

Statistische aspecten van lozingseisen

Statistische aspecten van lozingseisen

Opdrachtgever: RIZA / CIW-4

Auteur: drs. Paul K. Baggelaar

mei 2003



Niagara 18
1186 JP AMSTELVEEN
Tel.: 020 641 52 11
paulbagg@planet.nl

INHOUD

SAMENVATTING	3
1 INLEIDING	6
1.1 PROBLEEMSTELLING.....	6
1.2 OVER DIT RAPPORT.....	6
2 VASTSTELLEN LOZINGSKENMERKEN	7
2.1 TE VERSTREKKEN MEETWAARDEN	7
2.2 WAT ZIJN DE RELEVANTE KENMERKEN VAN HET LOZINGSPROCES?	8
2.2.1 <i>Ideale situatie: een normaal verdeeld proces, zonder autocorrelatie of seizoenseffect</i>	8
2.2.2 <i>Precisie van het geschatte gemiddelde</i>	9
2.2.3 <i>De praktijk is echter zelden zo ideaal</i>	9
2.3 VASTSTELLEN KANSVERDELING VAN HET PROCES	10
2.3.1 <i>Visueel beoordelen kansverdeling</i>	10
2.3.2 <i>Toetsen op kansverdeling</i>	11
2.3.3 <i>Transformatie-mogelijkheden</i>	11
2.4 VASTSTELLEN AUTOCORRELATIE VAN HET PROCES	12
2.4.1 <i>Visueel beoordelen op autocorrelatie</i>	12
<i>Toetsen op autocorrelatie</i>	14
2.4.2 <i>Precisie van het geschatte gemiddelde bij autocorrelatie</i>	14
2.4.3 <i>Verkleinen of omzeilen van autocorrelatie</i>	15
2.5 VASTSTELLEN SEIZOENSMATIG LOZINGSPROCES	16
2.5.1 <i>Visueel beoordelen op seizoensmatig lozingsproces</i>	16
2.5.2 <i>Toetsen op seizoensmatig lozingsproces</i>	17
2.6 PASSEN DE LOZINGSKENMERKEN BIJ DE HAALBARE EFFLUENTCONCENTRATIE?.....	18
2.7 SAMENVATTING VAN HET VASTSTELLEN VAN DE LOZINGSKENMERKEN.....	18
3 FORMULEREN LOZINGSEISEN	20
3.1 SOORTEN VAN NORMEN	20
3.1.1 <i>Statistische normen</i>	20
3.1.2 <i>Normen voor gebruikelijke, beheerste procesvoering</i>	21
3.1.3 <i>Voorstel: tolerantielimiet als lozingseis</i>	21
3.2 MOGELIJKE LOZINGSEISEN VOOR MOMENTAAN GEDRAG	23
3.2.1 <i>Normale kansverdeling, geen autocorrelatie</i>	23
3.2.2 <i>Normale kansverdeling, autocorrelatie</i>	24
3.2.3 <i>Niet-normale kansverdeling, geen autocorrelatie</i>	24
3.2.4 <i>Niet-normale kansverdeling, autocorrelatie</i>	25
3.3 MOGELIJKE LOZINGSEISEN VOOR GEMIDDELD GEDRAG	25
3.3.1 <i>Normale kansverdeling, geen autocorrelatie</i>	25
3.3.2 <i>Normale kansverdeling, autocorrelatie</i>	26
3.4 VERTALEN LOZINGSEIS NAAR ANDER MONSTERTYPE.....	27
3.5 REKENING HOUDEN MET MILIEURELEVANTIE VAN PARAMETERS	28
3.6 SAMENVATTING VAN HET FORMULEREN VAN LOZINGSEISEN	29
4 BENUTTEN VAN RELATIES TUSSEN PARAMETERS	31
4.1 VASTSTELLEN RELATIES TUSSEN PARAMETERS.....	31
4.1.1 <i>De lineaire, of Pearson-correlatiecoëfficiënt</i>	31
4.1.2 <i>De Spearman-rangcorrelatiecoëfficiënt</i>	31
4.2 VOORSPELLEN VAN NIET-BEMETEN PARAMETER MET BEMETEN PARAMETER.....	31
4.3 CRITERIUM VOOR DE RELATIE TUSSEN TWEE PARAMETERS	33
4.4 SAMENVATTING VAN HET BENUTTEN VAN RELATIES TUSSEN PARAMETERS	33
5 FORMULEREN LOZINGSEISEN VOOR VRACHTEN	34
5.1 SCHATTEN VAN JAARVRACHT	34
5.2 MOGELIJKHEDEN VOOR WAT BETREFT LOZINGSEISEN VOOR JAARVRACHTEN	35
5.3 SAMENVATTING VAN LOZINGSEISEN VOOR VRACHTEN.....	35

6	SIGNALEREN EN BEHANDELEN VAN UITSCHIETERS	36
6.1	SIGNALEREN VAN UITSCHIETERS.....	36
6.2	SAMENVATTING VAN HET SIGNALEREN EN BEHANDELEN VAN UITSCHIETERS.....	36
7	OMGAAN MET GECENSUREERDE MEETWAARDEN.....	38
7.1	BESTE OPLOSSING: HEF DE CENSUUR DOOR HET LABORATORIUM OP	38
7.2	SUBOPTIMALE OPLOSSINGEN VOOR ONGANG MET GECENSUREERDE WAARDEN	39
7.3	VERVANGEN VAN AFZONDERLIJKE GECENSUREERDE WAARDEN	39
7.4	VERVANGEN VAN EEN GROEP GECENSUREERDE WAARDEN	40
7.4.1	<i>Log-waarschijnlijkheids-regressiemethode.....</i>	<i>40</i>
7.4.2	<i>Methode van de uniforme verdeling.....</i>	<i>41</i>
7.4.3	<i>Alleen voor schatten gemiddelde of mediaan: DG90-methode</i>	<i>41</i>
7.5	SAMENVATTING VAN HET OMGAAN MET GECENSUREERDE WAARDEN	42
8	HOE VERDER?	43
	LITERATUURVERWIJZINGEN	44
	BIJLAGE – VERKLARING VAN EEN AANTAL STATISTISCHE TERMEN	46

Samenvatting

De CIW-4 projectgroep Lozingseisen WVO-vergunningen heeft als doelstelling te komen tot aanbevelingen voor eenduidige, zo mogelijk uniforme, handhaafbare en naleefbare lozingseisen in WVO-vergunningvoorschriften. Dit rapport geeft een beeld van de mogelijkheden die de statistiek daarbij kan bieden. Het is bedoeld als een stap naar een procedure voor het opstellen van het gewenste soort lozingseisen.

Vaststellen van de lozingskenmerken

Een lozingseis die rekening houdt met de kenmerken van de lozing onder de gebruikelijke, beheerste procesvoering, is naleefbaar door het betreffende bedrijf als het die procesvoering handhaaft. Een dergelijke naleefbare lozingseis is het eenvoudigst op te stellen als de meetwaarden afkomstig zijn uit een normale kansverdeling en geen autocorrelatie vertonen. Maar de praktijk leert dat lozingen doorgaans één of meer van de volgende complicerende kenmerken vertonen: (1) meetwaarden die afkomstig uit een niet-normale kansverdeling, (2) autocorrelatie (wat tot uiting kan komen in een 'wandeland' gemiddelde) en (3) seizoenseffecten of periodiciteit. De klassieke statistische methoden zijn niet zondermeer toepasbaar op meetreeksen met dergelijke complicerende kenmerken. Het is dus nodig om vast te stellen in hoeverre hier sprake van is, zodat daar vervolgens bij het opstellen van de lozingseisen rekening mee kan worden gehouden. Dit rapport geeft zowel visuele methoden (beoordeling van grafieken), als formele methoden (statistische toetsen) om de kenmerken van een lozingsproces vast te stellen.

Ook worden methoden gepresenteerd om complicerende kenmerken te verminderen. Zo is het vaak mogelijk om door middel van een eenvoudige rekenkundige transformatie van de meetwaarden te bewerkstelligen dat tóch mag worden uitgegaan van de normale kansverdeling. En als de autocorrelatie van een lozingsproces niet te groot is en er voldoende meetwaarden beschikbaar zijn (minstens 50), is het mogelijk om daarvoor te corrigeren, anders kan de autocorrelatie worden verkleind of omzeild, door het weglaten van meetwaarden, middelen en/of differentiëren. Tenslotte kan het differentiëren ook uitkomst bieden om seizoenseffecten of periodiciteit op te heffen.

Het is overigens raadzaam het lozende bedrijf te verplichten om bij de aanvraag voor de vergunning aan te geven welke verstrekte meetwaarden representatief zijn voor de gebruikelijke, beheerste procesvoering. Tevens dient het bedrijf daarbij voor elke verstrekte uitschietende meetwaarde aan te tonen of te beargumenteren dat deze nog de gebruikelijke, beheerste situatie vertegenwoordigt. Dit zal de beheerder veel werk besparen en leidt tot beter uitgangsmateriaal. Het is ook raadzaam te eisen dat het bedrijf een bepaalde minimale hoeveelheid informatie verstrekt bij de aanvraag voor de vergunning. Gezien de grote autocorrelaties die op kunnen treden, kunnen we hierbij denken aan meetwaarden over een periode van twee jaar. Maar als kan worden aangetoond of beargumenteerd dat er nauwelijks autocorrelatie optreedt, zou kunnen worden volstaan met informatie over een kortere periode.

Formuleren van lozingseisen

Een geschikte naleefbare lozingseis is de tolerantielimiet, zijnde de grens waarvan we met een bepaalde betrouwbaarheid mogen verwachten dat die hooguit door een bepaald percentage nieuwe meetwaarden (of gemiddelden van meetwaarden) wordt overschreden, mits de procesvoering normaal en beheerst blijft. Als het percentage overschrijding meer bedraagt, mogen we met dezelfde betrouwbaarheid aannemen dat er niet meer sprake is van de gebruikelijke, beheerste procesvoering. Een tolerantielimiet wordt berekend uit historische meetwaarden en de berekeningswijze hangt af van de kansverdeling van het proces en van het al of niet optreden van autocorrelatie. De onzekerheden ten gevolge van bemonsterings- en analysefouten en de steekproeffout zijn reeds in de tolerantielimiet verdisconteerd.

Dit rapport geeft voor verschillende combinaties van kansverdeling en autocorrelatie aan hoe de tolerantielimiet kan worden berekend. Als kan worden uitgegaan van een normale kansverdeling, kan zelfs een tolerantielimiet worden berekend met een verwaarloosbare overschrijdingskans,

zoals 1/1.000. Deze kan dan worden gehanteerd als een lozingseis die niet overschreden mag worden. Als niet kan worden uitgegaan van een normale kansverdeling, zijn er minstens 1.000 onafhankelijke meetwaarden nodig om een dergelijke tolerantielimiet te kunnen berekenen.

Om een lozingseis die is afgeleid voor een bepaald monstertype (zoals dagverzamelmonsters, of steekmonsters) te kunnen omzetten naar een die van een ander monstertype, dient er een vertaalslag plaats te vinden, op basis van beschikbare parallelle meetwaarden, een speciale proefopzet of beredenering. Daarbij dient ook rekening te worden gehouden met een eventuele autocorrelatie.

Als we het risico op het niet-signaleren van normoverschrijdingen voor parameters met een grotere milieurelevantie meer willen beperken, dan dient voor die parameters een hogere meetfrequentie te worden opgelegd. Enige voorzichtigheid is geboden als we een hogere meetfrequentie willen opleggen dan die van de historische meetwaarden waarmee de kenmerken van hun kansverdeling zijn vastgesteld. Er is namelijk geen objectieve methode voorhanden om de autocorrelatiestructuur die is geconstateerd voor een bepaalde meetfrequentie te vertalen naar die van een hogere meetfrequentie.

