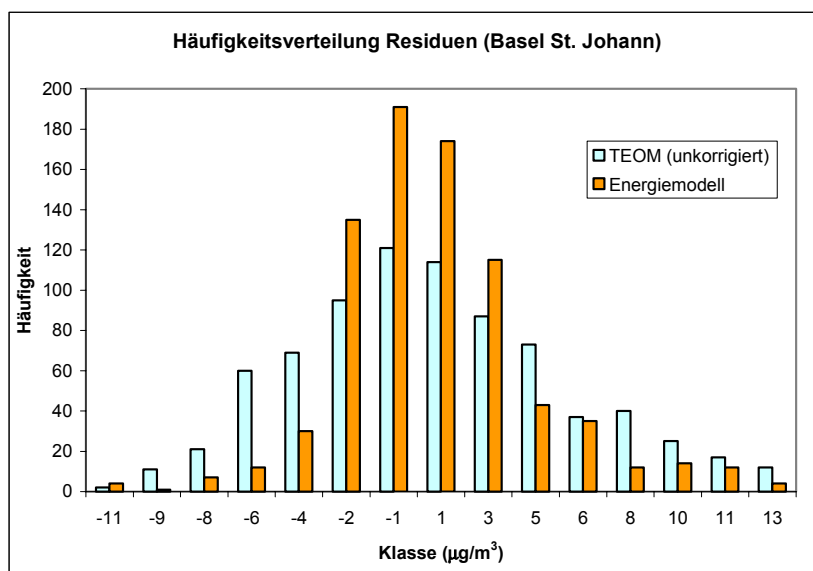
- › Der Vergleich der Mittelwerte Energiemodell mit dem HVS ist bei den meisten Stationen sehr gut: Bei 7 Stationen sind die Abweichungen kleiner als 1%. Bei 8 Stationen wird der Mittelwert etwas überschätzt, bei 4 Stationen etwas unterschätzt. Die Differenzen sind zwischen -0.3 und +0.7 µg/m³. Nur die Jahresperiode Apr 2000–Mar 2001 fällt in Luzern und in Wallisellen aus dem Rahmen mit Abweichungen > 2 µg/m³.
- › Auch bei der Zahl der Überschreitungen von Tagen > 50 µg/m³ ist die Übereinstimmung sehr gut: Bei 5 Stationen stimmen sie überein, bei 3 Stationen weichen sie nur um einen Tag ab. Bei 3 Stationen sind die Abweichung 5 resp. 7 Tage. Die Abweichung ist nicht systematisch. Grosse Abweichungen beim Mittelwert und grosse Abweichungen bei den Tagen > 50 µg/m³ sind nicht korreliert.
- › Die Mittelwerte können dazu benutzt werden, ein Energiemodell zu definieren, das zumindest für Mittellandverhältnisse und Basel eingesetzt werden kann (siehe Empfehlungen).

Die folgenden Bilder zeigen Scatter- und Residuenplots für die Station Basel St. Johann (Teom mit Nafion), und zwar für die unkorrigierten Messdaten und für Energie- und Periodenmodell. Die unkorrigierten Daten haben ein Bestimmtheitsmass $R^2 = 0.868$, das sich nach der Umrechnung mit dem Energiemodell auf 0.932 verbessert. Die Umrechnung mit dem Periodenmodell ist ähnlich gut mit $R^2 = 0.927$. Die Gleichwertigkeitsbedingung ($R^2 \geq 0.95$) wird mit beiden Modellen in diesem Fall (knapp) nicht erreicht.

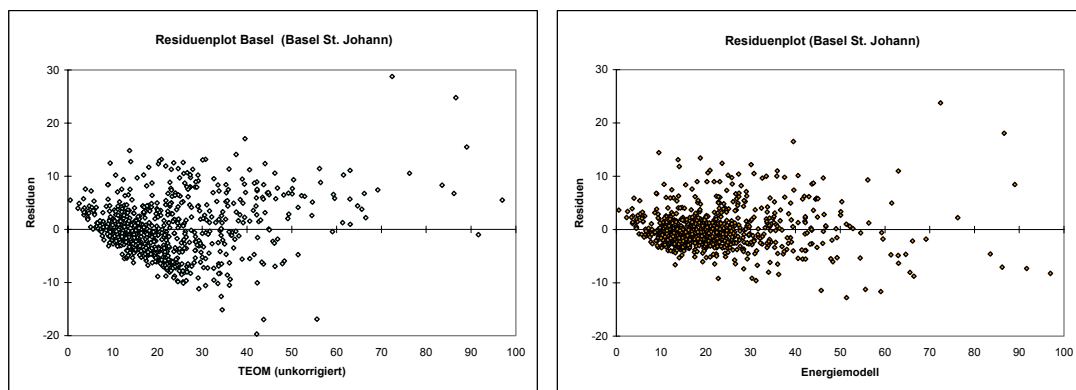


Figur 2 Scatterplots HVS-Team für die Messstation Basel St. Johann: unkorrigierte Teom Daten (oben), Umrechnungen mit lokalem Energie- (Mitte) resp. Periodenmodell (unten).

Die Verteilung der Residuen ist im unkorrigierten Fall sehr flach und wird durch die Umrechnung wesentlich steiler, das heisst, dass die grossen Residuen (Fehler) zugunsten von kleineren Residuen verschwinden. Die Verteilung behält auch mit der Umrechnung eine gewisse Langschwanzigkeit, stärker ausgeprägt bei der positiven Seite (Modell unterschätzt HVS Werte). Im Tukey-Anscombe Plot zeigen die Residuen eine nicht-lineare Verbreiterung der Residuen mit wachsender PM10-Konzentration. Nach der Umrechnung wird diese teilweise kompensiert, ist aber immer noch vorhanden (im Idealfall sind die Residuen zufällig um Null verteilt). Im Anhang A1.1 sind weitere Daten zum Energiemodell aufgeführt.



Figur 3 Energiemodell, Messstation Basel St. Johann: Häufigkeitsverteilung der Residuen. Im Idealfall sind die Residuen normal-verteilt.



Figur 4 Energiemodell, Messstation Basel St. Johann: Residuen in Funktion der PM10-Konzentration (Tukey-Anscombe Plot). Im Idealfall ist die Streuung der Residuen zufällig (um Null).

Halbstundenwerte

Das Energiemodell eignet sich auch gut für die Umrechnung von Halbstundenwerte auf „Referenz-Halbstundenwerte“. Solche Referenzwerte gibt es zwar nicht, weil mit den HVS-Geräten keine Halbstundenwerte gemessen werden. Für die Berechnung von Luftqualitätsindices sind aber Umrechnungen nötig. Detaillierte Resultate zu den Halbstundenwerten finden sich im Bericht in-LUFT (2002).

4.5. MODELL DER EC WORKING GROUP ON PARTICULATE MATTER

Im Bericht „Guidance to Member States on PM10 Monitoring and Intercomparisons with the Reference Method“ der EC Working Group on Particulate Matter (EC PM 2002) werden die Ergebnisse von ausgedehnten Vergleichsmessungen in ganz Europa wie folgt zusammengefasst. Beachte, dass es sich dabei um Vergleichsmessungen mit Teom ohne Nafion-Dryer handelt:

- › Im Winter lauten die Korrekturfaktoren für zentral- und nordeuropäische Länder 1.25 bis 1.30. In der warmen Jahreszeit schwankt der Korrekturfaktor zwischen 1.00 und 1.10. Die regionalen Streuungen sind gross.
- › Die Working Group empfiehlt allen Mitgliedstaaten, für die Berichterstattung unter der EU Richtlinie 1999/30/EC eigene Vergleichsmessungen durchzuführen, eigene Umrechnungsmodelle zu entwickeln und diese von der Kommission bestätigen zu lassen.
- › Bis diese Prozedere abgeschlossen ist, empfiehlt die Working Group die Verwendung des generellen Korrekturfaktors von 1.3 sowohl zur Umrechnung von Jahresmittelwerten wie auch von Tagesmittelwerten.

$$Y = kX \quad \text{mit} \quad k = 1.3$$

Die Applikation eines Korrekturfaktors entspricht genau dem in der Schweiz beschriebenen „Korrekturfaktormodell“. Aus Sicht der schweizerischen Vergleichsversuche stimmen die Beobachtungen in den europäischen Ländern gut mit den schweizerischen überein, sowohl was die Schwankungen als auch was das Niveau betrifft. Was den Wert des Faktor von $k = 1.3$ betrifft, so zeigt die vorliegenden Analysen für die Schweiz, dass

- › der Wert für die Schweiz bei Umrechnungen von Jahresmittelwerten etwas zu hoch ist und dass er je nach technischer Ausrüstung des Teoms unterschiedliche Werte annimmt (siehe Kapitel 4.2.2). Für Teom mit FDMS entfällt vermutlich sogar die Korrektur (sich folgenden Abschnitt),

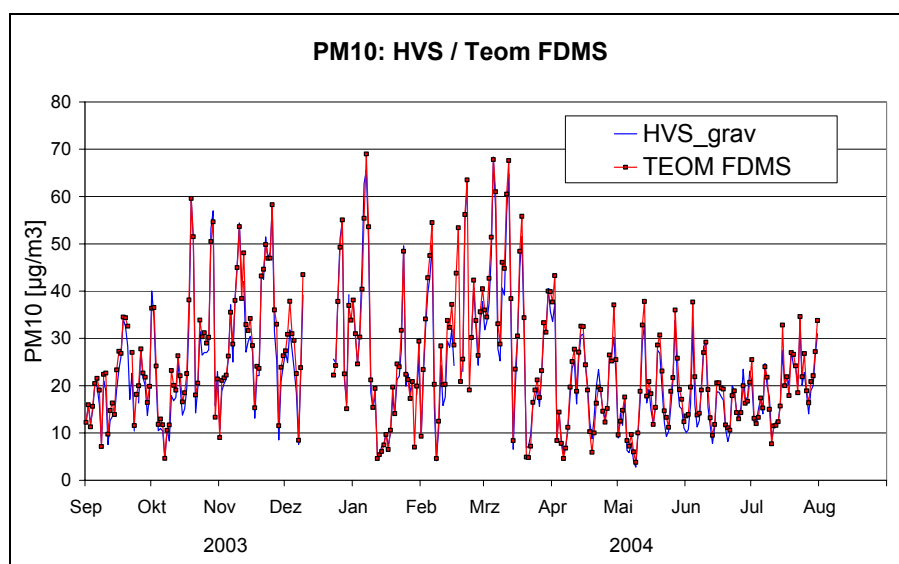
› eine Anwendung auf Tagesmittelwerte saisonal unterschiedlich gehandhabt werden sollte.

4.6. TEOM MIT FDMS

Teom-Geräte, die mit einem Nafion-Dryer ausgerüstet sind, können neu mit einem Filter Dynamics Measurement System (FDMS) erweitert werden. Eine technische Beschreibung findet man auf den Websites des Herstellers Rupprecht & Patashnik Co.³

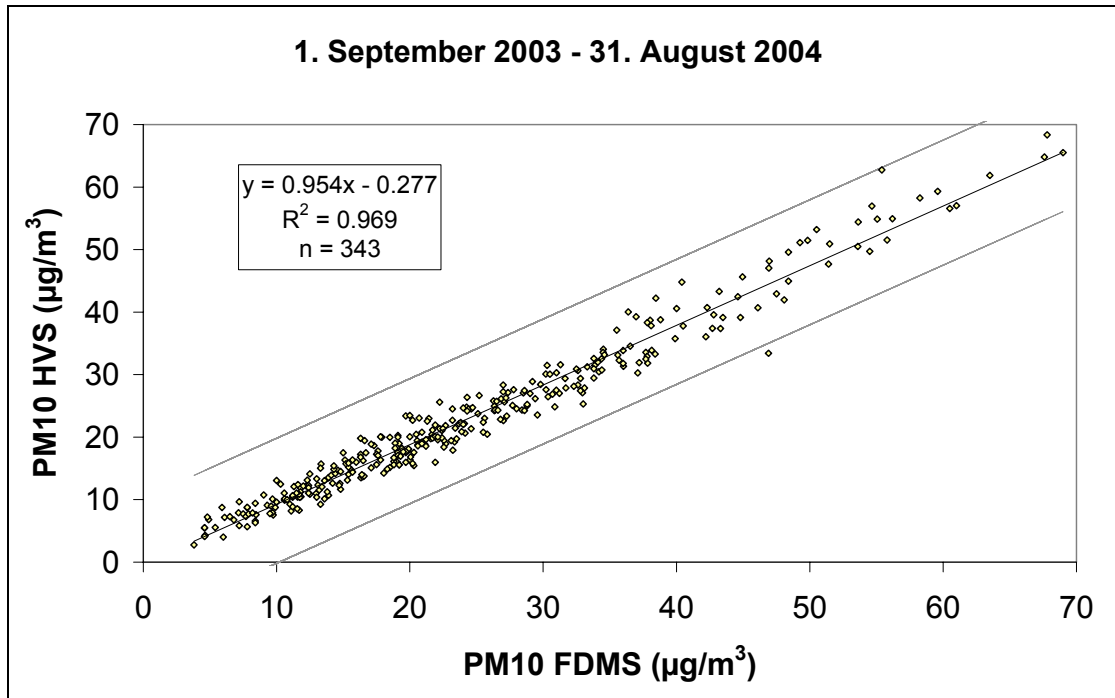
An der in-LUFT-Messstation Sisseln wird seit September 2003 ein solches Teom betrieben und kann mit dem dort parallel messenden HVS verglichen werden. Einige Resultate sind in den folgenden Figuren dargestellt (innet 2004):

- › Die Zeitreihe der beiden Messgeräte zeigt eine sehr gute Übereinstimmung, und zwar in allen Jahreszeiten (Figur 5).
- › Die Korrelation zwischen den HVS- und Teom-Messreihen ist sehr stark: $R^2 = 0.97$ (Figur 6). Für diese Messreihe wäre damit die härteste Bedingung für Gleichwertigkeit ($R^2 \geq 0.95$) mit der Referenzmethode erfüllt.
- › Die Anzahl Tage, an denen der Mittelwert $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ überschritten wird, ist bei beiden Geräten fast dieselbe. Pro Monat sind die Differenzen entweder gleich Null oder Eins. Im Unterschied dazu misst das Teom mit Nafion Dryer aber ohne FDMS systematisch weniger (Figur 7).

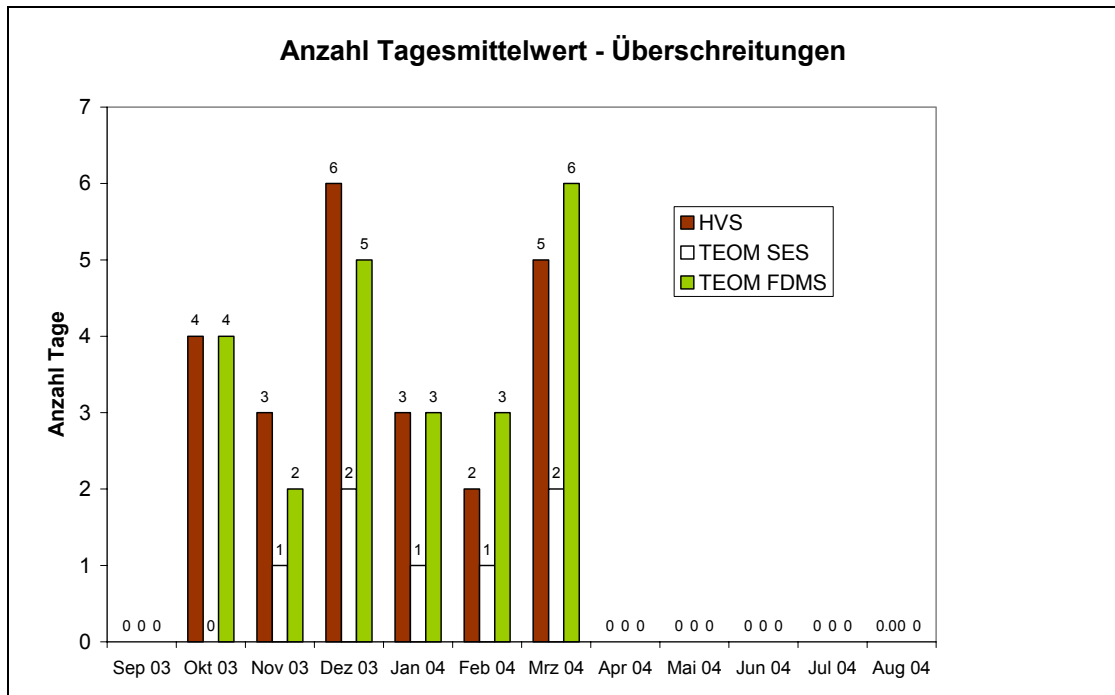


Figur 5 Zeitreihe HVS und Teom mit FDMS in Sisseln

3 <http://www.rpco.com/products/ambprod/amb8500/index.htm>



Figur 6 Scatterplot HVS und Teom FDMS in Sisseln. Zwischen den beiden einhüllenden Geraden liegt der Akzeptanzbereich gemäss CEN 1998.



Figur 7 Anzahl Tage mit Überschreitung des Tageswerts $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Braune (dunkle) Säulen: HVS, grüne (helle) Säulen: Teom mit FDMS (und Sampling Equilibration System SES = Nafion Dryer), leere Säulen: Teom mit Nafion Dryer. Im Sept. 03 und zwischen April und August 2004 wurden bei allen drei Geräten keine Überschreitungen festgestellt.

5. UMRECHNUNGSMODELLE FÜR BETAMETER-MESSREIHEN

5.1. DAS AUSSICHTSREICHSTE BETAMETER-MODELL

Am aussichtsreichsten für die Umrechnung von Betameter-Messreihen ist ein Korrekturfaktormodells mit einem **quadratischen Temperatur- und einem linearen Feuchte-Term** im k-Faktor:

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

mit T = Tagesmittel der Temperatur in °C, X = Tagesmittel PM10-Messwert Betameter in µg/m³. Y ist der gesuchte Modellwert, der dem HVS-Wert am nächsten kommt. Die Faktoren 1000 dienen lediglich der anschaulicheren Normierung der Regressionskoeffizienten a, b, c. Das Modell geht aus vom Betameter-Wert X, der mit einem, von der Temperatur (quadratisch) und der Feuchte (linear) abhängigen Faktor k(T,F) modifiziert wird. Der Korrekturfaktor ist bei Tagesmitteltemperaturen um 10°C maximal.

Auf der Suche nach dem besten Modell wurde eine Vielzahl von möglichen Modellen untersucht: lineare und multilineare Modelle mit chemischen (NO, NO₂, NO_x, O₃, CO) und physikalischen Erklärungsgrößen, Korrekturfaktormodelle, periodische Modelle. Das Korrekturfaktormodell mit dem quadratischen Term ist das einzige Modell, das eine Übertragung auf andere Standorte zulässt. Andere Modelle können lokal eventuell ähnlich gute Resultate erzeugen, lassen sich aber nicht übertragen.

Im folgenden Kapitel werden die untersuchten Modelle vorgestellt.

5.2. LINEARE REGRESSIONSMODELLE

5.2.1. MODELLSTRUKTUR

Der Zusammenhang zwischen den PM10 Messungen mit Betameter und HVS Geräten (gravimetrische Methode) wird linear angenähert mit Modellen der Form

$$Y = a + bX \quad \text{und} \quad Y = a + bX + cF + dT + eNO_x$$

Y : Messwert HVS

X : Messwert Betameter

F, T, NO_x: Messwerte rel. feuchte, Temperatur, Stickoxide,...

a, b, c, d, e Regressionsparameter

5.2.2. ZWEI REGRESSIONSMETHODEN

Sind die Messwerte normal-verteilt, so ist zur Bestimmung der Regressionskoeffizienten die Methode der kleinsten Quadrate die geeignete. Dies ist in der Praxis aber bestenfalls näherungsweise erfüllt. Bei asymmetrischen Verteilungen liefert die robuste Methode bessere Resultate. Falls die Resultate beider Methoden stark voneinander abweichen, so sind die robusten Koeffizienten vorzuziehen.

5.2.3. REGRESSION MIT KLEINSTEN QUADRATEN

Die Regression wurde über die Datensätze aus den beiden „neuen“ Jahren 2002 und 2003 ausgeführt. Die Ergebnisse der Regressionsanalyse zeigt, dass die Korrelationen mit Ausnahme einer Stationen hoch sind (mit einem R^2 zwischen 0.916 und 0.967), bei 4-5 Stationen sogar so hoch, dass die entsprechende Bedingung für die Gleichwertigkeit erfüllt werden kann ($R^2 > 0.95$). Ein regionales Modell könnte aus diesen Ergebnissen abgeleitet werden.

Die Residuen sind in den meisten Fällen glockenförmig verteilt, weichen aber in unterschiedlicher Weise von der Normalverteilung ab (siehe Figur 13 im Anhang). Die Residuen sind zudem nicht frei von Autokorrelation, wenn auch nicht in auffälligem Masse (siehe Figur 14).

Werden Resultate aus den früheren Messjahren 2000/2001 einbezogen, vergrößert sich die Streuung der Parameter und die Korrelationen werden schwächer.

Lineares Modell $Y = a + bX$ (Meth. kl. Quadrate), Periode 2002 und 2003				
Stationen	a	b	R ²	Messtage
	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	---	---	Anzahl
Basel-Binningen	1.805	1.089	0.938	179
Bern	5.116	0.823	0.966	295
Chaumont	1.083	1.083	0.922	287
Duebendorf	1.798	0.974	0.954	230
Haerkingen	3.817	0.987	0.929	181
Lausanne	0.611	1.199	0.949	255
Lugano	3.240	1.082	0.916	171
Magadino	1.864	1.065	0.967	181
Payerne	1.649	1.108	0.927	292
Rigi-Seebodenalp	1.539	0.800	0.864	178
Roveredo	0.424	1.047	0.927	279
Sion-Aérodrome	3.082	0.907	0.934	181
Taenikon	0.539	1.102	0.944	252
Zuerich-Kaserne	2.578	1.119	0.932	182
Zuerich-Stampfenbachstrasse	1.988	0.894	0.967	168
Mittelwert	2.076	1.019		
Standardabweichung	1.303	0.116		

Tabelle 12 Lokale Regressionskoeffizienten für ein lineares Modell (Methode der kleinsten Quadrate). Für die Berechnungen wurden nur Messwerte aus den Jahren 2002–2003 verwendet. Die fett markierten R²-Werte erfüllen die eine Bedingung für Gleichwertigkeit mit der Referenzmethode (fett kursiv: Bedingung nur fast erfüllt).

5.2.4. REGRESSION MIT ROBUSTER METHODE

Analog zur Regression mit der Methode der kleinsten Quadrate sind in der folgenden Tabelle die Ergebnisse für eine robuste Regression aufgeführt.

Lineares Modell $Y = a + bX$ (Robuste Methode), Periode 2002 und 2003				
Stationen	a	b	robustes R ²	Messtage
	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	---	---	Anzahl
Basel-Binningen	2.860	1.009	0.679	179
Bern	3.276	0.871	0.967	295
Chaumont	1.335	1.014	0.639	287
Duebendorf	1.895	0.943	0.969	230
Haerkingen	3.399	0.961	0.973	181
Lausanne	4.077	0.996	0.948	255
Lugano	3.275	1.073	0.652	171
Magadino	2.514	1.021	0.714	181
Payerne	0.812	1.142	0.668	292
Rigi-Seebodenalp	1.653	0.769	0.628	178
Roveredo	1.304	0.992	0.974	279
Sion-Aérodrome	2.881	0.927	0.963	181
Taenikon	2.145	0.954	0.659	252
Zuerich-Kaserne	3.956	1.016	0.663	182
Zuerich-Stampfenbach	2.040	0.902	0.687	168
Mittelwert	2.495	0.973		
Standardabweichung	0.998	0.088		

Tabelle 13 Lokale Regressionskoeffizienten für ein lineares Modell (robuste Regression). Für die Berechnungen wurden nur Messwerte aus den Jahren 2002–2003 verwendet.

Das Ergebnis für die robuste Regression fällt sehr ähnlich zum Resultat mit der Methode der kleinsten Quadrate aus (siehe oben). Die Koeffizienten sind beinahe dieselben. Anstelle des Bestimmtheitsmasses tritt bei der robusten Regression das „robuste R^2 “. Es bezeichnet den Anteil der Varianz, welcher durch das robuste Modell erklärt wird. Die Werte für die verschiedenen Stationen sind zwar untereinander vergleichbar, hingegen ist es nicht direkt mit dem R^2 aus der Regression mit kleinsten Quadraten vergleichbar.

5.2.5. VERGLEICH DES LINEAREN MODELLS MIT HVS-DATEN

Die Regressionskoeffizienten sind im robusten Fall bei fast allen Stationen sehr ähnlich wie im Fall der kleinsten Quadrate. Da die Umsetzung mit der Methode der kleinsten Quadrate für viele Anwender einfacher ist als eine robuste Regression - robust erfordert spezifische Statistik-Software, während kleinste Quadrate in Excel möglich ist - und weil die Resultate im Vergleich mit den HVS-Daten eine bessere Übereinstimmung zeigen (Tabelle 14), reicht die Bestimmung nach der Methode der kleinsten Quadrate (siehe Empfehlungen 6.2.2).