Benutten van relaties tussen parameters

Als twee parameters een voldoende sterke relatie vertonen, kan dit worden gebruikt om de meetinspanning te verminderen. De relatie dient daartoe te worden uitgedrukt in een lineair regressiemodel en de daaruit volgende bovengrens van het interval dat met 95% betrouwbaarheid de meetwaarde van de ene parameter (Y) zal bevatten, gegeven de meetwaarde van de andere parameter (X). De berekening van de bovengrens dient rekening te houden met de kansverdeling en de autocorrelatie van de modelresiduen. Als voor een nieuwe meetwaarde van X de bovengrens onder de lozingseis voor Y blijft, gaan we er van uit dat er geen overschrijding plaatsvindt, anders dient Y alsnog te worden geanalyseerd in het betreffende monster. Een eerste selectie van gerelateerde parameters kan worden uitgevoerd aan de hand van correlatiecoëfficiënten. Vervolgens dient te worden vastgesteld of de bovengrens niet te vaak boven de lozingseis uitkomt.

Lozingseisen voor vrachten

Voor het formuleren van naleefbare lozingseisen voor momentane vrachten en voor gemiddelde vrachten over een korte periode, kan in principe dezelfde aanpak worden gehanteerd als voor concentraties, namelijk voortborduren op het inzicht in de kansverdeling van de meetwaarden onder gebruikelijke, beheerste procesvoering. Voor jaarvrachten is deze aanpak echter niet geschikt, doordat er doorgaans te weinig historische jaarvrachten beschikbaar zijn. Om toch tot een soort lozingseis te kunnen komen, moet worden onderzocht of er een 'haalbare jaarvracht' kan worden afgeleid uit de haalbare effluentconcentratie en een haalbaar debiet.

De nauwkeurigste methoden om jaarvrachten te schatten zijn de directe methode en de gewogen concentratiemethode.

Signaleren en behandelen van uitschieters

Het opschonen van een meetreeks vergt detailkennis van de lozing en het is derhalve raadzaam dit te laten uitvoeren door het lozende bedrijf. Evenzo is het raadzaam om het bedrijf voor verstrekte uitschieters te laten aantonen of beargumenteren dat deze representatief zijn voor de normale beheerste procesvoering. Een meetwaarde kan worden beschouwd als uitschieter, als zijn absolute gestudentiseerde afwijking groter is dan 3.

Omgaan met waarden gerapporteerd als 'kleiner dan analysegrens'

Als de statistische analyse van een meetreeks wordt belemmerd door gecensureerde waarden, is de beste oplossing om het laboratorium te vragen alsnog de ongecensureerde meetwaarden te verstrekken. Als dat niet mogelijk is, dient een benaderingsmethode te worden gehanteerd die aansluit op het soort statistische analyse. In dit rapport worden enkele geschikte methoden gepresenteerd. Voor het vaststellen van autocorrelatie in een meetreeks en het vaststellen van relaties tussen parameters kunnen de gecensureerde waarden het best worden vervangen met de DG90-

methode. Voor andere statistische analyses komt de log-waarschijnlijkheids-regressiemethode het meest in aanmerking.

1 Inleiding

1.1 Probleemstelling

De CIW-4 projectgroep Lozingseisen WVO-vergunningen heeft als doelstelling te komen tot aanbevelingen voor eenduidige, zo mogelijk uniforme, handhaafbare en naleefbare lozingseisen in WVO-vergunningvoorschriften. Daartoe heeft zij ondermeer behoefte aan een beeld van de mogelijkheden die de statistiek daarbij kan bieden en heeft daarom aan Icastat verzocht antwoorden te formuleren op de volgende vragen:

- (1) Hoe kunnen de relevante kenmerken van de lozing voldoende nauwkeurig worden vastgesteld?
- (2) Hoe moeten lozingseisen worden geformuleerd, opdat deze naleefbaar zijn?
- (3) Hoe kan worden vastgesteld of verschillende parameters voldoende zijn gerelateerd om er één te laten vervallen uit het meetprogramma?
- (4) Hoe moeten lozingseisen voor vrachten worden geformuleerd?
- (5) Hoe moet je omgaan met extremen in meetreeksen bij het opstellen van lozingseisen?

1.2 Over dit rapport

Dit rapport geeft antwoorden op de bovenvermelde vragen, met onderbouwing. Het beschrijft nog slechts de *mogelijkheden* die de statistiek kan bieden om te komen tot eenduidige, zo mogelijk uniforme, handhaafbare en naleefbare lozingseisen. Dit dient ter ondersteuning van de discussie binnen de projectgroep, die uiteindelijk zal moeten leiden tot een uitgewerkte en - bij voorkeur - gebruiksvriendelijke procedure voor het opstellen van het gewenste soort lozingseisen. Dit rapport bevat al wel veel fragmenten die geschikt zullen zijn voor die procedure, maar ze zullen eerst nog geconcretiseerd en vervolgens op een logische wijze verbonden moeten worden, opdat ook de gewenste eenduidigheid en uniformiteit worden bewerkstelligd. Verder zullen er nog verschillende keuzen moeten worden gemaakt en zullen er nog ontbrekende onderdelen uitgewerkt moeten worden om tot de gewenste procedure te kunnen komen.

Leeswijzer

Na deze inleiding worden in de hoofdstukken 2 t/m 6 antwoorden geformuleerd op de vijf bovenvermelde vragen. In hoofdstuk 7 wordt apart ingegaan op het probleem van de gecensureerde waarden en worden daar oplossingen voor aangedragen. Hoofdstuk 8 noemt de vervolgstappen die nodig zijn om tot een softwarematige procedure voor het opstellen van lozingseisen te komen. Dit rapport sluit af met de alfabetisch gerangschikte lijst van de literatuur waarnaar in de tekst is verwezen. De bijlage bevat een verklaring van enkele statistische termen die in het rapport worden gebruikt.

Voor de eenduidigheid bevat het rapport noodzakelijkerwijs veel statistische formules, waardoor het voor een niet-ingewijde op het eerste gezicht ontoegankelijk kan lijken. Ik heb echter getracht het geheel zo te verwoorden, dat het voor de begripsvorming niet nodig is om de formules te doorgronden. Ik hoop dat ik daarin ben geslaagd.

Kwaliteitsborging

De kwaliteit van dit rapport is geborgd door ir. Johan Th. Groennou, wiskundig statisticus. Hij heeft ruim 20 jaar ervaring met statistisch onderzoek bij Kiwa NV, onderzoeksinstituut op het gebied van water.

2 Vaststellen lozingskenmerken

Bij de aanvraag van een vergunning dient het bedrijf de vergunningverlener van alle relevante parameters meetwaarden te verstrekken waarmee de kenmerken van de lozing bij de gebruikelijke, beheerste procesvoering kunnen worden vastgesteld. De vergunningverlener kan daarmee dan per parameter vaststellen of de lozingskenmerken passen bij de haalbare effluentconcentratie. Als dat niet het geval is, kan een saneringsonderzoek worden opgelegd. Maar als de lozingskenmerken wél passen bij de haalbare effluentconcentratie, kan per parameter een lozingseis worden opgesteld die rekening houdt met die lozingskenmerken en daardoor naleefbaar is. Als er sprake is van een seizoensmatig lozingspatroon, dient daarmee uiteraard ook rekening te worden gehouden, bijvoorbeeld door lozingseisen op te stellen voor afzonderlijke deelfasen.

In het nu volgende wordt aangegeven hoe relevante lozingskenmerken kunnen worden vastgesteld uit verstrekte meetwaarden. Vervolgens wordt aangegeven hoe kan worden vastgesteld of de lozingskenmerken passen bij de haalbare effluentconcentratie. Dit hoofdstuk sluit af met een korte samenvatting. In het volgende hoofdstuk zullen dan enkele mogelijkheden worden gepresenteerd om naleefbare lozingseisen op te stellen.

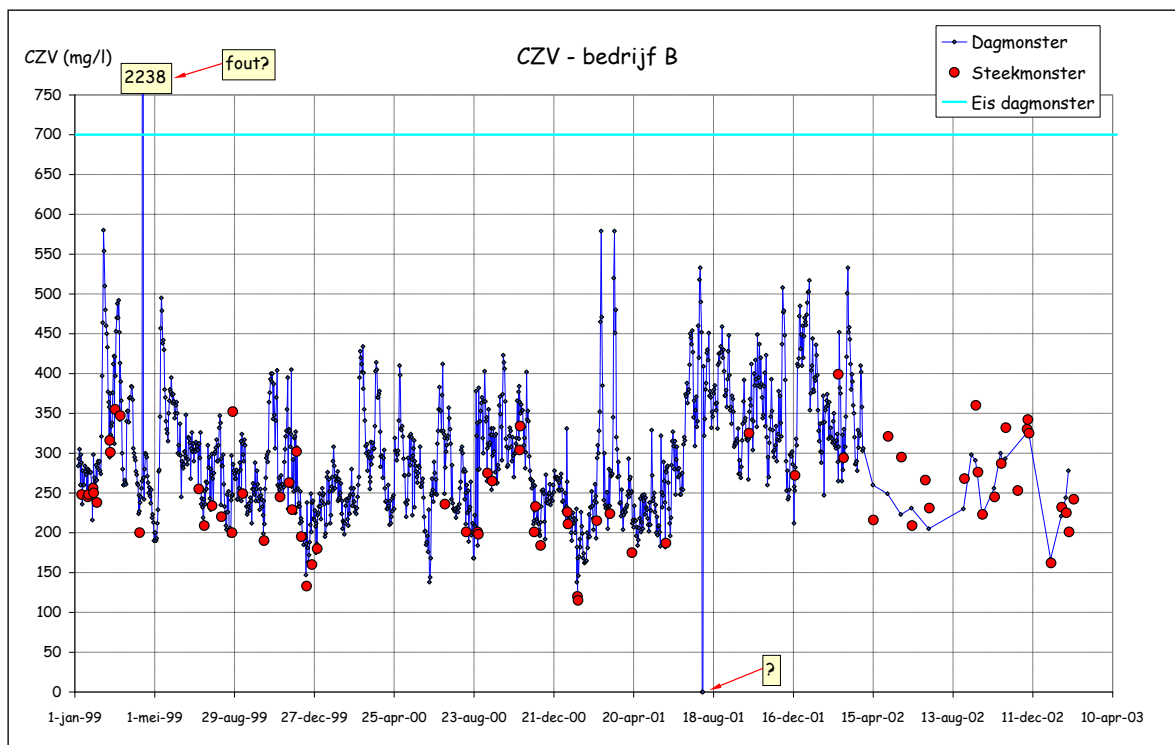
2.1 Te verstrekken meetwaarden

Een naleefbare lozingseis dient voldoende rekening te houden met de kenmerken van de meetwaarden bij de gebruikelijke, beheerste procesvoering. Het bedrijf dient de beheerder daarom *volgende* informatie te verschaffen die *representatief is voor de situatie waar de vergunning voor dient te gelden*. Meetwaarden die fout zijn, of die zijn verkregen tijdens ongewone voorvallen moeten dus reeds door het bedrijf zijn gemarkeerd, ongeacht of het een voorval betreft dat is voorzien, zoals onderhoud, of een voorval dat niet is voorzien, zoals een calamiteit. Om te voorkomen dat de beheerder wordt opgezadeld met de opschoning van de meetwaarden, die zeer arbeidsintensief kan zijn en zonder detailkennis van de lozing ook nauwelijks te objectiveren valt, is het tevens raadzaam het bedrijf te verplichten om voor elke uitschietende meetwaarde aan te tonen of te beargumenteren dat deze nog de gebruikelijke, beheerste situatie vertegenwoordigt (zie ook hoofdstuk 6).

Enkele voorbeelden van de problemen waarmee een beheerder kan worden opgezadeld als deze slechts ruwe gegevens van een bedrijf ontvangt, kunnen worden geïllustreerd aan de hand van figuur 2.1. Het betreft twee meetreeksen van een bepaald lozingsproces, namelijk van dagverzamelmonsters en van steekmonsters van CZV, zoals verzameld over een periode van meer dan drie jaar.

Bij beschouwing van figuur 2.1 is de eerste vraag die zich aandient of hier wel over de hele periode sprake is van hetzelfde proces. Het gemiddelde vertoont namelijk een grootschalige golfbeweging, het is bijvoorbeeld laag in de eerste helft van 2001 en daarna weer duidelijk hoger. Welk deel van de reeks moet hier dan worden geanalyseerd om iets over de kansverdeling van de meetwaarden onder beheerste condities te kunnen zeggen en daaruit vervolgens een lozingseis af te leiden? Of is het geleidelijk fluctueren van het gemiddelde hier onvermijdelijk bij een beheerste procesvoering? Verder zal de uitschieter in april 1999 vrijwel zeker een meetfout of een onbeheerste situatie betreffen, maar wat heeft bijvoorbeeld de series extreme meetwaarden in het voorjaar van 2001 veroorzaakt? En hoe komt het dat er tot begin 2002 zoveel steekmonsters zijn genomen juist op dagen dat het CZV laag was? De steekmonsters onderschatten het gemiddelde daardoor sterk. Dit zijn veel vragen die nader onderzoek vergen en waarover contact moet worden opgenomen met het lozende bedrijf.

Figuur 2:1: Voorbeeld van ruwe meetreeksen van dagverzamelmonsters en steekmonsters van CZV.



Een beheerst proces is nog geen garantie voor een stabiel gemiddelde

Uit navraag bleek, dat met uitzondering van de extreme waarde in april 1999 en de nulwaarden in augustus 2001, alle meetwaarden representatief zijn voor de gebruikelijke, beheerste procesvoering. Blijkbaar vertoont het proces een bepaalde traagheid, waardoor het gemiddelde een golfbeweging vertoont. Opeenvolgende meetwaarden komen dan doorgaans uit hetzelfde segment van de kansverdeling, wat men aanduidt als ‘autocorrelatie’. Er zijn in een dergelijk geval meetwaarden over een zeer lange periode nodig om de kansverdeling van alle mogelijke meetwaarden te kunnen kenschetsen. Meetwaarden die bijvoorbeeld slechts over een periode van zes maanden zijn verkregen, zullen dan een sterke onderschatting opleveren van de totaal te verwachten spreiding.

2.2 Wat zijn de relevante kenmerken van het lozingsproces?

Om tot een naleefbare lozingseis voor een bepaalde parameter te kunnen komen dient de beheerder een beeld te hebben van *alle mogelijke* meetreeksen van die parameter die bij de gebruikelijke, beheerste procesvoering horen (en die dus ook in de toekomst verwacht mogen worden). Deze (oneindige) verzameling van meetreeksen noemen we het **proces**.

2.2.1 Ideale situatie: een normaal verdeeld proces, zonder autocorrelatie of seizoenseffect

In het ideale geval dat de meetwaarden van het proces opgevat kunnen worden als aselechte trekkingen uit dezelfde normale kansverdeling, kunnen we volstaan om het (rekenkundig) gemiddelde en de standaardafwijking te schatten, om vervolgens kansuitspraken te kunnen doen over toekomstige meetwaarden van het proces en daaruit lozingseisen af te leiden (zie hiervoor hoofdstuk 3). Alle inmiddels beschikbare theoretische kennis van de normale kansverdeling biedt ons daarvoor immers voldoende basis. Het (rekenkundig) gemiddelde (μ) en de standaardafwijking (σ) van het proces schatten we als respectievelijk:

$$\bar{x} = \frac{\sum_{t=1}^n x_t}{n} \quad \text{en} \quad s = \sqrt{\frac{\sum_{t=1}^n (x_t - \bar{x})^2}{n-1}}$$

met \bar{x} de schatting van μ , s de schatting van σ , x_t de t -de van alle chronologisch gerangschikte meetwaarden en n het aantal meetwaarden. Met deze kengetallen kan vervolgens bijvoorbeeld het 99,9-percentiel van het proces $(x_{0,999})^1$ worden geschat, volgens:

$$\hat{x}_{0,999} = \bar{x} + z_{(0,999)} \cdot s = \bar{x} + 3,09 \cdot s$$

met $z_{(0,999)}$ het 99,9-percentiel van de standaardnormale verdeling.

2.2.2 Precisie van het geschatte gemiddelde

Als de meetwaarden van het proces opgevat kunnen worden als aselechte trekkingen uit dezelfde normale kansverdeling, kunnen we ook de precisie van het als boven geschatte procesgemiddelde aangeven, uitgedrukt in zijn 95%-betrouwbaarheidsinterval. Daartoe berekenen we eerst de standaardfout van het geschatte gemiddelde ($s_{\bar{x}}$):

$$s_{\bar{x}} = \frac{s}{\sqrt{n}}$$

En het 95%-betrouwbaarheidsinterval van het geschatte gemiddelde volgt dan uit:

$$[\bar{x} - t_{(0,975, n-1)} \cdot s_{\bar{x}} ; \bar{x} + t_{(0,975, n-1)} \cdot s_{\bar{x}}]$$

met $t_{(0,975, n-1)}$ het 97,5-percentiel van de Student-t-verdeling bij $n-1$ vrijheidsgraden en n het aantal meetwaarden. Het is het interval waarbinnen het werkelijke procesgemiddelde (μ) zich 'vast wel' zal bevinden, of formeler uitgedrukt, met een betrouwbaarheid van 95%. Uit deze formuleringen kunnen we ook berekenen hoe groot onze steekproef moet zijn om het procesgemiddelde met een bepaalde vóóraf gewenste precisie te kunnen schatten. Daarbij maken we onderscheid tussen: (1) een absolute precisie en (2) een relatieve precisie.

Ad (1) Stel dat we wensen dat het verschil tussen onze schatting van het procesgemiddelde en het procesgemiddelde met grote zekerheid binnen een bepaalde *absolute* marge (d) ligt, oftewel:

$$\text{Kans}[|\bar{x} - \mu| \leq d] \geq 95\%$$

Het aantal meetwaarden (n) dat daarvoor minimaal is benodigd is dan:

$$n = \left(\frac{t_{(0,975, n-1)} \cdot \sigma}{d} \right)^2$$

met σ de standaardafwijking van het proces. Deze kunnen we benaderen met zijn schatting (s), maar als die op weinig meetwaarden is gebaseerd (< 40), moeten we er rekening mee houden dat de benadering slecht kan zijn. Let op dat de formule iteratief moet worden opgelost, doordat $t_{(0,975, n-1)}$, een deel van het rechterlid, afhangt van n , de uitkomst van de formule.

Ad (2) Stel dat we wensen dat het verschil tussen onze schatting van het procesgemiddelde en het procesgemiddelde met grote zekerheid binnen een bepaalde *relatieve* marge (f) van het procesgemiddelde ligt, oftewel:

$$\text{Kans}[|\bar{x} - \mu| \leq f \cdot \mu] \geq 95\%$$

Het aantal meetwaarden (n) dat daarvoor minimaal is benodigd is dan:

$$n = \left(\frac{t_{(0,975, n-1)} \cdot \sigma / \mu}{f} \right)^2$$

De verhouding σ/μ kunnen we benaderen met zijn schatting \bar{x}/s , maar ook hier geldt dat de benadering slecht kan zijn als die op weinig meetwaarden is gebaseerd (< 40). Ook deze formule moet iteratief worden opgelost.

2.2.3 De praktijk is echter zelden zo ideaal

We moeten er echter ook rekening mee houden dat lozingsprocessen in de praktijk niet voldoen aan deze ideale situatie, doordat: (1) de meetwaarden niet afkomstig zijn uit een normale kansverdeling en/of (2) de meetreeks autocorrelatie vertoont en/of (3) de meetreeks seizoenseffecten of

¹ Dit is de waarde die gemiddeld slechts 1 op de 1.000 maal wordt overschreden.

periodiciteit vertoont. Het kan in dergelijke gevallen aanzienlijk minder eenvoudig zijn om kansuitspraken te doen over toekomstige meetwaarden van het proces en daaruit lozingseisen af te leiden, zodat we goed onderscheid moeten kunnen maken tussen de verschillende situaties.

Als de meetwaarden van het proces niet afkomstig zijn uit een normale kansverdeling dient het 100-P-percentiel bijvoorbeeld niet meer geschat te worden zoals aangegeven in § 2.2.1, maar als:

$$\hat{x}_P = x_{[P \cdot (n+1)]}$$

met n het aantal meetwaarden en $x_{[P \cdot (n+1)]}$ de meetwaarde op positie $P \cdot (n+1)$ na rangschikking van alle meetwaarden van klein naar groot, of, als $P \cdot (n+1)$ geen geheel getal is, de waarde die ontstaat door lineaire interpolatie tussen de twee naastliggende meetwaarden. Als $P \cdot (n+1)$ groter is dan n wordt het 100-P-percentiel geschat als x_n , oftewel als de maximale meetwaarde. Met weinig meetwaarden kunnen de hoge percentielen dus niet goed worden geschat. Een enigszins betrouwbare schatting van het 99,9-percentiel zal bijvoorbeeld minstens 1.000 meetwaarden vergen. Als we daarentegen wél kunnen uitgaan van een normale kansverdeling kan daarvoor worden volstaan met veel minder meetwaarden.

In de volgende drie paragrafen wordt aangegeven hoe we kunnen vaststellen of sprake is van niet-normaliteit, autocorrelatie of seizoenseffecten.

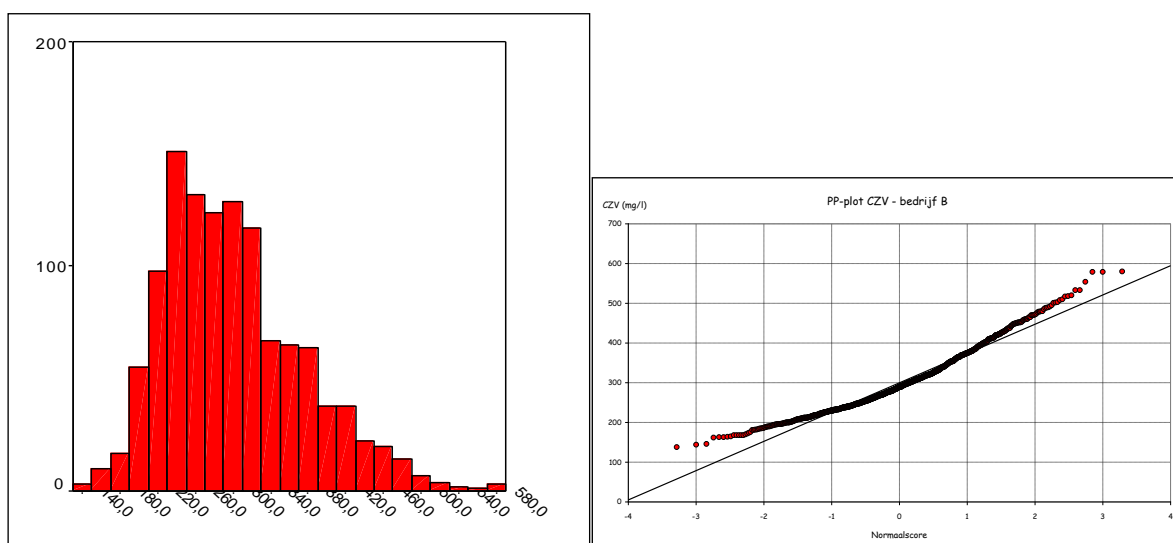
2.3 Vaststellen kansverdeling van het proces

Als we weten uit wat voor *soort* kansverdeling de meetwaarden van het proces afkomstig zijn, dan kan het beeld van alle mogelijke meetreeksen die bij dat proces horen direct veel scherper worden gesteld. Er staat ons dan namelijk alle theoretische kennis ter beschikking over de eigenschappen van die kansverdeling. Er is vooral veel bekend over de normale kansverdeling en veel statistische methoden zijn daar dan ook op gebaseerd (voorbeelden zijn de t-toets, lineaire regressieanalyse en verschillende uitschietertoetsen).