Die folgende Tabelle zeigt Mittelwerte und Zahl der Tage $> 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ für die lokalen, linearen Modelle $Y = a + bX$ nach beiden Methoden (kl. Quadrate, robust).

Korektur mit linearen Modellen $Y = a + bX$, Periode 2002 und 2003						
Stationen	Mittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$			Anzahl Tage $> 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$		
	HVS	kl. Quad.	robust	HVS	kl. Quad.	robust
Basel-Binningen	25.80	25.80	25.12	10	10	7
Bern	40.27	40.27	40.47	75	72	73
Chaumont	11.01	11.01	12.49	2	1	1
Duebendorf	26.24	26.24	25.55	21	17	14
Haerkingen	29.11	29.11	28.02	17	14	14
Lausanne	31.51	31.51	29.76	37	38	26
Lugano	33.92	33.92	33.70	30	27	27
Magadino	29.61	29.61	29.11	25	24	22
Payerne	23.77	23.77	23.62	19	18	19
Rigi-Seebodenalp	13.80	13.80	13.43	2	0	0
Roveredo	28.09	28.09	27.52	25	28	20
Sion-Aérodrome	24.18	24.18	24.42	3	7	7
Taenikon	22.63	22.63	21.28	15	13	6
Zuerich-Kaserne	27.25	27.25	26.35	16	13	10
Zuerich-Stampfenbachstrasse	29.35	29.35	29.63	13	15	17
Mittelwert	26.44	26.44	26.03	20.7	19.8	17.5
Standardabweichung	7.21	7.21	6.99	18.1	17.6	17.5

Tabelle 14 Mittelwerte und Anzahl Tage $> 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ für das lineare Modell. Für die Auswertungen wurden nur Messwerte aus den Jahren 2002–2003 verwendet.

Die Mittelwerte sind im Fall des linearen Modells nach Methode kleinsten Quadrate identisch mit den HVS Mittelwerten (auf diese Weise werden die Regressionsparameter bestimmt), im Fall der robusten Regression sind sie systematisch niedriger, durchschnittlich um 1.5%. Die Anzahl der Tage mit Überschreitung $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ist im robusten Fall ebenfalls systematisch kleiner als beim HVS, die mittlere Abweichung liegt bei ca. 3 Tagen. Die Methode der kleinsten Quadrate liefert demgegenüber Werte näher beim HVS, die mittlere Abweichung beträgt bloss knapp 1 Tag.

Beachte, dass die Ergebnisse in Tabelle 14 nicht für eine Beurteilung nach LRV (Grenzwerte eingehalten oder nicht) geeignet sind, weil es sich um Messwerte aus zwei Kalenderjahren handelt, und weil nur solche Tage für die Auswertung benutzt werden, für die Vergleichsdaten vorliegen. An den NABEL-Stationen trifft dies z.B. nur für jeden 4. Tag zu.

5.3. KORREKTURFAKTORMODELLE BETAMETER

5.3.1. MODELLSTRUKTUR

Die Modellierung geschieht durch einen einfachen Korrekturfaktor (k-Faktor):

$$Y = kX$$

Y : HVS Messwert, X : Betameter Messwert

Ein solches Modell mit einem einfachen k-Faktor ist zum Vergleichen der verschiedenen Stationen geeignet, da nur ein (und somit unabhängiger) Parameter zum Vergleich ansteht. Eine erste Möglichkeit zur Bestimmung des k-Faktors besteht in der Methode der kleinsten Quadrate mit erzwungenem Nulldurchgang. Durch den Verlust eines Freiheitsgrades kann jedoch die Minimierungsbedingung der Residuenquadrate nicht mehr erfüllt werden.

Im Folgenden werden drei Methoden zur Berechnung des k-Faktors vorgestellt:

- › **Mittelwert** der täglichen k-Werte ($k_i = Y_i/X_i$),
- › **lineare** Regressions des k-Faktors mit Messparametern,
- › **quadratische** Regression des k-Faktors mit der Temperatur und der Feuchte.

In einer Publikation von Gehrig et al. (2005) wird ebenfalls ein Umrechnungsmodell für Betameter-Geräte vorgestellt (siehe Kapitel 5.4). Auch in dieser Publikation wird das Verhältnis von Y und X als fundamentaler Parameter eingeführt. Beachte, dass dort aber der zu k inverse Faktor $X/Y = 1/k$ benutzt wird.

5.3.2. KONSTANTER KORREKTURFAKTOR

Für jede Station wurden die besten k-Werte bestimmt, siehe folgende Tabelle. Die Werte streuen zwischen 0.97–1.30. Die Verteilung ist ungleichmässig und hat kaum Ähnlichkeit mit einer Normalverteilung.

Stationen	k-Faktor $k = Y/X$
Basel-Binningen	1.197
Bern	0.976
Chaumont	1.300
Duebendorf	1.083
Haerkingen	1.179
Lausanne	1.253
Lugano	1.246
Magadino	1.191
Payerne	1.225
Rigi-Seebodenalp	0.968
Roveredo	1.069
Sion-Aérodrome	1.078
Taenikon	1.164
Zuerich-Kaserne	1.290
Zuerich-Stampfenbachstrasse	0.987
Mittelwert	1.15
Standardabweichung	0.11

Häufigkeitsverteilung k-Faktoren

k-Faktor	Anzahl
1.0	3
1.1	3
1.2	4
1.25	2
1.3	3

Tabelle 15 Lokale k-Faktoren im Zeitraum 2002–2003. Fett: $k < 1$, kursiv: > 1.26 .

Es fällt auf, dass keine regionalen Ähnlichkeiten erkennbar sind, im Gegenteil. Zum Beispiel haben die beiden alpinen Standorte, Rigi und Chaumont, ganz verschiedene Faktoren, ebenso Zürich-Kaserne und Zürich Stampfenbachstrasse. Dieses Resultate weist daraufhin, dass lokale Effekte stark sind und dass nicht einmal die Frage eindeutig zu beantworten ist, ob k grösser oder kleiner als 1 sei. Im Übrigen trifft der von der EC Working Group vorgeschlagene Wert $k = 1.3$ nur für 2 von 12 Stationen zu, an den anderen Stationen würde die Korrektur mit dem Faktor die HVS Werte (deutlich) überschätzen.

In Gehrig et al. (2005) werden kleine k-Faktoren mit der Anwesenheit von überdurchschnittlich vielen mineralischen PM₁₀-Anteilen erklärt. Mineralische Anteile weisen keine leicht flüchtigen Anteile auf, welche, wie beim Teom, bei der Messung verloren gehen können. Während der Verlust sich beim Teom in kleineren Messwerten bemerkbar macht, werden solche Verluste beim Betameter durch die unvermeidbare Kalibration (Relativmessung des Betameters!) teilweise ausgeglichen und führen bei geringen Verlusten zu Überschätzungen respektive zu niedrigen k-Faktoren. Dieser Sachverhalt trifft wohl für Bern (Strassenschlucht) und Rigi (Naturstrasse) zu und könnte auch in Zürich Stampfenbachstrasse der

Fall sein. Allerdings würde man auf Grund der Standortcharakteristik den Effekt auch für Lausanne und evtl. Lugano erwarten.

Die nächste Tabelle zeigt Resultate, wie sie mit dem lokalen Korrekturfaktormodell gewonnen werden können.

Korrektur mit lokalem k-Faktor, Periode 2002 und 2003						
Stationen	k-Faktor	Mittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$		Anzahl Tage > 50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$		
		HVS	$Y=kX$	HVS	$Y=kX$	$Y=a+bX$
Basel-Binningen	1.197	25.80	26.40	10	11	10
Bern	0.976	40.27	41.66	75	79	72
Chaumont	1.300	11.01	14.31	2	3	1
Duebendorf	1.083	26.24	27.17	21	24	17
Haerkingen	1.179	29.11	30.20	17	15	14
Lausanne	1.253	31.51	32.30	37	42	38
Lugano	1.246	33.92	35.35	30	35	27
Magadino	1.191	29.61	31.04	25	29	24
Payerne	1.225	23.77	24.47	19	21	18
Rigi-Seebodenalp	0.968	13.80	14.83	2	0	0
Roveredo	1.069	28.09	28.26	25	28	28
Sion-Aérodrome	1.078	24.18	25.07	3	10	7
Taenikon	1.164	22.63	23.34	15	16	13
Zuerich-Kaserne	1.290	27.25	28.43	16	18	13
Zuerich-Stampfenbachstrasse	0.987	29.35	30.18	13	19	15
Mittelwert	1.15	26.44	27.53	20.7	23.3	19.8
Standardabweichung	0.11	7.21	6.98	18.1	19.1	17.6

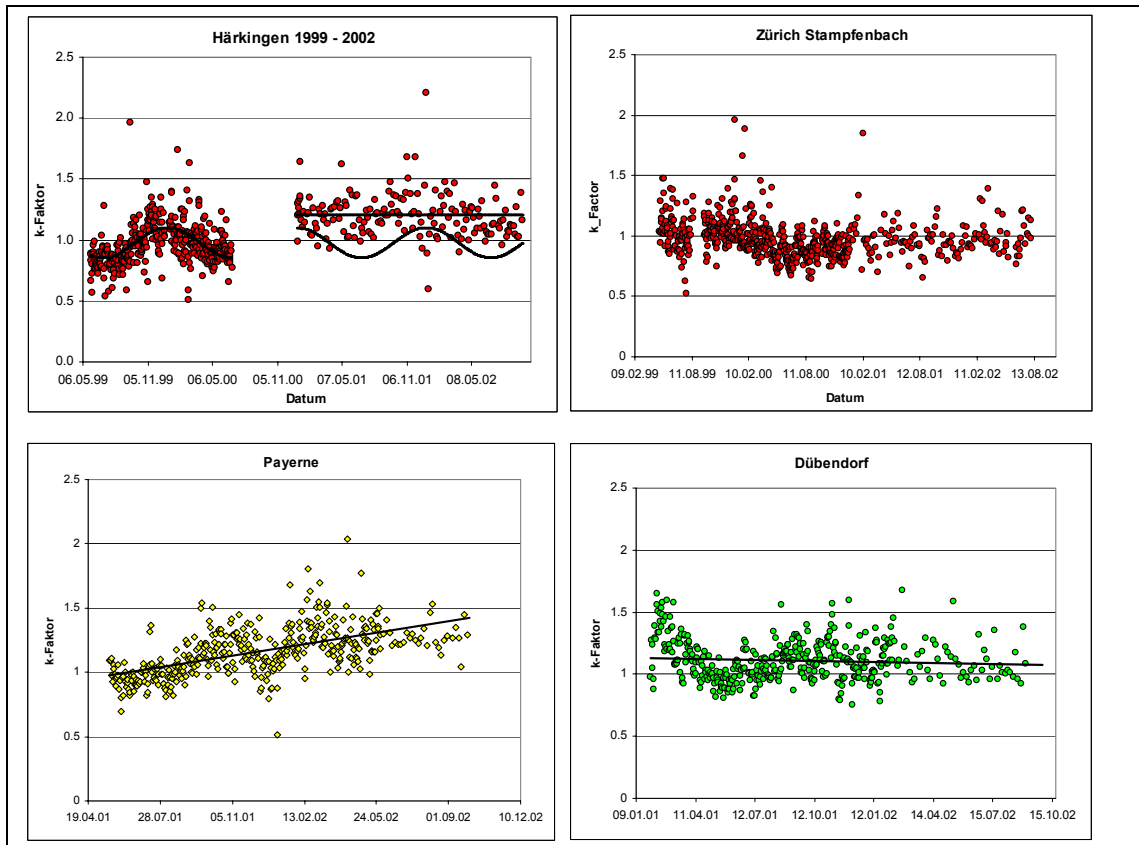
Tabelle 16 Resultate für das lokale Korrekturfaktormodell $Y=kX$, Vergleich mit dem HVS und dem linearen Modell $Y=a+bX$ (Messwerte 2002–2003).

Im Vergleich mit dem HVS hat das Korrekturfaktormodell die Tendenz, Mittelwert und Anzahl Tage > 50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ zu überschätzen, den Mittelwert im Durchschnitt 4%, die Anzahl Tage > 50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ um knapp 3 Tage.

Die Verallgemeinerung auf ein regionales Modell ist wegen der Standortabhängigkeit sicher nicht möglich.