2.3.1 Visueel beoordelen kansverdeling

Een geschikte mogelijkheid om het soort kansverdeling visueel te beoordelen wordt geboden door het histogram. Dit toont het aantal meetwaarden dat in een bepaalde grootte-klasse valt, als functie van de grootte-klasse. Als voorbeeld is in figuur 2.2 (links) het histogram weergegeven van de in figuur 2.1 getoonde meetreeks van dagverzamelmonsters, na opschoning. Het duidt op een positief scheve kansverdeling, oftewel een kansverdeling die scheef is naar rechts (de scheefheid bedraagt 0,75).

Figuur 2.2: Histogram (links) en PP-plot (rechts) van de in figuur 2.1 getoonde meetreeks van dagverzamelmonsters, na opschoning.



Een scherpere uitspraak over het voldoen aan een normale kansverdeling wordt geboden door een visuele beoordeling van de PP-plot (percentiel-percentiel-plot). Daarin is elke meetwaarde uitgezet tegen de waarde van de standaardnormale verdeling waarvan de onderschrijdingskans gelijk is aan de plotpositie van die meetwaarde (dit noemt men de normaal score). Als de meetwaarden afkomstig zijn uit een normale kansverdeling, zullen de punten min of meer een rechte lijn vormen. Er bestaan verschillende manieren om de plot-positie van een meetwaarde te berekenen. Een voorbeeld is de Cunnane-formule, die wordt aanbevolen door [Helsel and Hirsch, 1992]:

$$p_i = \frac{i - 0.4}{n + 0.2}$$

met p_i de plotpositie van de i -de van de n olopend gerangschikte meetwaarden.² Figuur 2.2 (rechts) toont de PP-plot van de beschouwde meetreeks. Deze bevat tevens de lijn die een normale kansverdeling aangeeft, met gemiddelde en standaardafwijking zoals geschat uit de meetreeks. De lijn gaat door het punt [0 ; gemiddelde meetreeks] en zijn helling is gelijk aan de standaardafwijking van de meetreeks.

2.3.2 Toetsen op kansverdeling

Een objectief uitsluitel over het al of niet voldoen aan een normale kansverdeling wordt verkregen door hierop statistisch te toetsen, zoals met de Shapiro-Wilk-toets, of de Kolmogorow-Smirnov-toets (met de correctie van Lilliefors). Maar het onderscheidend vermogen is gering als er weinig onafhankelijke meetwaarden zijn, zoals minder dan circa 50. Afwijkingen van de getoetste kansverdeling kunnen dan dus niet snel worden gedetecteerd. Om het onderscheidend vermogen op te krikken wordt daarom wel aanbevolen te toetsen met een significantieniveau van 10% (de betrouwbaarheid bedraagt dan 90%).

2.3.3 Transformatie-mogelijkheden

Om een asymmetrische kansverdeling symmetrischer te krijgen moeten de meetwaarden in een andere schaal worden uitgedrukt, wat neerkomt op het inkrimpen of het uitrekken van de X-as. De daarvoor benodigde transformaties van de meetwaarden zijn doorgaans van de vorm $y = x^\vartheta$, met y de getransformeerde meetwaarde, x de oorspronkelijke meetwaarde en ϑ de transformator. Welke transformatie het meest geschikt is om symmetrie te bewerkstelligen, hangt af van de soort

² De bijbehorende normaal score (z_i) kan bijvoorbeeld al eenvoudig met MS-Excel worden berekend als $z_i = \text{NORMSINVS}(p_i)$.

en de mate van scheefheid van de oorspronkelijke kansverdeling en vergt soms enig proberen (zie tabel 2.1).

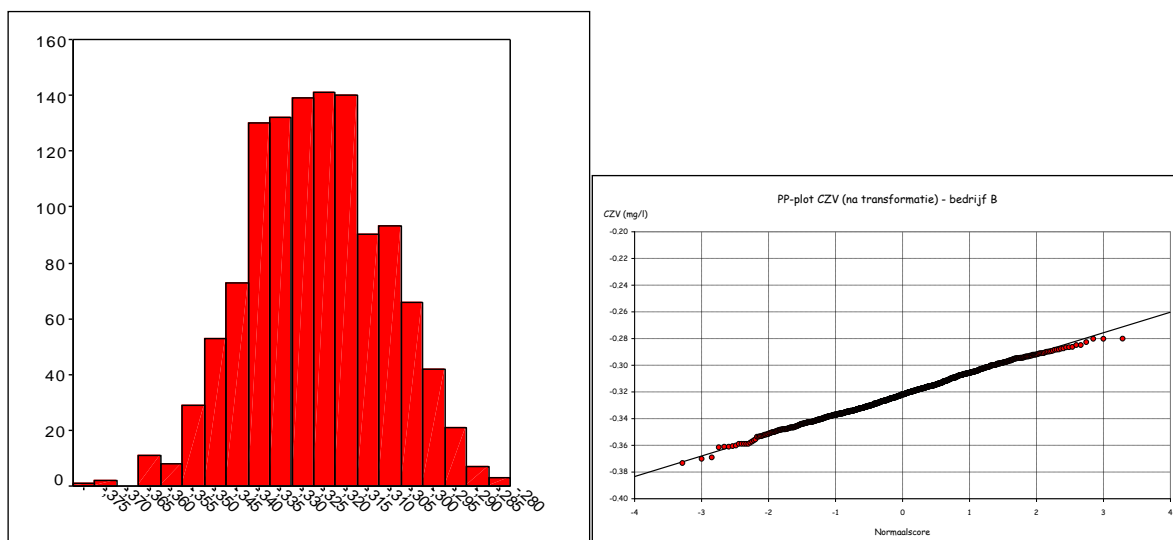
Tabel 2.1: Aanbevolen transformaties om symmetrie te bewerkstelligen voor verschillende soorten kansverdelingen (aangepast naar [Helsel and Hirsch, 1992]).

scheefheid	negatief				0	positief						
	←					→						
ϑ	4	3	2	1	1/2	1/3	0	-1/2	-1	-2	...
transformatie		x^4	x^3	x^2	x	\sqrt{x}	$x^{1/3}$	$\log(x)$	$-1/\sqrt{x}$	$-1/x$	$-1/x^2$	

Toelichting: de min-tekens bij de inverse transformaties dienen om de oorspronkelijke rangschikking van de meetwaarden te behouden.

Als voorbeeld is de in figuur 2.1 getoonde meetreeks van dagverzamelmonsters, die na opschoning nog duidde op een positief scheve kansverdeling (zie figuur 2.2), getransformeerd, volgens $y = -x^{1/5}$. Zoals blijkt uit figuur 2.3 duidt na deze transformatie zowel het histogram als de PP-plot op een kansverdeling die veel symmetrischer is (de scheefheid is teruggelopen van 0,75 naar 0,01).

Figuur 2.3: Histogram (links) en PP-plot (rechts) van de in figuur 2.1 getoonde meetreeks van dagverzamelmonsters, na opschoning en transformatie volgens $-x^{1/5}$.



2.4 Vaststellen autocorrelatie van het proces

Als een meetreeks kleine meetintervallen heeft en/of een grootschalige structuur vertoont, zoals een golfbeweging, of een trend, kunnen de meetwaarden positieve autocorrelatie vertonen. Op-eenvolgende meetwaarden wijken dan doorgaans minder van elkaar af dan meetwaarden met een groter tijdsverschil. Dit leidt tot een onderschatting van de standaardafwijking van het proces, als we die op de gebruikelijke wijze berekenen. De meetwaarden in de meetreeks zijn dan namelijk minder gespreid dan verwacht zou mogen worden van een aselechte steekproef. Het is dus belangrijk om dit verschijnsel te kunnen onderkennen, zodat er vervolgens op één of andere wijze rekening mee kan worden gehouden.

2.4.1 Visueel beoordelen op autocorrelatie

Een eerste visuele beoordeling of er sprake is van autocorrelatie is mogelijk met een grafiek van de meetreeks. Zo zagen we in figuur 2.1 al dat het gemiddelde een golfbeweging vertoont, wat kenmerkend is voor een sterke autocorrelatie. Dit beeld wordt nog scherper als we de reeks

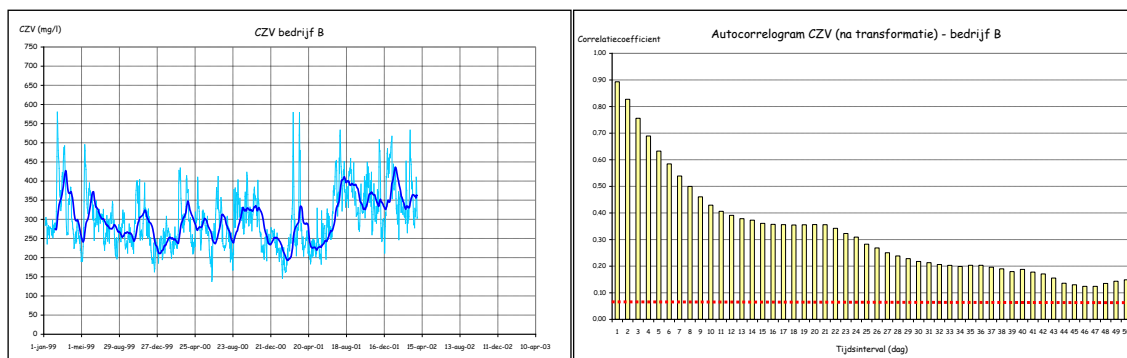
opschonen en tevens het voortschrijdend 30-daags gemiddelde in de figuur aangeven (zie figuur 2.4, links).

Als de meetreeks een constant meetinterval heeft, kunnen we tevens vaststellen of er sprake is van autocorrelatie met het autocorrelogram (zie figuur 2.4, rechts). Het toont de geschatte autocorrelatiecoëfficiënt ($\hat{\rho}_l$) als functie van het tijdsinterval tussen meetwaarden (l). Deze coëfficiënt is een maat voor de samenhang tussen meetwaarden die zijn verkregen met een tijdsinterval l en wordt geschat als [Box and Jenkins, 1976]:

$$\hat{\rho}_l = \frac{\sum_{t=1}^{n-l} (x_t - \bar{x})(x_{t+l} - \bar{x})}{\sum_{t=1}^n (x_t - \bar{x})^2}$$

met $\hat{\rho}_l$ de schatting van de autocorrelatiecoëfficiënt voor tijdsinterval l , \bar{x} de schatting van het procesgemiddelde, x_t de t -de van de chronologisch gerangschikte meetwaarden en n het aantal meetwaarden. Over het algemeen zijn er minstens 50 meetwaarden nodig om betrouwbare schattingen van autocorrelatiecoëfficiënten te krijgen voor de tijdsintervallen $l = 1, 2, \dots, k$, waarbij k niet groter moet zijn dan $n/4$ (n is hier het aantal meetwaarden) [Gilbert, 1987].

Figuur 2.4: Links: de eerder - in figuur 2.1 - getoonde meetreeks van dagverzamelmonsters van CZV, ditmaal echter na opschoning. Tevens is het voorschrijdend 30-daags gemiddelde weergegeven. Rechts: autocorrelogram van deze reeks, na transformatie tot symmetrie (volgens $-x^{1/5}$). Het toont tevens de bovengrens van het 95% betrouwbaarheidsinterval van elke autocorrelatiecoëfficiënt, dat geldt onder de nulhypothese dat er geen autocorrelatie is (en uitgaande van een normale kansverdeling).



We zien in figuur 2.4 dat de autocorrelatie slechts langzaam afneemt met het meetinterval en dat zelfs meetwaarden gescheiden door een groot tijdsinterval nog steeds een duidelijke autocorrelatie vertonen. Dit wijst op één of andere grootschalige structuur van de meetreeks, zoals hier een grote golfbeweging. Maar ook een meetreeks die een trend vertoont zal een soortgelijk autocorrelogram opleveren.

Overigens kan een seizoensmatig lozingsproces ook te onderkennen zijn aan het autocorrelogram, bijvoorbeeld door hoge autocorrelaties rond een meetinterval van een jaar. Een voorwaarde is dan echter wel dat de meetreeks minstens enkele jaren beslaat. Behalve met een jaarcyclus, moeten we bij lozingsprocessen ook rekening houden met een weekcyclus, wat bij dagelijkse metingen tot uiting zal komen in hoge autocorrelaties voor tijdsintervallen van 7, 14, 21, etc. dagen. Een mogelijkheid om een dergelijke autocorrelatie op te heffen is de meetwaarden per week te middelen, zodat een reeks van weekgemiddelden ontstaat.

Een andere mogelijkheid is uit te gaan van de differenties van de meetwaarden die een week uit elkaar liggen (zie hiervoor § 2.4.4).

Toetsen op autocorrelatie

Als er een objectief uitsluitsel is gewenst over het al of niet optreden van autocorrelatie dient daarop statistisch te worden getoetst. In het onderstaande worden twee toetsen besproken, de eerste gaat er van uit dat het proces een normale kansverdeling volgt en de tweede is verdelingsvrij. In beide gevallen dient de meetreeks een constant meetinterval te hebben.

Toets in geval van normale kansverdeling

Als er geen autocorrelatie optreedt is elke (werkelijke) autocorrelatiecoëfficiënt van het proces nul ($\rho_i = 0$) en – ervan uitgaande dat het proces een normale kansverdeling volgt – zal de kansverdeling van een geschatte autocorrelatiecoëfficiënt dan bij benadering normaal zijn, met gemiddelde 0 en standaardafwijking $1/\sqrt{n}$. Het 95%-betrouwbaarheidsinterval van een geschatte autocorrelatiecoëfficiënt is daarmee $\pm 1,96\sqrt{n}$ [Brockwell and Davis, 1986]. In het autocorrelogram van figuur 2.4 is de bovengrens van dat interval aangegeven (het interval is daar zo smal doordat elke autocorrelatiecoëfficiënt is berekend met 1131 meetwaarden).

Toets in geval van niet-normale kansverdeling

Als we er niet van uit kunnen gaan dat het proces een normale kansverdeling volgt, kan worden getoetst op autocorrelatie met de runs-toets. Een 'run' is daarbij een aaneengesloten groep meetwaarden die alle aan dezelfde kant van de mediaan van de meetreeks liggen. De toetsingsgrootte is het aantal runs (r). Als er geen autocorrelatie optreedt volgt de verwachtingswaarde van r uit:

$$E[r] = 1 + \frac{2 \cdot n_1 \cdot n_2}{n_1 + n_2}$$

en de variantie van r volgt dan uit:

$$\text{Var}[r] = \frac{2 \cdot n_1 \cdot n_2 \cdot (2 \cdot n_1 \cdot n_2 - n_1 - n_2)}{(n_1 + n_2)^2 \cdot (n_1 + n_2 - 1)}$$

met n_1 het aantal meetwaarden bóven en n_2 het aantal meetwaarden ónder de mediaan. Als één van deze groter dan 20 is, zal r onder de nulhypothese (géén autocorrelatie) een normale kansverdeling volgen. En de gestandaardiseerde waarde van r (U_r) zal dan een standaardnormale verdeling volgen:

$$U_r = \frac{E[r] - r}{\sqrt{\text{Var}[r]}}$$

We mogen aannemen dat de reeks positieve autocorrelatie vertoont als er minder runs zijn dan verwacht onder de nulhypothese. Dit is met 95% betrouwbaarheid het geval als voor U_r geldt:

$$U_r > z_{(0,95)}$$

met $z_{(0,95)}$ het 95-percentiel van de standaardnormale verdeling. Als nóch n_1 , nóch n_2 groter is dan 20, moeten tabellen met kritische waarden voor U_r worden gebruikt.

2.4.2 Precisie van het geschatte gemiddelde bij autocorrelatie

Zoals eerder opgemerkt, wordt bij positieve autocorrelatie de standaardafwijking van het proces onderschat als we de standaardafwijking op de gebruikelijke wijze berekenen. Die berekening gaat er namelijk van uit dat elk van de n meetwaarden nieuwe, onafhankelijke informatie verschaft over het proces, maar door de autocorrelatie zullen veel meetwaarden overlappende informatie hebben en beschikken we dus over minder informatie dan bij een volledig aselechte steekproef. Dit betekent ook dat de standaardfout van het geschatte procesgemiddelde wordt onderschat, oftewel dat de precisie van die schatting wordt overschat. Maar als we er van uit mogen gaan dat de meetwaarden normaal verdeeld zijn en dat het lozingsproces 'zwak stationair' is, dat wil zeggen zonder grootschalige structuur (zoals een golfbeweging, of een langetermijntrend) en met spreiding en autocorrelaties die niet veranderen in de tijd, dan kan de berekende standaardafwijking als volgt worden gecorrigeerd [Gilbert, 1987]:

$$s^* = \sqrt{\frac{s^2}{1 - \frac{2}{n \cdot n-1} \cdot \sum_{l=1}^{n-1} ((n-l) \cdot \rho_l)}}$$

met s^* de gecorrigeerde standaardafwijking, s de standaardafwijking zoals berekend met de standaardmethode, ρ_l de autocorrelatiecoëfficiënt voor tijdsinterval l en n het aantal meetwaarden. En de standaardfout van het gemiddelde van een zwak stationair proces wordt bij autocorrelatie als volgt geschat [Bayley and Hammersley, 1946]:

$$s_{\bar{x}} = \sqrt{\frac{s^2}{n} \cdot \left(1 + \frac{2}{n} \cdot \sum_{l=1}^{n-1} ((n-l) \cdot \rho_l) \right)}$$

Op basis van deze laatste formule kunnen we ook berekenen hoe groot onze steekproef moet zijn om het procesgemiddelde met een bepaalde vóóraf gewenste precisie te kunnen schatten, als het proces autocorrelatie vertoont. Stel dat we wensen dat het verschil tussen onze schatting van het procesgemiddelde en het procesgemiddelde met grote zekerheid binnen een bepaalde absolute marge (d) ligt, oftewel:

$$\text{Kans}[|\bar{x} - \mu| \leq d] \geq 95\%$$

Het minimaal daarvoor benodigde aantal meetwaarden (n) is dan [Gilbert, 1987]:

$$n = \frac{(z_{(0,975)} \cdot \sigma)^2}{2 \cdot d^2} \cdot \left(1 + 2 \cdot \sum_{l=1}^{n-1} \rho_l + \sqrt{\left(1 + 2 \cdot \sum_{l=1}^{n-1} \rho_l \right)^2 - \frac{8 \cdot d^2}{(z_{(0,975)} \cdot \sigma)^2} \cdot \sum_{l=1}^{n-1} l \cdot \rho_l} \right)$$

met $z_{(0,975)}$, het 97,5-percentiel van de standaardnormale verdeling en σ de standaardafwijking van het proces. Deze laatste kunnen we het beste benaderen met zijn voor autocorrelatie gecorrigeerde schatting (s^* , zie boven). Maar als deze op weinig meetwaarden is gebaseerd (< 50), moeten we er rekening mee houden dat de benadering slecht kan zijn.

2.4.3 Verkleinen of omzeilen van autocorrelatie

Als autocorrelatie optreedt kan hiervoor worden gecorrigeerd, zoals boven beschreven (§ 2.4.3), maar om dat enigszins verantwoord te kunnen doen, zijn niet alleen veel meetwaarden nodig (minstens 50), maar bovendien dient het betreffende proces zwak stationair te zijn, wat bijvoorbeeld voor het in figuur 2.1 getoonde proces niet opgaat. Andere mogelijkheden zijn het verkleinen of omzeilen van de autocorrelatie, zoals door:

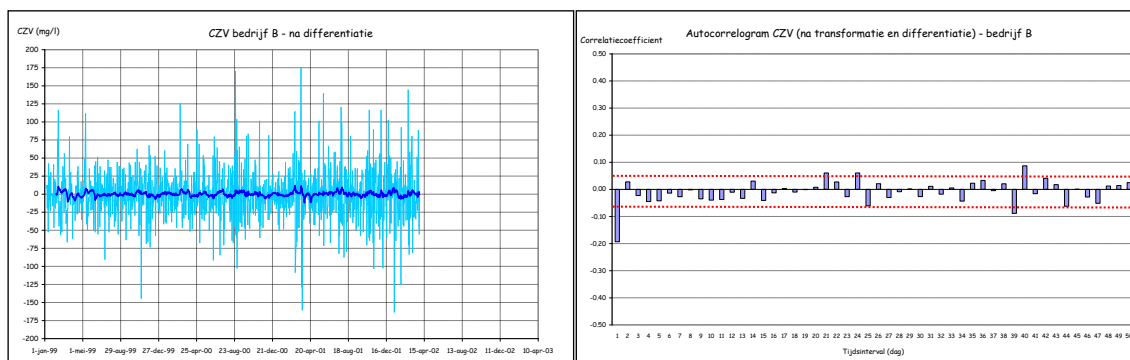
- (1) het omzetten van een reeks meetwaarden tot een reeks met een lagere meetfrequentie (weglaten van tussenliggende meetwaarden);
- (2) het omzetten van een reeks meetwaarden tot een reeks gemiddelden, zoals weekgemiddelden, of maandgemiddelden;
- (3) het omzetten van een reeks meetwaarden tot een reeks differenties.

Een reeks differenties ontstaat door de verschillen te berekenen tussen de meetwaarden die met een bepaalde vaste meetfrequentie zijn genomen. Als we bijvoorbeeld beschikken over een reeks van dagelijkse meetwaarden (x_1, x_2, \dots, x_n), dan ontstaat een reeks dagdifferenties als:

$$d_t = x_t - x_{t-1} \quad \text{voor } t = 2, 3, \dots, n$$

met d_t de differentie voor tijdstip t , x_t de meetwaarde voor tijdstip t en n het aantal meetwaarden. Als de meetreeks een 'wandeland' gemiddelde heeft en een sterke autocorrelatie, zal het differentiëren niet alleen leiden tot een reeks met een stabielere gemiddelde - een niet-stationaire reeks kan daardoor zwak stationair worden (zie figuur 2.5, links) - maar ook tot een sterke vermindering van de autocorrelatie (zie figuur 2.5, rechts).

Figuur 2.5: Links: de eerder – in figuur 2.1- getoonde meetreeks van dagverzamelmonsters van CZV, ditmaal na opschoning en differentiatie. Tevens is het voorschrijdend 30-daags gemiddelde weergegeven. Rechts: autocorrelogram van de oorspronkelijke reeks, na opschoning, transformatie tot symmetrie (volgens $-x^{-1/5}$) en differentiatie.