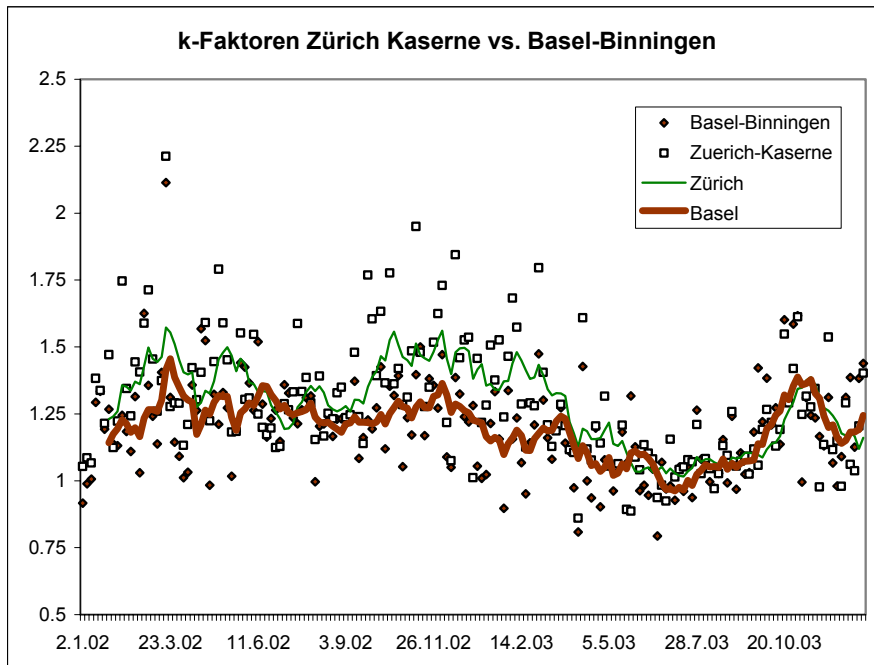
5.3.3. RÄUMLICHE UND ZEITLICHE VERÄNDERUNGEN DES K-FAKTORS

Der k-Faktor ist zeitlich variabel. An mehreren Stationen findet man saisonale Schwingungen und länger anhaltende Trends. Diese Veränderungen deuten an, dass neben dem Beta-meter-Messwert noch weitere Faktoren eine Rolle spielen. Gehrig et al. rapportieren ebenfalls die zeitlichen Variationen des k-Faktors, ohne dass sich dabei spezifisch saisonale Regelmässigkeiten zeigen würden.



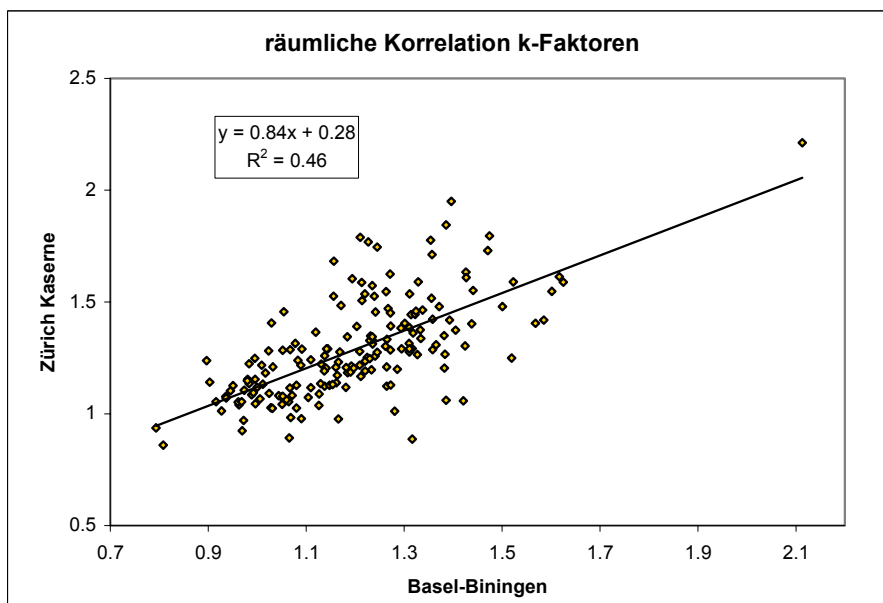
Figur 8 Zeitliche Veränderungen des k-Faktors an einzelnen Stationen.

Betrachtet man den räumlichen Zusammenhang zwischen den k-Faktoren verschiedener Standorte, so zeigt sich eine überraschend gute Korrelation. Dass die PM₁₀-Messwerte räumlich gut miteinander korreliert sind, ist bekannt. Dass aber auch die k-Faktoren korreliert sind, die ja eine Abweichung zwischen HVS und Betameter charakterisieren, ist erstaunlich. Als Beispiel sind die beiden Stationen Zürich-Kaserne und Basel-Binningen dargestellt.



Figur 9 Simultane Veränderungen des k-Faktors an verschiedenen Stationen.

Werden die Tageswerte in einem Scatterplot gegeneinander aufgetragen, findet man einen Korrelationskoeffizienten von $R = 0.677$ respektive ein Bestimmtheitsmass von $R^2 = 0.459$. Eine Zusammenstellung der Scatterplots aller Stationen befindet sich im Anhang A2.3.



Figur 10 Scatterplot der k-Faktoren von Zürich-Kaserne und Basel-Binningen.

Daraus liesse sich für eine neue Station, die lediglich mit einem Betameter-Gerät (ohne HVS) ausgerüstet ist, ein Modell aufstellen. Während eines Jahres müssten allerdings an der neuen Station Vergleichsmessungen durchgeführt und die k-Faktoren der neuen Station mit den k-Faktoren der „Referenzstation“ korreliert werden. Mit den Regressionskoeffizienten wären die späteren Tagesmittelwerte der neuen Station (nSt) wie folgt aus den Tagesmittelwerten der Referenzstation (Ref) umzurechnen:

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

Um ein solches Modell empfehlen zu können, braucht es aber Auswertungen über längere Perioden, in denen die Regressionskoeffizienten stabil bleiben müssten.

5.3.4. MULTILINEARE REGRESSION DES K-FAKTORS

a) Modellstruktur

Anstelle eines konstanten k-Faktors kann dieser mit einem Regressionsmodell geschätzt werden. Als erklärende Grössen werden Temperatur, relative Feuchte, Ozon und Stickoxide gewählt:

$$k = a + bT + cF + dO_3 + eNO_x$$

T : Temperatur

F : relative Feuchte

O₃: Ozon

NO_x: Stickoxide

a, b, c, d, e: Regressionskoeffizienten

Eine Abhängigkeit des k-Faktors von X, d.h. vom PM10-Niveau, wurde nicht beobachtet, X wird deshalb nicht als erklärende Grösse für k benutzt. In Gehrig et al. ist k (resp. 1/k) in Abhängigkeit von Y untersucht worden, ohne dass sich dabei Korrelationen gezeigt hätten (siehe dazu Fig. 4 in Gehrig et al. 2005).

b) Resultate der multilinenaren Regression

Im Anhang sind Regressionsresultate für alle Stationen angegeben, und zwar für die Methode der kleinsten Quadrate wie auch für die robuste Regression. Die lokalen Modelle unterscheiden sich beträchtlich, die Standardabweichungen sind bei allen Werten grösser als die Mittelwerte. Berücksichtigt man jedoch nur diejenigen mit signifikanten Werten (t-Wert > 2), ergeben sich folgende Resultate:

- › a: Schnittpunkt $a > 0$ mit einer Ausnahme (Davos)
- › b: Temperatur $b \leq 0$ mit zwei Ausnahmen (Bern, Rigi)
 ⇒ je grösser die Temperatur, umso kleiner der k-Faktor.
- › c: rel. Feuchte $c \geq 0$ ohne Ausnahme
 ⇒ je grösser die relative Feuchte, umso grösser der k-Faktor
- › d: NO_x $d \leq 0$ mit einer Ausnahme (Chur)
 ⇒ Je höher die NO_x -Konzentration, umso kleiner der k-Faktor
- › e: O_3 $e = 0$ keine Signifikanz bei den meisten Stationen

Die Temperatur hat tendenziell die gleiche Wirkung auf den k-Faktor wie beim Teom, wenn auch wesentlich weniger ausgeprägt (weiter unten wird sich zeigen, dass das Verhalten bezüglich Temperatur komplexer ist). Dass die relative Feuchte eine Rolle spielt, ist aus physikalischen Gründen zu erwarten (Chang 2003)⁴.

Mittelt man nur die signifikanten Werte, so sind die Standardabweichungen durchwegs kleiner als die Mittelwerte. Dies ergibt ein mittleres Modell, das sich jedoch mehr zu analytischen Zwecken als zum praktischen Einsatz eignet:

$$k = 0.941 - 0.00775 \cdot T + 0.0059 \cdot F - 0.00254 \cdot \text{NO}_x$$

Ein so konstruiertes Modell sagt etwas über die maximal zu erwartenden Wirkungen der einzelnen Parameter aus. Geht man von folgenden Wertebereichen aus $-10^\circ\text{C} < T < 30^\circ\text{C}$, $50\% < F < 100\%$ und $0 \text{ ppb} < \text{NO}_x < 100 \text{ ppb}$, so findet man pro Parameter einen absoluten Anteil von je etwa 0.15 am k-Faktor, also auch einen relativen von grob 15% bezogen auf den Basiswert von 0.941. Zum Vergleich liegt der Einfluss der Temperatur beim Teom ungefähr bei 30%.

Bei der Interpretation der Resultate sollte beachtet werden, dass evtl. vorhandene Merkmale nicht oder nur abgeschwächt zum Ausdruck kommen, weil in der überwiegenden Zahl von Messstationen (an allen NABEL-Standorten) nur jeder 4. Tag für Vergleichsanalysen zur Verfügung steht.

4 Bei hoher Luftfeuchtigkeit verdunstet weniger auf dem Aerosol absorbiertes Wasser als bei niedriger Feuchtigkeit.

5.3.5. QUADRATISCHE REGRESSION DES K-FAKTORS

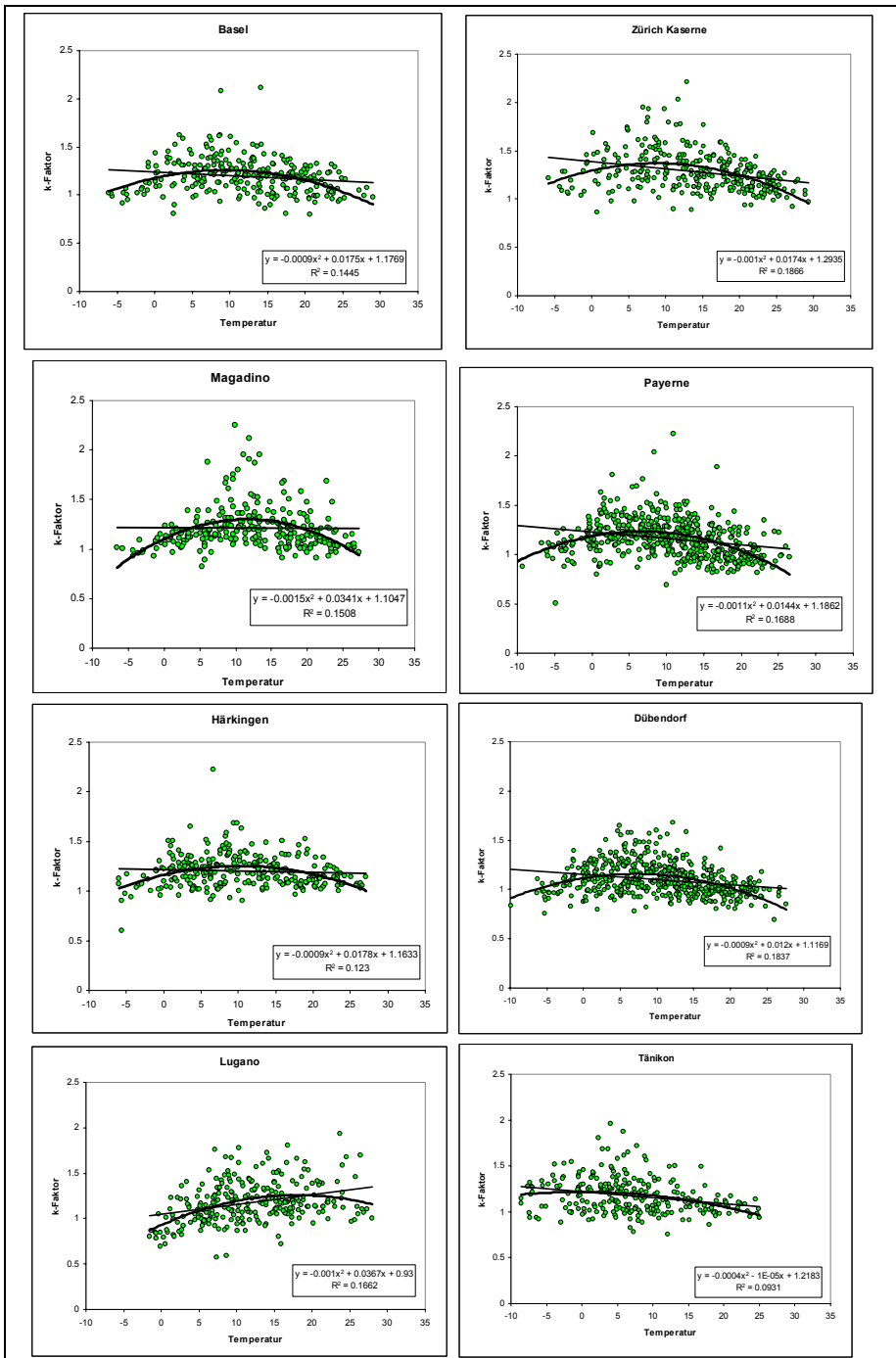
a) Modellstruktur

Da die multilinenen Regressionen kein befriedigendes Modell ergeben, wurden weitere, nicht-lineare Ansätze für den k-Faktor geprüft. Als aussichtsreichste Konstruktion erwies sich für den k-Faktor eine quadratische Funktion der Temperatur.