De oorspronkelijk zeer sterk positieve en ook nauwelijks uitdempende autocorrelatie (figuur 2.4, rechts) is na het differentiëren gereduceerd tot alleen een negatieve correlatie met de differentie van een stap terug (figuur 2.5, rechts). Twee opeenvolgende differenties (d_{t-1} en d_t) hebben namelijk altijd een meetwaarde gemeenschappelijk (x_{t-1}), zij het met tegengesteld teken, wat leidt tot een negatieve correlatie:

$$d_{t-1} = x_{t-1} - x_{t-2} \quad \text{en} \quad d_t = x_t - x_{t-1}$$

Het is na het differentiëren nu zelfs ook mogelijk geworden de autocorrelatie geheel te omzeilen, door uit de reeks differenties om en om een waarde weg te laten. Een meetreeks die zeer sterke positieve autocorrelatie vertoont, met een wandelend gemiddelde en met meetwaarden afkomstig uit een scheve kansverdeling, is zo dus door differentiatie en transformatie teruggebracht tot een reeks zonder autocorrelatie, met een stabiel gemiddelde en met waarden afkomstig uit een symmetrische kansverdeling.

2.5 Vaststellen seizoensmatig lozingsproces

Als er sprake is van een seizoensmatig (of periodiek) lozingsproces voor een bepaalde parameter, dient daarmee uiteraard rekening te worden gehouden, bijvoorbeeld door lozingseisen op te stellen voor afzonderlijke deelfasen. Ook kan worden getracht de reeks te ontdoen van deze verschijnselen door te differentiëren met een geschikt tijdsinterval (zoals een week of een jaar). Het is aan te bevelen om zoveel mogelijk vanuit theoretisch inzicht te beredeneren of er al dan niet sprake is van een seizoensmatig lozingsproces. In geval van twijfel kan dit echter ook worden nagegaan met de beschikbare meetwaarden van het proces.

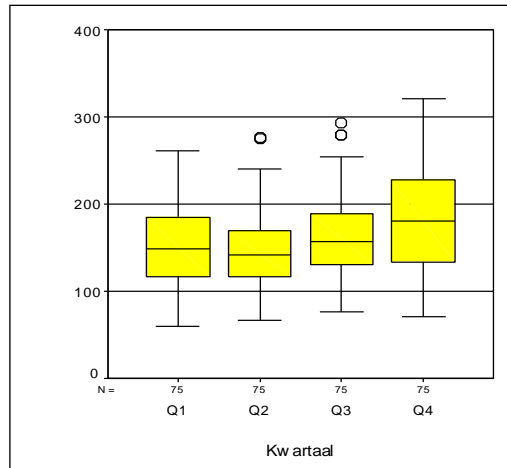
2.5.1 Visueel beoordelen op seizoensmatig lozingsproces

Een eerste, globale visuele beoordeling of er sprake is van een seizoensmatig lozingsproces is mogelijk met een grafiek van de meetreeks, of met een autocorrelogram. Een scherper oordeel is echter mogelijk met een vergelijking van box-whisker-plots voor afzonderlijke seizoenen. Als voorbeeld toont figuur 2.6 voor elk van de vier kwartalen de box-whisker-plot van de maandgemiddelde chloridegehalten van de Rijn te Lobith. De kansverdeling van het maandgemiddelde chloridegehalte in het vierde kwartaal wijkt af van die in de andere kwartalen.

Toelichting op de box-whisker-plots in figuur 2.6

Elke box-whisker-plot toont de posities van de belangrijkste percentielen van de kansverdeling van het maandgemiddelde chloridegehalte in dat seizoen. Het middendeel, de 'box' (doos), loopt van het 25-percentiel naar het 75-percentiel, terwijl het 50-percentiel, oftewel de mediaan, is aangegeven als een dikke streep in de box. De 'whiskers' (snorharen) lopen van de box naar uiteinden van de kansverdeling, namelijk het 5-percentiel en het 95-percentiel. Extreme waarnemingen in de steekproef zijn weergegeven als een cirkel (de waarneming ligt 1,5 tot 3 maal de boxlengte vanaf de box), of als een asterisk (de waarneming ligt verder dan 3 maal de boxlengte vanaf de box).

Figuur 2.6: Box-whisker-plots van de maandgemiddelde chloridegehalten van de Rijn te Lobith, in de periode januari 1976 t/m december 2000, weergegeven per kwartaal.



2.5.2 Toetsen op seizoensmatig lozingsproces

Als we objectief willen vaststellen of er sprake is van een seizoensmatig lozingspatroon, staan de volgende statistische toetsen ter beschikking:

- (1) variantie-analyse met één factor, als kan worden uitgegaan van de normale kansverdeling;
- (2) de Kruskal-Wallis-toets, als níet kan worden uitgegaan van de normale kansverdeling.

Beide toetsen gaan uit van onafhankelijke waarden en kunnen dus niet zondermeer toegepast worden als de meetreeks autocorrelatie vertoont. In een dergelijk geval zal bijvoorbeeld moeten worden uitgegaan van gemiddelden over bepaalde tijdsvakken, zoals maanden, of kwartalen.

De Kruskal-Wallis-toets is op te vatten als het verdelingsvrije equivalent van variantie-analyse met één factor. Deze toets is verantwoord toepasbaar, ongeacht het soort kansverdeling, mits de waarden onafhankelijk zijn. Het verlies aan efficiëntie ten opzichte van variantie-analyse is slechts gering, als de Kruskal-Wallis-toets wordt toegepast terwijl er tóch sprake is van normaliteit [Bradley, 1968]. Vandaar dat wij hier voorstellen de Kruskal-Wallis-toets toe te passen als er moet worden getoetst op een seizoensmatig lozingsproces.

Bij het toepassen van de Kruskal-Wallis-toets gaan we uit van het volgende model:

$$x_{ij} = \mu + \gamma_j + e_{ij}$$

met x_{ij} de waarde van het proces in jaar i ($i=1\dots r$) en seizoen j ($j=1\dots s$), μ het procesgemiddelde, γ_j het effect van seizoen j en e_{ij} het betreffende modelresidu. De te toetsen nulhypothese (er zijn geen seizoenseffecten) kan worden vertaald als:

$$H_0 : \gamma_1 = \gamma_2 = \dots = \gamma_s$$

En de alternatieve hypothese luidt dat het effect van minstens één van de seizoenen ongelijk is aan dat van de andere seizoenen. De procedure voor de toets kent dan de volgende stappen:

- (1) rangschik de waarden x_{ij} van klein naar groot;
- (2) ken de waarden rangnummers R_{ij} toe ($1\dots n$, waarbij $n=r \cdot s$);
- (3) bereken de variantie van de rangnummers, volgens:

$$s_R^2 = \frac{1}{n-1} \left[\sum_{i=1}^r \sum_{j=1}^s R_{ij}^2 - \frac{n(n+1)^2}{4} \right]$$

(4) bereken de toetsingsgrootheid T volgens:

$$T = \frac{1}{s_R^2} \left[\sum_{j=1}^s \frac{R_{+j}^2}{r} - \frac{n(n+1)^2}{4} \right]$$

met R_{+j} de som van alle rangnummers in seizoen j ;

(5) omdat T onder de nulhypothese een χ^2 -verdeling zal volgen met $(s-1)$ vrijheidsgraden, kan worden aangenomen dat de meetreeks seizoenseffecten vertoont als geldt:

$$T > \chi_{(1-\alpha, s-1)}^2$$

met $\chi_{(1-\alpha, s-1)}^2$ het $100 \cdot (1-\alpha)$ -percentiel van de χ^2 -verdeling bij $s-1$ vrijheidsgraden (deze waarde is te vinden in statistische tabellen).

2.6 Passen de lozingskenmerken bij de haalbare effluentconcentratie?

Het bedrijf dient bij de aanvraag meetwaarden te verstrekken waarmee de kenmerken van de lozing bij de gebruikelijke, beheerste procesvoering kunnen worden vastgesteld. De vergunningverlener zal vervolgens nagaan of de verstrekte meetwaarden aansluiten op wat voor een dergelijk bedrijf verwacht zou mogen worden, gegeven de stand der techniek. Deze verwachting is uitgedrukt in de 'haalbare effluentconcentratie', zijnde de gemiddelde effluentconcentratie die volgens de stand der techniek mogelijk is. Als de verstrekte meetwaarden niet aansluiten op de haalbare effluentconcentratie, dan zal het bedrijf moeten aantonen waarom dat niet mogelijk is, of anders zal er een saneringsonderzoek worden voorgeschreven.

Doordat de haalbare effluentconcentratie geen keiharde grens is, maar slechts een beredeneerde raming, kan het afdoende worden geacht om visueel te beoordelen of de lozingskenmerken daarop aansluiten. Daartoe kan worden uitgegaan van een grafiek van de chronologisch gerangschikte meetreeks, waarin tevens het voortschrijdend gemiddelde is weergegeven (zie bijvoorbeeld het linkerdeel van figuur 2.4). Als we in deze grafiek ook de haalbare effluentconcentratie aangeven, wordt direct duidelijk hoe het voortschrijdend gemiddelde zich over de gehele beschouwde periode heeft verhouden tot die haalbare effluentconcentratie. De grootte van het tijdsvenster waarover het voortschrijdend gemiddelde wordt berekend moet wel aansluiten op de achtergronden van de haalbare effluentconcentratie. Als die laatste bijvoorbeeld betrekking heeft op een jaargemiddelde, dient het tijdsvenster een jaar te bedragen.

2.7 Samenvatting van het vaststellen van de lozingskenmerken

Een lozingseis die rekening houdt met de kenmerken van de lozing onder de gebruikelijke, beheerste procesvoering, is naleefbaar door het betreffende bedrijf als het die procesvoering handhaaft. Een dergelijke naleefbare lozingseis is het eenvoudigst op te stellen als de meetwaarden afkomstig zijn uit een normale kansverdeling en geen autocorrelatie vertonen. Maar de praktijk leert dat lozingen doorgaans één of meer van de volgende complicerende kenmerken vertonen: (1) meetwaarden die afkomstig uit een niet-normale kansverdeling, (2) autocorrelatie (wat tot uiting kan komen in een 'wandeland' gemiddelde) en (3) seizoenseffecten of periodiciteit. De klassieke statistische methoden zijn niet zondermeer toepasbaar op meetreeksen met dergelijke complicerende kenmerken. Het is dus nodig om vast te stellen in hoeverre hier sprake van is, zodat daar vervolgens bij het opstellen van de lozingseisen rekening mee kan worden gehouden. Dit hoofdstuk geeft zowel visuele methoden (beoordeling van grafieken), als formele methoden (statistische toetsen) om de kenmerken van een lozingsproces vast te stellen.

Ook worden methoden gepresenteerd om complicerende kenmerken te verminderen. Zo is het vaak mogelijk om door middel van een eenvoudige rekenkundige transformatie van de meetwaarden te bewerkstelligen dat tóch mag worden uitgegaan van de normale kansverdeling. En als de autocorrelatie van een lozingsproces niet te groot is en er voldoende meetwaarden beschikbaar zijn (minstens 50), is het mogelijk om daarvoor te corrigeren, anders kan de autocorrelatie worden

verkleind of omzeild, door het weglaten van meetwaarden, middelen en/of differentiëren. Tenslotte kan het differentiëren ook uitkomst bieden om seizoenseffecten of periodiciteit op te heffen.