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

b) Resultate der quadratischen Regression

Wird der k-Faktor in Funktion der Temperatur aufgetragen, so zeigen die meisten Stationen eine grosse Streuung in der Umgebung von $T = 10^\circ\text{C}$. Bei höheren und bei tieferen Temperaturen ist die Streuung kleiner. Für Basel-Binningen und Payerne ist eine bogenförmige Anordnung erkennbar (umgedrehtes „Smiley“) mit einer charakteristische Abnahme der k-Faktoren bei hohen und tiefen Temperaturen. Eine solche Form lässt sich am einfachsten mit einer Parabel approximieren.



Figur 11 k-Faktor in Abhängigkeit der Temperatur. Eingezeichnet sind lineare und quadratische Fits.

Auf Grund Regressionskoeffizienten lassen sich 3 Stationstypen unterscheiden (gute, partielle und wenig Übereinstimmung mit quadratischer Abhängigkeit):

Quadratisches Modell $Y = k \cdot X = (0.001aT^2 + 0.001bT + 0.001cF + d) \cdot X$						
Station		a (1/°C) ²	b 1/°C	c 1/100%	d ---	Tage
Gute Übereinstimmung						
Härkingen	A	-0.687	16.4	2.34	0.954	181
Basel	B	-0.683	16.2	5.35	0.748	179
Zürich-Kaserne	C	-0.796	17.2	6.88	0.786	182
Payerne	D	-1.087	22.5	4.75	0.807	293
Sion	E	-0.531	17.3	4.78	0.654	181
Lugano	F	-1.069	34.0	4.61	0.737	171
Dübendorf	G	-0.588	11.2	3.29	0.823	229
Mittelwert		-0.778	19.3	4.57	0.787	
Standarabweichung		0.222	7.3	1.45	0.092	
partielle Übereinstimmung						
Rigi	H	-0.188	0.4	6.83	0.474	178
Magadino	I	-1.050	25.5	-1.36	1.200	182
Lausanne	J	-0.044	2.0	7.51	0.721	255
Tänikon	K	-0.373	3.3	4.76	0.813	252
Bern	L	-0.288	13.9	4.34	0.580	294
Mittelwert		-0.389	9.0	4.42	0.758	
Standarabweichung		0.389	10.6	3.49	0.279	
wenig Übereinstimmung						
Zürich Stampfenbachstrasse	M	-0.243	4.6	-0.206	0.997	168
Chaumont	N	-0.276	5.9	12.692	0.350	287
Roveredo (nur 2003)	O	-0.050	5.3	0.390	0.986	181
Mittelwert		-0.190	5.3	4.29	0.778	
Standarabweichung		0.122	0.6	7.28	0.370	

Tabelle 17 Lokale und mittlere Regressionskoeffizienten für das quadratische Modell. Messwerte 2002-2003 (Ausnahme Roveredo: nur 2003).

Für 7 Stationen (A-G) zeigt sich ein homogenes Bild bezüglich der Regressionskoeffizienten. 5 weitere Stationen (H-L) haben nur eine partielle Übereinstimmung, was bedeutet, dass die Koeffizienten a klein werden und nicht mehr signifikant von Null verschieden sind, oder dass in Magadino der Koeffizient c ein anderes Vorzeichen besitzt. Bei den übrigen 3 Stationen (M-O) sind die Abweichung noch ausgeprägter. Unter den Stationen, die wenig Übereinstimmung zeigen, befindet sich Bern und Lausanne, die beiden Strassenschlucht-Stationen sowie Rigi und Chaumont, die beiden hochgelegenen Stationen (> 1000m ü.M.)

c) Vergleich mit HVS-Daten

Korrektur mit lokalem Quadratmodell, Periode 2002-2003				
Stationen	Mittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$		Anzahl Tage $> 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$	
	HVS	$Y=k(T,F)*X$	HVS	$Y=k(T,F)*X$
Basel-Binningen	25.8	26.0	10	11
Bern	40.3	41.1	75	75
Chaumont	11.0	13.5	2	2
Dübendorf	26.2	26.9	21	25
Haerkingen	29.1	29.8	17	15
Lausanne	31.5	32.1	37	39
Lugano	33.9	35.0	30	31
Magadino	29.6	30.4	25	26
Payerne	23.8	24.0	19	16
Rigi-Seebodenalp	13.8	14.3	2	1
Roveredo	28.1	28.1	25	25
Sion-Aérodrome	24.2	24.7	3	8
Taenikon	22.6	23.3	15	18
Zuerich-Kaserne	27.3	28.0	16	17
Zuerich-Stampfenbachstrasse	29.3	30.1	13	21
Mittelwert	26.4	27.2	20.7	22.0
Standardabweichung	7.2	7.0	18.1	17.9
Abweichung vom HVS	2.7%		6.5%	

Tabelle 18 Resultate für das lokale Korrekturfaktormodell mit quadratischer Temperatur-Abhängigkeit. Messdaten Periode 2002-2003.

Die lokalen Modelle zeigen eine gute Übereinstimmung mit den HVS Kennwerten: Die Mittelwerte werden durchschnittlich nur gerade um 2.7% überschätzt, die Zahl der Tage $>50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ werden im Durchschnitt mit 22 vorausgesagt, die HVS Daten ergeben 20.7, was einer Überschätzung von 6.5% entspricht. Bei 8 von 15 Stationen ist die Differenz 0 oder 1 Tag, bei 4 weiteren Stationen 2 oder 3 Tage. 4, 5 respektive 8 Tage Differenz kommen bei je einer Station vor. Die obige Klassierung der Stationen mit gut, partiell und wenig Übereinstimmung ist nicht gleichbedeutend mit der Differenz zwischen HVS und Modell.

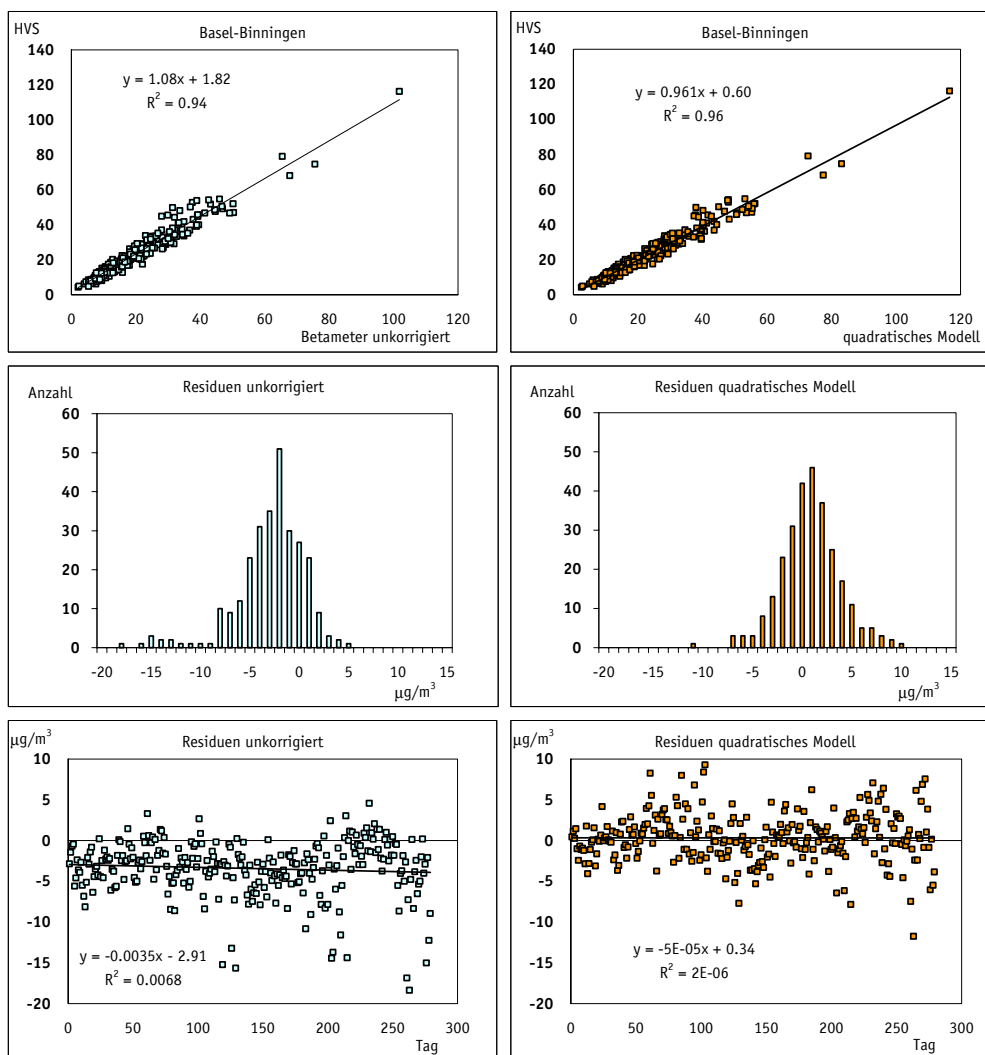
d) Resultate zum statistischen Verhalten des quadratischen Modells

Am Beispiel der Station Basel-Binningen sollen einige Detailresultate illustriert werden.

- › Die Scatterplots zeigen die Verbesserung in den Regressionskoeffizienten und in der Korrelation.
- › Die Residuen nähern sich mit der Korrektur besser an eine Normalverteilung: Chi-Quadrat verbessert sich von 384 auf 60, die Prüfgrösse beträgt 319 auf dem 5%-Niveau; damit wird

die Hypothese für die Normalverteilung bei der unkorrigierten Residuen abgelehnt, bei den korrigierten Residuen jedoch akzeptiert.

- › Die Residuen in Funktion der Zeit zeigen nach der Modellkorrektur weniger Autokorrelation, der Durbin-Watson Koeffizient verbessert sich von 0.77 auf 1.54⁵.
- › Dieselben Parameter sind für das lineare Modell ($Y=a+bX$) schwächer als für das quadratische Modell.



Figur 12 Resultate für Basel-Binningen. Oben: Scatterplots, Mitte: Verteilung der Residuen, unten: Residuen in Funktion der Tagesnummer (die Periode deckt 2002/2003 ab, nur jeden 4. Tag). In den Bildern links sind die unkorrigierten Betameterdaten (blau), rechts die mit dem lokalen quadratischen Modell korrigierten Daten (orange).

- 5 Durbin-Watson Koeffizient d: für unkorrelierte Daten gilt $d=2$, für Daten mit vollständiger positiver (negativer) Korrelation gilt $d=0$ ($d=4$).

e) Zur Interpretation des Modells

- › Das Absinken des k-Faktors für wachsende Temperaturen kann auf Grund der Beheizung (Ansaugrohr ca. 35°C, Filter 25-30°C) und dem damit verbundenen Verlust leicht flüchtiger Substanzen verstanden werden: Je höher die Temperatur, umso geringer die Verluste, umso besser die Übereinstimmung mit dem HVS und umso kleiner k. Dieser Mechanismus mag bei Temperaturen über 10°C das Verhalten qualitativ zu erklären.
- › Für Temperaturen unterhalb 10°C wäre eine Verstärkung des oben genannten Verhaltens zu erwarten und damit eine weitere Erhöhung des k-Faktors. Beobachtet wird aber gerade das umgekehrte Verhalten, der k-Faktor wird wieder kleiner. Eine Erklärung für diesen Effekt ist vorläufig ausstehend.

f) Regionales Modell

Im Vergleich zu den früheren Auswertungen liegt mit dem quadratischen Modell erstmals eine Umrechnungsformel vor, die zumindest einen Teil der Abweichungen zum HVS bei einer Mehrheit der Stationen erklären kann. Deshalb wird ein regionales Modell vorgeschlagen, damit die LRV-Parameter aller Stationen bestimmt und diese mit den HVS Daten verglichen.