Het is overigens raadzaam het lozende bedrijf te verplichten om bij de aanvraag voor de vergunning aan te geven welke verstrekte meetwaarden representatief zijn voor de gebruikelijke, beheerste procesvoering. Tevens dient het bedrijf daarbij voor elke verstrekte uitschietende meetwaarde aan te tonen of te beargumenteren dat deze nog de gebruikelijke, beheerste situatie vertegenwoordigt. Dit zal de beheerder veel werk besparen en leidt tot beter uitgangsmateriaal. Het is ook raadzaam te eisen dat het bedrijf een bepaalde minimale hoeveelheid informatie verstrekt bij de aanvraag voor de vergunning. Gezien de grote autocorrelaties die op kunnen treden, kunnen we hierbij denken aan meetwaarden over een periode van twee jaar. Maar als kan worden aangetoond of beargumenteerd dat er nauwelijks autocorrelatie optreedt, zou kunnen worden volstaan met informatie over een kortere periode.

3 Formuleren lozingseisen

We mogen er van uitgaan dat lozingseisen ‘naleefbaar’ zijn als ze voldoende rekening houden met de kenmerken van de lozing bij de gebruikelijke, beheerste procesvoering. Dit hoofdstuk presenteert enkele mogelijkheden voor het formuleren van dergelijke eisen. We beginnen daartoe met een theoretische beschouwing van verschillende soorten normen (§ 3.1). Dan worden mogelijkheden voor naleefbare lozingseisen gepresenteerd, respectievelijk voor momentaan gedrag (§ 3.2) en voor gemiddeld gedrag (§ 3.3). Vervolgens wordt aangegeven hoe een lozingseis die geldt voor een bepaald monstertype, zoals een steekmonster of een dagverzamelmonster, kan worden vertaald naar een lozingseis voor een ander monstertype (§ 3.4). In § 3.5 wordt aangegeven hoe rekening kan worden gehouden met de milieurelevantie van parameters. Dit hoofdstuk sluit af met een korte samenvatting (§ 3.6).

3.1 Soorten van normen

In het ideale geval zal een lozingseis voor een parameter gebaseerd zijn op wetenschappelijk gefundeerd inzicht in het milieubezwaar van die parameter (dosis-effect-relatie). Dit worden dan ook wel ‘ideale’ normen genoemd [Barnett and O’Hagan 1997]. De emissiegrenswaarden voor de zwarte stoffen zijn daar voorbeelden van. Maar dergelijke klassieke normen houden nog geen rekening met het feit dat meetwaarden door bemonsterings- en analysefouten af kunnen wijken van de werkelijke waarden. Dit leidt ertoe dat er zelfs bij continue meten twee risico’s optreden bij het toetsen van een meetwaarde aan een emissiegrenswaarde:

- (1) een niet-overtreding wordt onterecht als een overtreding gedetecteerd. Dit wordt aangeduid als het producentenrisico;
- (2) een overtreding wordt onterecht niet als een overtreding gedetecteerd. Dit wordt aangeduid als het consumentenrisico (in dit geval een risico voor het milieu).

Stel dat we uit oogpunt van milieubescherming het consumentenrisico zo beperkt mogelijk willen houden, bijvoorbeeld maximaal 5%. Dit wordt bewerkstelligd door rekening te houden met de onzekerheid door de bemonsterings- en analysefouten, als we een meetwaarde afzetten tegen de emissiegrenswaarde. Er is dan met 95% betrouwbaarheid sprake van een overtreding als geldt:

$$x_k + 1,645 \cdot \sigma_{ba} > L$$

met x_k de meetwaarde van parameter X , σ_{ba} de (werkelijke) standaardafwijking van de bemonsterings- en analysefouten en L de emissiegrenswaarde voor deze parameter.

3.1.1 Statistische normen

Een klassieke norm, zoals een emissiegrenswaarde, is zeer star en duldt geen enkele overschrijding. Het is in feite een norm voor het maximum van een kansverdeling. Maar om te kunnen controleren of het maximum van een kansverdeling voldoet aan een norm, is een continue meetinspanning vereist. Verder geeft een dergelijke norm nog onvoldoende bescherming tegen een grote milieubelasting, zoals wanneer de bulk van de kansverdeling van meetwaarden zich direct onder de norm bevindt. Vandaar dat al dan niet op basis van inzicht in dosis-effect-relaties steeds vaker normen worden geformuleerd voor andere kengetallen dan het maximum, zoals het 90-, of 95-percentiel. Dit noemt men ook wel ‘statistische’ normen.

Als we een norm stellen voor het 90-percentiel van een parameter eisen we in feite dat de concentratie van die parameter niet meer dan 10% van het jaar boven die norm ligt. Het grote voordeel is dat we dit ook kunnen controleren zónder continue meetinspanning, want op basis van een aselechte steekproef kunnen we immers al het 90-percentiel schatten. Bij toetsing aan een dergelijke norm treden dezelfde twee risico’s op als boven genoemd, namelijk het producentenrisico en het consumentenrisico. Ditmaal zijn deze niet alleen veroorzaakt door bemonsterings- en analysefouten, maar ook door het feit dat we het 90-percentiel hebben geschat met een steekproef (de zogenaamde ‘steekproeffout’). De daardoor veroorzaakte onzekerheid kan echter worden gekwantificeerd in het betrouwbaarheidsinterval van het geschatte 90-percentiel. Het consumentenrisico

kunnen we dan weer zo beperkt mogelijk houden, bijvoorbeeld tot maximaal 5%, door te eisen dat de bovengrens van het 95%-betrouwbaarheidsinterval van het geschatte 90-percentiel van de concentratie niet meer mag bedragen dan de norm.

3.1.2 Normen voor gebruikelijke, beheerste procesvoering

Door het ontbreken van inzicht in dosis-effect-relaties is er voor veel parameters geen enkel houvast bij het formuleren van lozingseisen. Waar het gaat om het beschermen van het milieu kan men dan echter een pragmatische benadering hanteren, door te eisen dat de lozing niet meer bedraagt dan wat verwacht zou mogen worden bij de gebruikelijke, beheerste procesvoering. Voor dergelijke parameters is wel uit de stand der techniek af te leiden wat *globaal* van de gemiddelde lozing van een dergelijke parameter verwacht mag worden, gelet op het soort bedrijf (de 'haalbare effluentconcentratie'), maar dat geeft nog onvoldoende houvast voor een controle op maat voor een specifiek bedrijf.

Een lozingseis op maat voor een specifiek bedrijf dient rekening te houden met de kansverdeling van meetwaarden van de betreffende parameter bij de gebruikelijke, beheerste procesvoering (de zogenaamde 'naleefbare' lozingseis). Als de relevante kenmerken van die kansverdeling zijn vastgesteld, komt de controle neer op het signaleren van veranderingen in die kenmerken. Dit heeft sterke raakvlakken met statistische procesbewaking. In die hoek zijn reeds vele methoden ontwikkeld voor het bewaken van processen, meestal op basis van controlekaarten, met waarschuwings- en actiegrenzen. Er zijn inmiddels ook methoden beschikbaar gekomen om processen met autocorrelatie te bewaken, bijvoorbeeld aan de hand van tijdreeksmodellering (Box-Jenkins-analyse), of aan de hand van speciale controlekaarten. Een dergelijke tijdreeksmodellering is echter complex en vergt zeer specifieke, niet te automatiseren expertise. Verder hebben de genoemde speciale controlekaarten dynamische actiegrenzen, wat een ander soort handhaving zal vergen dan tot nu toe gebruikelijk was. Tenslotte zijn beide methoden slechts mogelijk als een constant meetinterval wordt gehanteerd.

In het nu volgende worden enkele lozingseisen voorgesteld die minder complex zijn om af te leiden en/of te handhaven. Het liefst nog zou ik het wijze advies van [Dodge, 1977] opvolgen, dat luidt "houd een methode eenvoudig, als je wilt dat deze toegepast wordt". Maar meetreeksen kunnen sterk verschillen in kenmerken en er is geen robuust soort lozingseis voorhanden die voor alle soorten meetreeksen toepasbaar is. Er moet dus rekening worden gehouden met de specifieke kenmerken van meetreeksen, zoals niet-normaliteit, autocorrelatie en seizoenseffecten. De hoeveelheid formules in de rest van dit hoofdstuk kan daardoor afschrikken, maar het goede nieuws is dat ze alle in software kunnen worden gevat en dus niet hoeven te worden doorgrond.

3.1.3 Voorstel: tolerantielimiet als lozingseis

Uit een steekproef van historische meetwaarden kunnen we afleiden binnen welke grens nieuwe meetwaarden verwacht mogen worden, gegeven de gebruikelijke, beheerste procesvoering. Aan de hand van de ligging van nieuwe meetwaarden ten opzichte van deze grens kunnen we vervolgens vaststellen of het lozingsproces al dan niet is gewijzigd. Zo mogen we van het 90-percentiel van een lozingsproces verwachten dat 90% van de nieuwe meetwaarden daaronder zal vallen en 10% daarboven. Maar doordat we een percentiel slechts kunnen schatten, moeten we daarbij ook zijn onzekerheid in acht nemen, uitgedrukt in het betrouwbaarheidsinterval. Zo zal het 95%-betrouwbaarheidsinterval van een geschat 90-percentiel in 95 van de 100 gevallen ook daadwerkelijk het 90-percentiel van het lozingsproces bevatten. De bovengrens van dat interval, aangeduid als de **tolerantielimiet**_(90%, 95%), zal daarmee met 95% betrouwbaarheid door *minstens* 90% van de nieuwe meetwaarden onderschreden worden en door *hoogstens* 10% van de nieuwe meetwaarden overschreden worden. Als de overschrijding meer bedraagt kan dat met 95% betrouwbaarheid worden opgevat als een signaal dat er geen sprake meer is van de gebruikelijke, beheerste procesvoering. De onzekerheden ten gevolge van bemonsterings- en analysefouten en de steekproeffout zijn reeds in het betrouwbaarheidsinterval verdisconteerd. Door de ligging van nieuwe

meetwaarden af te zetten tegen de tolerantielimiet, kan dus worden nagegaan of er een verandering in het proces is opgetreden. De tolerantielimiet is daarmee geschikt om als een naleefbare lozingseis te dienen.

Formele definitie

De tolerantielimiet $_{(\gamma, 1-\alpha)}$ kunnen we zien als de bovengrens van het $100\% \cdot (1-\alpha)$ -betrouwbaarheidsinterval van het geschatte $100\cdot\gamma$ -percentiel van een kansverdeling. Deze wordt gekenmerkt door de volgende twee percentages:

- (1) het percentiel, oftewel de dekingsgraad, zijnde de fractie van alle nieuwe meetwaarden die de limiet *minstens* beoogt te begrenzen. Dit geven we aan als $100\cdot\gamma$, met $0 < \gamma < 1$. De limiet zal dan dus door *hoogstens* $100\% \cdot (1-\gamma)$ van alle nieuwe meetwaarden worden overschreden;
- (2) de betrouwbaarheid, oftewel de mate van aannemelijkheid dat de limiet ook daadwerkelijk minstens de beoogde fractie van alle nieuwe meetwaarden zal begrenzen. Dit geven we aan als $100\% \cdot (1-\alpha)$, met $0 < \alpha < 1$. Hierbij is α het (door ons geaccepteerde) risico dat de tolerantielimiet door meer dan $100\% \cdot (1-\gamma)$ van alle nieuwe meetwaarden wordt overschreden, zónder dat er sprake is van een verandering van de lozingskenmerken.