Von den 7 Stationen mit guter Übereinstimmung zur quadratischen Abhängigkeit werden die Regressionsparameter gemittelt. Die Mittelwerte werden als Modellparameter eingesetzt:

$$Y = k(T, F) \cdot X = \left(\frac{-0.778}{1000} \cdot T^2 + \frac{19.3}{1000} \cdot T + \frac{4.57}{1000} \cdot F + 0.787 \right) \cdot X$$

Dabei ist T in °C und F in % und der Betameter-Messwert in µg/m³ einzusetzen.

Mit dem Modell werden Mittelwert und Anzahl Tage > 50 µg/m³ berechnet:

Korrektur mit regionalem Quadratmodell, Periode 2002-2003					
Stationen	Mittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$		Anzahl Tage > 50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$		Qualität lok. Modell
	HVS	$Y=k(T,F)*X$	HVS	$Y=k(T,F)*X$	
Basel-Binningen	25.8	25.9	9	11	gut
Bern	40.3	49.9	108	75	wenig
Chaumont	11.0	12.7	2	2	gut
Dübendorf	26.2	29.3	31	25	partiell
Haerkingen	29.1	30.1	16	15	gut
Lausanne	31.5	30.0	33	39	gut
Lugano	33.9	33.1	27	31	gut
Magadino	29.6	30.6	29	26	gut
Payerne	23.8	23.6	16	16	gut
Rigi-Seebodenalp	13.8	17.9	3	1	wenig
Roveredo	28.1	30.5	37	25	partiell
Sion-Aérodrome	24.2	26.9	12	8	partiell
Taenikon	22.6	23.6	13	18	gut
Zuerich-Kaserne	27.3	25.2	12	17	partiell
Zuerich-Stampfenbachstrasse	29.3	35.0	31	21	wenig
Mittelwert	26.4	28.3	25.3	22.0	
Standardabweichung	7.2	8.3	25.5	17.9	
Abweichung vom HVS	7.0%		-12.9%		

Tabelle 19 Resultate für das regionale Korrekturfaktormodell mit quadratischer Temperatur-Abhängigkeit. Messdaten Periode 2002-2003.

Beim Mittelwert betragen die Abweichungen im Durchschnitt $1.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (6.3%). Die Abweichungen bei der Anzahl Tage > 50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ sind im Durchschnitt 3.2 Tage (-13%). Wo die lokalen Modell wenig Übereinstimmung mit dem quadratischen Verhalten zeigen (Bern, Rigi, ZH-Stampfenbachstrasse), sind die Abweichungen effektiv auch grösser als an den Standorten mit besserer Übereinstimmung.

5.3.6. MODELLVERGLEICH

Die voran gehenden Analysen lassen folgenden Modellvergleich zu:

- › Lokale lineare Modelle und lokale (multi-)lineare Korrekturfaktormodelle können im besten Fall die Korrelation über die geforderte Grenze von $R^2 > 0.95$ verbessern, aber die Standortunterschiede sind zu gross, um ein regionales Modell definieren zu können. Für die Festlegung eines Umrechnungsmodells sind die beiden Regressionsmethoden robust und kleinste Quadrate etwas gleich stark. Die Ergebnisse für LRV-Parameter stimmen mit den vorliegenden Messresultaten im Fall der kleinsten Quadrate sogar etwas besser überein als bei robuster Regression. Für beide Methoden sind die lokalen Unterschiede aber so gross, dass sich kein regionales Modell ableiten lässt.

- › Am stärksten schneidet das Korrekturfaktormodell mit einem quadratischen Temperatur- und einem linearen Feuchte-Term ab. Als einziges unter allen untersuchten Modellen erlaubt es, ein regionales Modell zu definieren (Ein solches hat den Vorteil, dass Umrechnungen für allein stehende Betameter ohne paralleles HVS gestattet.)

5.4. UMRECHNUNGSMODELL NABEL

An der Station Härkingen führte das NABEL 1999 und 2000 Vergleichsmessungen zwischen HVS, Teom und Betameter durch; dazu wurden alle Tage bemessen. Im Jahr 2001 wurden 13 NABEL-Stationen mit HVS- und Betameter-Geräten ausgerüstet. In den ersten Monaten 2001 wurden alle Geräte noch permanent betrieben. Um die hohen Betriebskosten zu reduzieren, wurden ab 2002 die HVS-Geräte nur noch jeden 4. Tag eingesetzt, die Betameter aber weiterhin permanent betrieben. Zu diesem Messkonzept wurde ein Modell entwickelt, das die Betameter- an die HVS-Daten anpasst: An Tagen, an denen sowohl Betameter wie auch HVS Tageswerte vorliegen, werden die Betameterdaten mit dem k-Faktor korrigiert. An den übrigen Tagen ohne HVS-Daten werden die Betameterdaten mit den aus Vor- und Folgetag gemittelten k-Faktor korrigiert. Die korrigierte Messreihe erfüllt (mit Ausnahme der Station Chaumont) alle Bedingungen für Gleichwertigkeit mit der Referenzmethode gemäss EN 12341 (CEN 1998). Weitere Details und Auswertungen zum Modell sind in der Publikation Gehrig et al. (2005) gegeben.

5.5. EMPFEHLUNGEN DER EC WORKING GROUP ON PARTICULATE MATTER

Im Bericht der EC Working Group (EC PM 2001) werden Resultate der europäischen Vergleichsmessungen präsentiert. Im Durchschnitt aller Messdaten wurde ein Korrekturfaktor $k = 1.15$ ($Y = kX$) bestimmt. Allerdings zeigten sich Gruppen mit verschiedenen Mittelwerten

- › $k = 1.04$: Dänemark, Finnland, Spanien, Schweiz,
- › $k = 1.30$: Deutschland, Österreich für Messperioden während des Winters.

Die europäischen Resultate brachten zudem Evidenz für eine saisonale Schwankung ähnlich dem Teom-Gerät mit k-Werten um 1.0 während des Sommers und 1.3 während des Winters, allerdings mit erheblichen standort-abhängigen Unterschieden. Die Streubreite der k-Faktoren deckt sich weitgehend mit den in der vorliegenden Studie zur Verfügung stehenden Messresultaten für die Schweiz.

Die Working Group empfiehlt den Mitgliedstaaten, für k den Default-Wert von 1.3 zu verwenden, solange kein Äquivalenzverfahren etabliert ist. Gleichzeitig empfiehlt sie, eige-

ne Vergleichsmessungen durchzuführen, daraus länder-spezifische Umrechnungsverfahren abzuleiten und diese bei der Europäischen Kommission einzureichen. Im Weiteren gibt die Working Group zu bedenken: "It will be necessary to revisit these issues as our scientific understanding develops and as CEN undertakes further work on monitoring particulate matter and on demonstrating equivalence. This will be important for review of the implementation of Directive 1999/30 in 2003."⁶ Das bedeutet, dass mit der zitierten Empfehlung aus europäischer Sicht das letzte Wort zur Umrechnung von Betameter-Messreihen noch nicht gesprochen ist.

6 RICHTLINIE 1999/30/EG DES RATES vom 22. April 1999 über Grenzwerte für Schwefeldioxid, Stickstoffdioxid und Stickstoffoxide, Partikel und Blei in der Luft

6. SCHLUSSFOLGERUNGEN, EMPFEHLUNGEN UND AUSBLICK

6.1. SCHLUSSFOLGERUNGEN

6.1.1. TEOM-GERÄTE

Mit dem Korrekturfaktormodell und den Perioden- und Energiemodellen stehen gute Hilfsmittel für die Umrechnung von Teom-Messreihen auf unterschiedlichen Anspruchsniveaus zur Verfügung. Während das einfache Korrekturfaktormodell für die schnelle Abschätzung von Jahresmittelwerten genügend gut ist, können Perioden- und Energiemodelle als Erweiterungen des Korrekturfaktormodells interpretiert werden und erfüllen höhere Ansprüche. Beide liefern gute Schätzwerte aus unvollständigen Datensätzen, sind auch für die Schätzung von saisonalen Mittelwerten und Halbstundenwerten geeignet. Lokale Unterschiede sind vorhanden und können durch Hinzunehmen weiterer Messparameter nicht erklärt werden. Weil die lokalen Unterschiede aber nicht sehr gross sind, lassen sich regionale Energie- und Periodenmodelle mit mittleren Regressionskoeffizienten angeben. Damit werden die Korrelationen verbessert, im Allgemeinen kann damit aber Gleichwertigkeit mit der Referenzmethode nicht generell erreicht werden kann. Energie- und Periodenmodell sind statistisch gesehen ungefähr gleich stark. Für die Modellempfehlungen wird das Energiemodell bevorzugt; folgende Gründe sprechen dafür:

- › Das Energiemodell ist anders als das Periodenmodell rein statistischer Natur. Für die Umsetzung und Automatisierung bedarf es keines Datums und keiner Zeitnormierung, dadurch wird es einfacher, weniger fehleranfällig als das Periodenmodell.
- › Beim Energiemodell spielt es keine Rolle, ob die Temperaturkompensation auf Halbstunden- oder auf Tagesmittelwerte angewandt wird. Damit ist auch für die Umsetzung von Halbstundenwerten das Energiemodell einfacher als das Periodenmodell.

6.1.2. BETAMETER-GERÄTE

Anders als beim Teom sind die unkorrigierten Betameter-Messreihen im Allgemeinen bereits „nahe“ an den HVS-Messreihen. Allerdings nicht so nahe, dass die Bedingungen für die Gleichwertigkeit mit der Referenzmethode erfüllt wären. Zudem kann es für einzelne Standorte grössere Abweichungen geben, zum Beispiel, wenn im PM10 besonders hohe mineralische Anteile aus lokalen Quellen enthalten sind. Daum braucht es auch für Betameter-Messreihen Umrechnungsmodelle.

Lokale lineare Umrechnungsmodelle können im Einzelfall die Datenreihen so weit verbessern, dass die Bedingung $R^2 > 0.95$ erfüllt ist, allerdings gibt es keine Garantie dafür. Je nach Verteilung der Residuen (symmetrisch-*asymmetrisch*) ist die Methode der kleinsten

Quadrate respektive eine robuste Regression vorzuziehen. Die Regressionskoeffizienten sind in beiden Fällen lokal zu verschieden, um ein regionales Modell ableiten zu können.

Die Modellierung mit einem konstanten Korrekturfaktor k zeigt ebenfalls lokal grosse Unterschiede, an den meisten Standorten sind die k -Faktoren >1 (Betameter unterschätzt HVS), aber es kommen auch Standorte mit $k < 1$ (Betameter überschätzt HVS) vor. Dieses unterschiedliche Verhalten kann eventuell durch die Geräte-Kalibrierung und durch unterschiedliche Zusammensetzung des PM10 (mehr oder weniger hohe mineralische und leicht flüchtige Anteile) erklärt werden. Unregelmässige periodische Änderungen des k -Faktors erschweren die Interpretation. An einer Mehrheit der Stationen ist eine saisonale Schwankung erkennbar, die primär von der Temperatur und der Feuchte getrieben ist. Ein Modell mit quadratischer Temperatur- und linearer Feuchte-Abhängigkeit ergibt deshalb die besten Umrechnungsergebnisse. Die Regressionskoeffizienten streuen bei einer grossen Gruppe von Stationen relativ wenig und gestatten, ein regionales Modell zu definieren, das zumindest teilweise auch für Stationen benutzt werden kann, welche nicht zur Gruppe gehören.

6.2. MODELLEMPFEHLUNGEN

6.2.1. 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.

a) 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 $Y_{\text{per}}(t) := X(t) \cdot \left[1.27 - 0.30 \cdot \sin\left(2\pi \cdot \frac{t - t_0 - 7.8d}{365} \right) \right]$ t-t ₀ : Differenz zwischen Messdatum und 21. März (Funktion DateDiff) für Halbstundenmittel siehe in-LUFT (2002)

Tabelle 20 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 21 Teom-Modellempfehlung für Jahresmittelwerte

b) Empfehlung für Stationen mit Teom und mit HVS für 1 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.

c) 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 (siehe Kap. 5.3.3):

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

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.

6.2.2. 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.

a) 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 22 Betameter Modellempfehlung für Tagesmittelwerte

b) Empfehlung für Stationen mit Betameter und mit HVS für 1 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!⁷

- › 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).

c) Empfehlung für Stationen mit Betameter und mit permanentem HVS

Es wird empfohlen, die Betameter-Messreihen gemäss **NABEL-Methode** (Kap. 5.4) 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 (siehe Kap. 5.3.3):

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

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.

⁷ 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 $b' = b$.

6.3. 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 aufrecht erhalten, 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.

ANNEX ERGÄNZENDE MODELLRESULTATE

A1. TEOM-MESSREIHEN

A1.1 PERIODENMODELL

Station	Periode	Periodenmodell					HVS	
		Regressionsparameter			Mittelwert	Tage >50	Mittelwert	Tage >50
		A	B	C	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	Anzahl	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	Anzahl
Luzern	4.00 bis 3.01	1.16	-0.19	13.7	26.9	11	23.1	11
	9.01 bis 8.02	1.36	-0.20	60.3	25.8	27	25.9	27
Suhr	9.01 bis 8.02	1.23	-0.24	58.4	27.9	32	28.3	28
Basel	2001	1.01	-0.21	18.7	21.0	8	20.3	6
	2002	1.05	-0.18	21.3	21.9	17	21.8	18
Erstfeld	2002	1.17	-0.17	64.2	19.6	7	19.3	7
	2003	1.19	-0.17	50.9	21.8	7	21.9	9
Frauenfeld	9.01 bis 8.02	1.22	-0.14	52.2	24.3	21	24.1	24
	2002	1.23	-0.12	40.9	24.0	22	24.3	21
Reiden	2003	1.17	-0.18	66.2	29.0	36	28.8	33
Wallisellen	4.00 bis 3.01	1.15	-0.23	16.2	20.6	4	20.7	4
	4.01 bis 3.02	1.25	-0.13	23.7	20.8	9	22.6	14
Mittelwerte	1. Betr.jahr	1.16	-0.19	41.4	24.2	17	23.5	16.1
Standardabweichungen		0.07	0.04	24.0	3.8	12.8	3.8	11.9
Mittelwerte	2. Betr.jahr	1.22	-0.16	39.4	22.9	16.4	23.3	17.8
Standardabweichungen		0.11	0.04	16.9	2.0	8.5	1.8	6.8
Mittelwerte	alle	1.18	-0.18	40.6	23.6	16.8	23.4	16.8
Standardabweichungen		0.09	0.04	20.5	3.1	10.8	3.0	9.7

Tabelle 23 Parameter des Periodenmodells für die neuen Messdaten.

Wallisellen, Teom mit Nafion							
Kalibrierperiode	->	HVS	Periodenmodell lokal				regional
			p1	p2	p3	p4	
	A		1.24	1.15	1.27	1.25	1.17
	B		-0.14	-0.233	-0.108	-0.126	-0.23
	C		18.4	13.7	21.1	20.1	15.3
Mittelwert							
08.04.00-30.09.02	p1	21.4	21.2	19.5	21.8	21.4	19.8
08.04.00-10.04.01	p2	20.5	22.1	20.4	22.7	22.3	20.8
11.04.01-30.09.02	p3	21.7	20.9	19.1	21.5	21.1	19.5
11.04.00-10.04.02	p4	23.0	22.7	21.2	23.2	22.8	21.5
Standardabweichung							
08.04.00-30.09.02	p1	11.5	11.3	11.1	11.4	11.3	11.2
08.04.00-10.04.01	p2	11.4	11.2	10.9	11.4	11.3	11.1
11.04.01-30.09.02	p3	11.5	11.3	11.1	11.4	11.3	11.3
11.04.00-10.04.02	p4	12.9	12.6	12.5	12.6	12.6	12.6
Anzahl > 50							
08.04.00-30.09.02	p1	18	18	13	20	19	15
08.04.00-10.04.01	p2	4	5	4	6	6	5
11.04.01-30.09.02	p3	14	13	9	14	13	10
11.04.00-10.04.02	p4	14	13	9	14	13	10
Bestimmtheitsmass							
08.04.00-30.09.02	p1		0.894	0.885	0.891	0.893	0.886
08.04.00-10.04.01	p2		0.885	0.903	0.872	0.880	0.903
11.04.01-30.09.02	p3		0.908	0.890	0.908	0.908	0.892
11.04.00-10.04.02	p4		0.907	0.895	0.906	0.907	0.897

Tabelle 24 Ergebnisse lokales Periodenmodell für die Station Wallisellen. Es werden 4 Perioden p1, p2, p3, p4 ausgewählt und je Periode die Regressionskoeffizienten bestimmt. Mit diesen 4 Modellvarianten werden die Parameter Mittelwerte, Standardabweichung, Anzahl Tage >50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ und Bestimmtheitsmass R^2 für alle 4 Perioden berechnet. Die entsprechenden Werte HVS sind ebenfalls angegeben. Grau unterlegte Zellen: Kalibrier- und Berechnungsperiode sind identisch. Letzte Spalte „regional“: Parameter in der Kalibrierung des regionalen Modells.

A1.2 ENERGIEMODELL

Station	Periode	Energiemodell					HVS	
		Regressionsparameter			Mittelwert	Tage >50	Mittelwert	Tage >50
		a	b	c	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	Anzahl	$\mu\text{g}/\text{m}^3$	Anzahl
Luzern	4.00 bis 3.01	-0.017	1.35	0.61	26.7	11	23.1	11
	9.01 bis 8.02	-0.013	1.49	0.61	25.9	27	25.9	27
Suhr	9.01 bis 8.02	-0.016	1.31	2.24	28.3	35	28.3	28
Basel	2001	-0.017	1.27	-0.67	21.0	6	20.3	6
	2002	-0.016	1.26	-0.02	21.8	17	21.8	18
Erstfeld	2002	-0.011	1.47	-3.33	19.1	7	19.3	7
	2003	-0.011	1.40	-2.00	21.7	9	21.9	9
Frauenfeld	9.01 bis 8.02	-0.009	1.32	0.14	24.7	19	24.1	24
	2002	-0.010	1.31	1.24	24.3	20	24.3	21
Reiden	2003	-0.008	1.33	-1.99	28.8	35	28.8	33
Wallisellen	4.00 bis 3.01	-0.021	1.38	-0.14	22.6	5	20.7	4
	4.01 bis 3.02	-0.009	1.33	0.27	22.6	9	22.6	14
Mittelwerte	1. Betr.jahr	-0.014	1.35	-0.45	24.5	16.9	23.5	16.1
Standardabweichungen		0.005	0.06	1.80	3.7	13.2	3.8	11.9
Mittelwerte	2. Betr.jahr	-0.012	1.36	0.02	23.3	16.4	23.3	17.8
Standardabweichungen		0.003	0.09	1.22	1.8	7.7	1.8	6.8
Mittelwerte	alle	-0.013	1.35	-0.25	24.0	16.7	23.4	16.8
Standardabweichungen		0.004	0.07	1.54	3.0	10.8	3.0	9.7

Tabelle 25 Lokale Energiemodelle: Regressionsparameter. Die LRV-Parameter und der Vergleich mit dem HVS sind identisch mit Tabelle 11.

Wallisellen, Teom mit Nafion							
Kalibrierperiode	->	HVS	Energiemodell lokal				ECE
			p1	p2	p3	p4	
	a		-0.011	-0.021	-0.008	-0.009	0
	b		1.32	1.38	1.32	1.33	1.3
	c		0.663	-0.138	0.654	0.334	0
Mittelwert							
08.04.00-30.09.02	p1	21.4	21.4	19.7	22.0	21.7	22.6
08.04.00-10.04.01	p2	20.5	22.2	20.5	22.7	22.4	23.3
11.04.01-30.09.02	p3	21.7	21.2	19.5	21.7	21.4	22.4
11.04.00-10.04.02	p4	23.0	22.8	21.4	23.3	23.0	23.7
Standardabweichung							
08.04.00-30.09.02	p1	11.5	10.8	11.1	11.0	11.0	11.3
08.04.00-10.04.01	p2	11.4	10.8	10.8	11.0	11.0	11.5
11.04.01-30.09.02	p3	11.5	10.8	11.1	10.9	11.0	11.2
11.04.00-10.04.02	p4	12.9	12.1	12.6	12.2	12.3	12.4
Anzahl > 50							
08.04.00-30.09.02	p1	18	14	15	14	14	17
08.04.00-10.04.01	p2	4	5	4	5	5	4
11.04.01-30.09.02	p3	14	9	11	9	9	13
11.04.00-10.04.02	p4	14	9	11	9	9	13
Bestimmtheitsmass							
08.04.00-30.09.02	p1		0.890	0.871	0.888	0.889	0.862
08.04.00-10.04.01	p2		0.881	0.900	0.866	0.868	0.809
11.04.01-30.09.02	p3		0.902	0.871	0.905	0.904	0.888
11.04.00-10.04.02	p4		0.901	0.875	0.902	0.902	0.886

Tabelle 26 Ergebnisse lokales Energiemodell für die Station Wallisellen. Es werden 4 Perioden p1, p2, p3, p4 ausgewählt und je Periode die Regressionskoeffizienten bestimmt. Mit diesen 4 Modellvarianten werden die Parameter Mittelwerte, Standardabweichung, Anzahl Tage >50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ und Bestimmtheitsmass R^2 für alle 4 Perioden berechnet. Die entsprechenden Werte HVS sind ebenfalls angegeben. Grau unterlegte Zellen: Kalibrier- und Berechnungsperiode sind identisch. Letzte Spalte „regional“: Parameter in der Kalibrierung der von der ECE vorgeschlagenen Umrechnung $Y=1.3X$.

A1.3 ANALOGIE ENERGIEMODELL – PERIODENMODELL

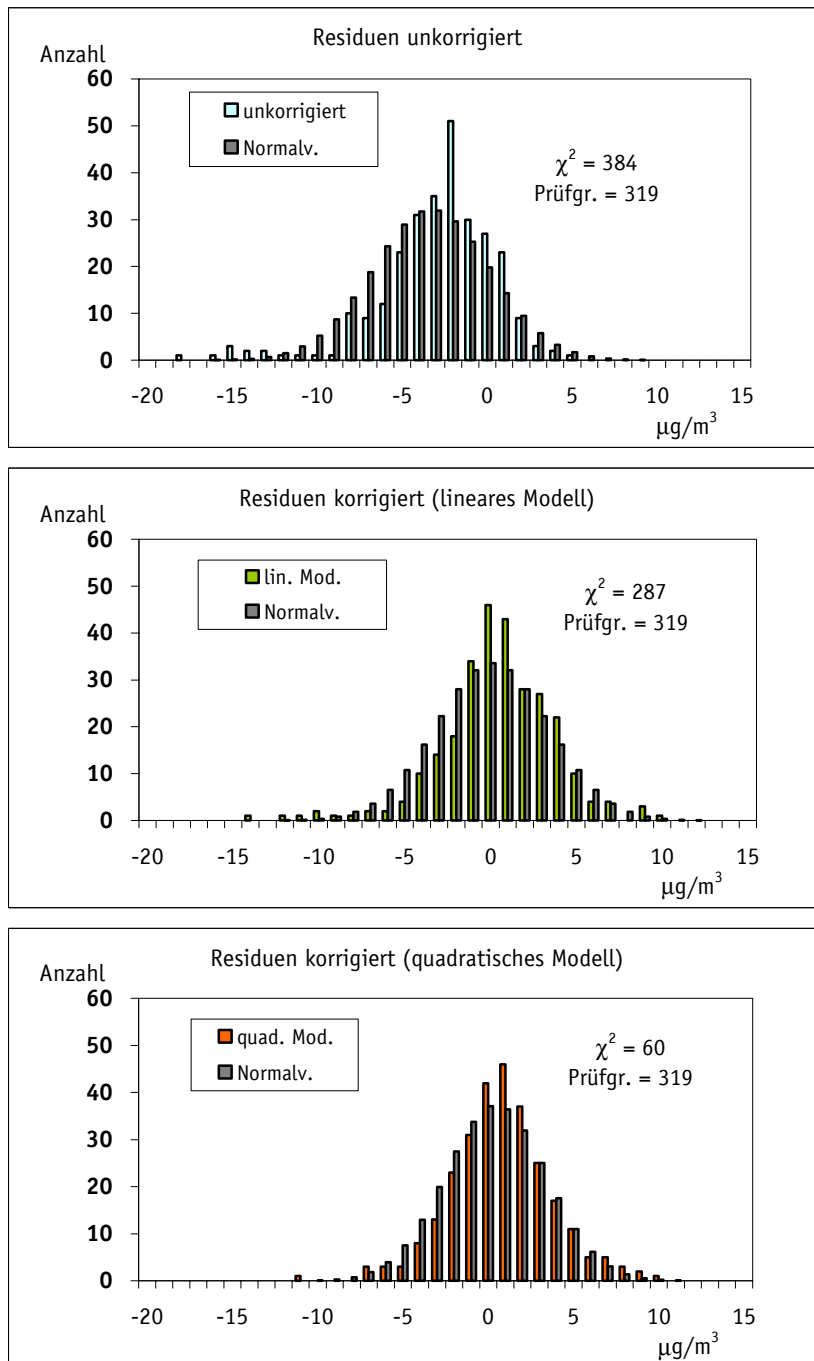
Periodenmodell	Energiemodell
Konvention M Tagesmittelwerte (fett, gross) m Halbstundenwerte (fett, klein)	
Messwerte, Prüfgrösse und Schätzung X, x PM10 TEOM $\mu\text{g}/\text{m}^3$ Y, y PM10 HVS $\mu\text{g}/\text{m}^3$	Messwerte, Prüfgrösse und Schätzung X, x PM10 TEOM $\mu\text{g}/\text{m}^3$ Y, y PM10 HVS $\mu\text{g}/\text{m}^3$ T, t Temperatur $^{\circ}\text{C}$
Konstanten A, B, C, (D, E)	a, b, c
Jahresmodell d Datum in Tagen d ₀ Frühlingspunkt 21.03.xx ω_d Kreisfrequenz $2\pi/365$	T _m mittlere Jahrestemperatur
Tagesmodell h Zeit in Halbstunden h ₀ Morgenpunkt 06:00 ω_h Kreisfrequenz $2\pi/48$	t _m mittlere Tagestemperatur
Formel $\mathbf{Y} = [A + B \sin(\omega_d(d - d_0 - C))] \mathbf{X}$ $\mathbf{y} = \mathbf{Y} + D \sin(\omega_h(h - h_0 - E)) \mathbf{x}$	$\mathbf{Y} = a\mathbf{X} + b\mathbf{TX} + c$ $\mathbf{y} = a\mathbf{x} + b\mathbf{tx} + c$
Linearisierung $\mathbf{Y} = A\mathbf{X}$ $\mathbf{y} = [A + B \sin(\omega_d(d - d_0 - C))] \mathbf{x}$	$\mathbf{Y} = (a + bT_m) \mathbf{X}$ $\mathbf{y} = (a + bt_m) \mathbf{x}$
Interpretation B, D Periodische Schwankungen C, E Zeitverschiebungen	TX, tx Energiedichten
Regionales Modell A = 1.3 B = -0.2 D = -0.1 C = 30 Tage E = 4 Halbstunden	a = 1.35 b = -0.014/1 $^{\circ}\text{C}$ c = 0

Tabelle 27

A2. BETAMETER-MESSREIHEN

A2.1 PRÜFUNG DER VORAUSSETZUNGEN FÜR REGRESSION

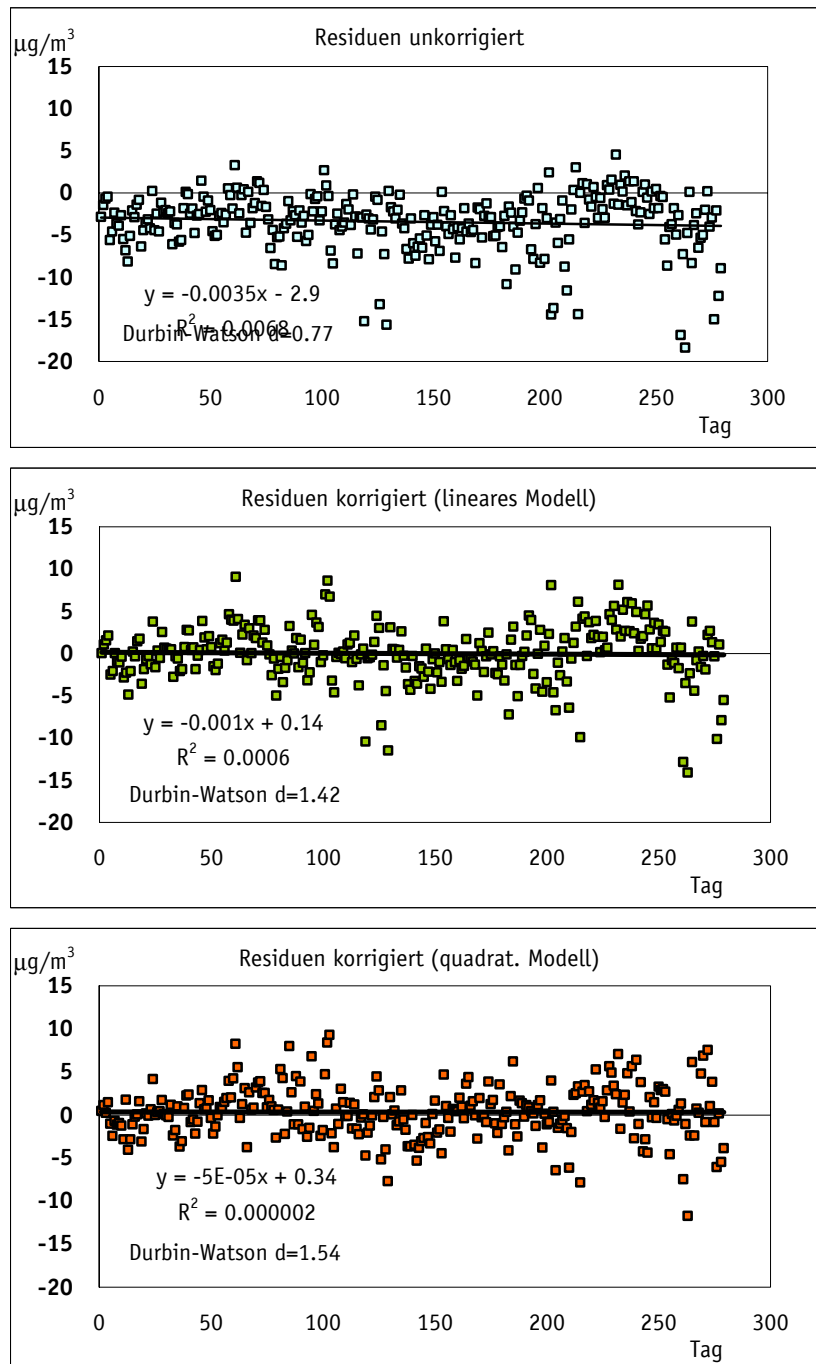
Normalverteilung der Residuen: Für die unkorrigierten Residuen muss die Hypothese für die Normalverteilung auf dem 5% Niveau mit dem χ^2 -Test abgelehnt werden. Mit der Korrektur des linearen Modells kann sie akzeptiert werden. Noch besser wird die Übereinstimmung mit dem quadratischen Modell.



Figur 13 Residuen für die Station Basel-Binningen im linearen Modell $Y = a+bX$ mit 279 Messtagen. Zum Vergleich die Normalverteilung (dunkle Säulen).

Unabhängigkeit der Residuen: Die unkorrigierten Residuen zeigen einen Trend auf, der Durbin-Watson Koeffizient weist $d=0.77$ auf positive Autokorrelation hin. Mit dem linearen

Modell wird der Trend abgeschwächt, d wird grösser und die Korrelation schwächer. Mit dem quadratischen Modell werden alle Parameter nochmals vergrößert.



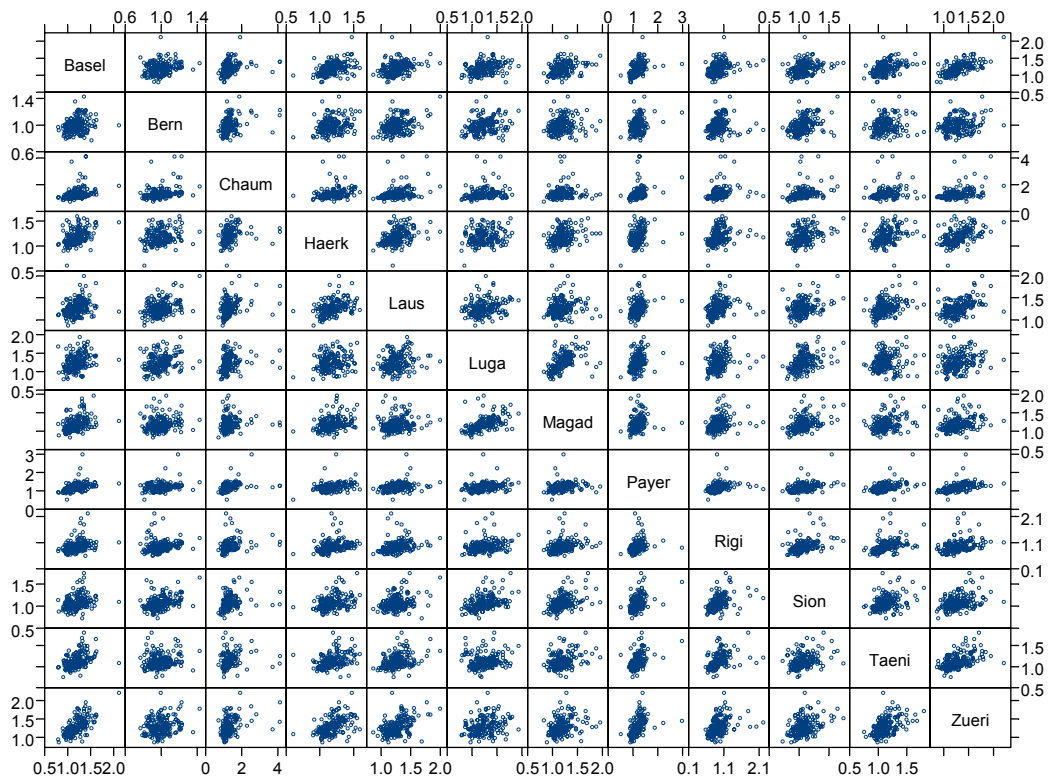
Figur 14 Residuen für die Station Basel-Binningen in Funktion der Zeit (jeden 4. Tag).

A2.2 REGRESSIONSRESULTATE MULTI-LINEARES MODELL

Multilineares Modell $Y = a + bX$ (Meth. kl. Quadrate), Messtage 2002 und 2003					
Stationen	Konstante a ---	Temperatur b 1/°C	Ozon c 1/(µg/m ³)	NOx d 1/(µg/m ³)	Feuchte e 1/%
Basel-Binningen	0.95	-0.0005	-0.0009	-0.0017	0.0045
Bern	0.70	0.0076	-0.0007	-0.0005	0.0037
Chaumont	0.06	-0.0073	0.0023	-0.0016	0.0143
Chur-Industrie	0.23	-0.0119	0.0115	0.0035	0.0059
Davos	-2.63	-0.0311	0.0128	-0.0152	0.0531
Dübendorf					
Haerkingen	0.82	-0.0057	-0.0002	-0.0009	0.0051
Lausanne	0.76	-0.0009	0.0002	-0.0009	0.0078
Lugano	0.82	0.0032	0.0000	-0.0027	0.0061
Magadino	1.53	-0.0131	0.0005	-0.0046	-0.0011
Payerne	0.87	-0.0042	-0.0003	-0.0026	0.0049
Rigi-Seebodenalp	0.55	0.0148	-0.0024	0.0060	0.0066
Roveredo	1.02	0.0002	-0.0003	-0.0011	0.0027
Sion-Aérodrome	0.98	0.0027	-0.0024	-0.0028	0.0034
Taenikon	0.62	-0.0089	0.0017	-0.0035	0.0074
Zuerich-Kaserne	1.12	-0.0003	-0.0025	-0.0031	0.0056
Zuerich-Stampfen	0.85	-0.0069	0.0012	-0.0011	0.0031
Mittelwert	0.58	-0.0039	0.0013	-0.0020	0.0083
Standardabweichung	0.92	0.0102	0.0045	0.0044	0.0124

Tabelle 3 Regressionskoeffizienten für k-Faktor-Regressionen im Zeitraum 2002 – 2003 (Regression mit der Methode der kleinsten Quadrate).

A2.3 RÄUMLICHE KORRELATION DER BETAMETER-STATIONEN



Figur 15 Scatterplots von Stationen mit Betameter-Geräten (Periode 2002-2003). Die räumlichen Korrelationen sind unterschiedlich. Payerne korreliert z.B. besser als Bern und Lausanne (Strassenschluchten). Lugano und Magadino korrelieren besser als Lugano mit allen übrigen Stationen.

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 2004:** Empfehlungen, Immissionsmessung von Luftfremdstoffen, Messempfehlungen, Bern, 1.01.2004
- 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.
- innet 2004:** innet-Monitoring AG, Erfahrungen mit dem TEOM FDMS, erfa Immissionen 2004, Thomas Zünd, Adligenswil