Rol van het soort kansverdeling

Als kan worden uitgegaan van normaliteit, kunnen veel scherpere lozingseisen worden gesteld dan wanneer dat níet het geval is. Dit komt door de vele theoretische kennis die dan beschikbaar komt over eigenschappen van die kansverdeling, als aanvulling op de informatie die reeds beschikbaar is uit de meetreeks. Er kan dan zelfs een eis worden gesteld aan het maximum van een individuele meetwaarde, bijvoorbeeld in de vorm van een tolerantielimiet $_{(99,9\%, 95\%)}$. Als er niets is veranderd in de procesvoering, is het zeer aannemelijk (95% betrouwbaar) dat er slechts 1 op de 1.000 maal een meetwaarde boven deze limiet zal liggen. Als daarentegen níet kan worden uitgegaan van normaliteit, staat alleen de informatie uit de meetreeks ter beschikking. Om dan bijvoorbeeld nog een enigszins verantwoorde eis aan het maximum te kunnen stellen, dient de meetreeks minstens 1.000 onafhankelijke meetwaarden te bevatten. Dat is uiteraard in de meeste gevallen teveel gevraagd.

Rol van autocorrelatie

Het al of niet optreden van autocorrelatie in het lozingsproces heeft ook grote invloed op de mogelijkheden van de lozingseisen. Als er autocorrelatie optreedt zal de beschikbare meetreeks namelijk de standaardafwijking van het lozingsproces onderschatten, zodat daarvoor op één of andere wijze zal moeten worden gecorrigeerd bij het opstellen van de lozingseis. Verder zal er bij de handhaving rekening mee moeten worden gehouden dat opeenvolgende meetwaarden doorgaans meer op elkaar zullen lijken dan op veel eerder of later verkregen meetwaarden. Het is dan niet meer mogelijk om over een korte termijn te kunnen beoordelen of het aantal overschrijdingen van een tolerantielimiet nog past bij wat verwacht zou mogen worden bij onveranderde procesvoering.

Slechts als er voldoende meetwaarden beschikbaar zijn (minstens 50) en het proces zwak stationair is, oftewel zonder grootschalige structuur (zoals een golfbeweging, of een langetermijntrend) en met spreiding en autocorrelaties die niet veranderen in de tijd, is het enigszins verantwoord mogelijk te corrigeren voor de autocorrelatie, anders dient deze te worden verkleind of omzeild, door het weglaten van meetwaarden, middelen en/of differentiëren (zie hieronder).

Bij differentiëren zijn twee tolerantielimieten nodig

Een meetreeks met een grootschalige structuur zal een positieve autocorrelatie vertonen die slechts langzaam afneemt met het meetinterval. Als de meetreeks is verkregen met een constant meetinterval, kunnen, zoals besproken in § 2.4.4, zowel de grootschalige structuur als de nauwelijks uitdempende autocorrelatie worden opgeheven door te differentiëren, volgens:

$$d_t = x_t - x_{t-1} \quad \text{voor } t = 2, 3, \dots, n$$

met d_t de differentie voor tijdstip t , x_t de meetwaarde voor tijdstip t en n het aantal meetwaarden. Door het differentiëren kunnen extreem hoge meetwaarden zowel tot uiting komen in een positieve, als in een negatieve differentie. Voor een gedifferentieerde reeks dienen er dus *twee* tolerantielimieten te worden opgesteld, zijnde de bovengrens en de ondergrens van het tolerantieinterval. Als een differentie buiten dat interval valt, zal eerst moeten worden vastgesteld – bijvoorbeeld visueel – of dat komt door een extreem hoge, of een extreem lage meetwaarde, alvorens een conclusie over het al dan niet onbeheerst zijn van het proces te kunnen trekken.

In de volgende twee paragrafen worden enkele mogelijkheden voor pragmatische lozingseisen aangegeven, met onderscheid tussen eisen voor momentaan gedrag (individuele meetwaarden) en eisen voor gemiddeld gedrag (gemiddelden van meetwaarden).

3.2 Mogelijke lozingseisen voor momentaan gedrag

Een lozingseis voor momentaan gedrag komt neer op een eis aan individuele meetwaarden. Daarvoor kan de tolerantielimiet worden gehanteerd. We onderscheiden de volgende gevallen:

- (1) normale kansverdeling, geen autocorrelatie;
- (2) normale kansverdeling, autocorrelatie;
- (3) geen normale kansverdeling, geen autocorrelatie;
- (4) geen normale kansverdeling, autocorrelatie.

3.2.1 Normale kansverdeling, geen autocorrelatie

Als we er van uit mogen gaan dat de (al dan niet getransformeerde) meetwaarden afkomstig zijn uit een normale kansverdeling en we geen rekening hoeven te houden met autocorrelatie van het lozingsproces, dan berekenen we de tolerantielimiet $_{(\gamma,1-\alpha)}$ van toekomstige (eventueel getransformeerde) meetwaarden als [Natrella, 1963]:

$$TL_{(\gamma,1-\alpha)} = \bar{x} + \frac{z_{(\gamma)} + \sqrt{\left(z_{(\gamma)}^2 - \left(1 - \frac{z_{(1-\alpha)}^2}{2 \cdot (n-1)}\right) \cdot \left(z_{(\gamma)}^2 - \frac{z_{(1-\alpha)}^2}{n} \right) \right)}{\left(1 - \frac{z_{(1-\alpha)}^2}{2 \cdot (n-1)}\right)} \cdot s$$

met \bar{x} en s de schattingen van het gemiddelde en de standaardafwijking van het proces, n het aantal meetwaarden waarop die schattingen zijn gebaseerd, $z_{(\gamma)}$ het $100 \cdot \gamma$ -percentiel van de standaardnormale verdeling, $z_{(1-\alpha)}$ het $100 \cdot (1-\alpha)$ -percentiel van de standaardnormale verdeling en n het aantal meetwaarden.

Enige voorzichtigheid is wel op zijn plaats als we op deze wijze een extreme tolerantielimiet willen berekenen, zoals het interval dat slechts door 1 meetwaarde op 1.000 onafhankelijke meetwaarden wordt overschreden. De geldigheid daarvan is namelijk sterk gevoelig voor afwijkingen van de normale kansverdeling. Bij twijfel aan het soort kansverdeling kan daarom beter voor een verdelingsvrije tolerantielimiet worden gekozen (zie verder).

Als het een gedifferentieerde reeks betreft, moet het tolerantieinterval $_{(\gamma,1-\alpha)}$ worden berekend. De boven- en ondergrens van dat interval volgen uit [Hald, 1952]:

$$TI_{(\gamma,1-\alpha)} = \bar{x} \pm z_{((1+\gamma)/2)} \cdot \sqrt{\frac{n-1}{\chi_{(\alpha,n-1)}^2}} \cdot \left(1 + \frac{1}{2n}\right) \cdot s$$

met \bar{x} en s de schattingen van het gemiddelde en de standaardafwijking van het gedifferentieerde proces, n het aantal waarden waarop die schattingen zijn gebaseerd, $z_{((1+\gamma)/2)}$ het $100 \cdot (1+\gamma)/2$ -percentiel van de standaardnormale verdeling en $\chi_{(\alpha,n-1)}^2$ het $100 \cdot \alpha$ -percentiel van de chikwadratverdeling bij $n-1$ vrijheidsgraden.

3.2.2 Normale kansverdeling, autocorrelatie

Als we er van uit mogen gaan dat de (al dan niet getransformeerde) meetwaarden afkomstig zijn uit een normale kansverdeling, er sprake is van autocorrelatie en een zwak stationair lozingsproces, dan wordt de tolerantielimiet $_{(\gamma,1-\alpha)}$ van toekomstige (eventueel getransformeerde) meetwaarden berekend als aangegeven in § 3.2.1, maar nu met s vervangen door s^* , de voor de autocorrelatie gecorrigeerde schatting van de standaardafwijking van het proces, volgens:

$$s^* = \sqrt{\frac{s^2}{1 - \frac{2}{n \cdot n - 1} \cdot \sum_{l=1}^{n-1} ((n-l) \cdot \rho_l)}}$$

met ρ_l de autocorrelatiecoëfficiënt voor tijdsinterval l . Als alle autocorrelatiecoëfficiënten nul zijn, reduceert deze formule tot die van § 3.2.1. Een positieve autocorrelatie leidt dus tot een hogere tolerantielimiet.

Als het een gedifferentieerde reeks betreft, dan wordt het tolerantieinterval $_{(\gamma,1-\alpha)}$ berekend als aangegeven in § 3.2.1, maar nu eveneens met s vervangen door s^* , gedefinieerd als boven.

3.2.3 Niet-normale kansverdeling, geen autocorrelatie

Als we niet uit kunnen gaan van een normale kansverdeling - ook niet na transformatie van de meetwaarden - en we geen rekening hoeven te houden met autocorrelatie van het lozingsproces en er zijn meer dan 20 meetwaarden beschikbaar ($n > 20$), dan berekenen we de tolerantielimiet $_{(\gamma,1-\alpha)}$ van toekomstige (eventueel getransformeerde) meetwaarden als [Gilbert, 1987]:

$$TL_{(\gamma,1-\alpha)} = x_{[u]} \quad \text{en} \quad u = \gamma \cdot (n+1) + z_{(1-\alpha)} \cdot \sqrt{n \cdot \gamma \cdot (1-\gamma)}$$

met $x_{[u]}$ de meetwaarde die zich na rangschikking van klein naar groot op de u^e -positie bevindt (als u geen geheel getal is moet lineair worden geïnterpoleerd tussen de naastliggende meetwaarden) en $z_{(1-\alpha)}$ het $100 \cdot (1-\alpha)$ -percentiel van de standaardnormale verdeling.

Voorbeeld

Stel dat we beschikken over 75 onafhankelijke meetwaarden van koper, verkregen bij lozing onder de gebruikelijke, beheerste procesvoering, over een periode van twee jaar. De meetwaarden blijken afkomstig uit een zeer scheve kansverdeling en het lukt niet om deze te transformeren tot symmetrie. Om tot de tolerantielimiet $_{(90\%,95\%)}$ van toekomstige meetwaarden te kunnen komen, berekenen we eerst u als volgt: $u = 0,90 \cdot 76 + 1,645 \cdot \sqrt{(75 \cdot 0,90 \cdot 0,10)} = 72,7$. De betreffende tolerantielimiet schatten we dus uit de 72^e en 73^e van de gerangschikte meetwaarden, als volgt: $TL_{(90\%,95\%)} = x_{[72]} + 0,7 \cdot (x_{[73]} - x_{[72]})$. Dus als de 72^e meetwaarde 552 µg/l is en de 73^e is 560 µg/l, dan volgt: $TL_{(90\%,95\%)} = 552 + 0,7 \cdot (560 - 552) = 557,6$ µg/l.

Als er weinig meetwaarden beschikbaar zijn, dan is het langs bovenstaande weg niet meer mogelijk om de tolerantielimiet voor een hoog percentiel met een hoge betrouwbaarheid te schatten, doordat u dan groter wordt dan n . In een dergelijk geval is het aan te raden de maximale meetwaarde ($x_{[n]}$) te hanteren als tolerantielimiet. De daarbij horende dekingsgraad (γ) en betrouwbaarheid ($1-\alpha$) kunnen worden vastgesteld aan de hand van de volgende relatie [Montgomery, 1991]:

$$n \cdot \ln(\gamma) = \ln(\alpha)$$

Voorbeeld

Stel dat we beschikken over 20 onafhankelijke meetwaarden van koper, verkregen bij lozing onder de gebruikelijke, beheerste procesvoering, over een periode van twee jaar. Dit aantal is té weinig om vast te kunnen stellen uit welk soort kansverdeling ze afkomstig zijn, of om een geschikte transformatie te vinden, zodat we niet uit kunnen gaan van een normale kansverdeling. Als we het maximum van deze 20 meetwaarden ($x_{[20]}$) hanteren als tolerantielimiet en we een betrouwbaarheid van 95% wensen ($\alpha=5\%$), dan is de dekingsgraad (γ) 86%. We mogen dus met 95% betrouwbaarheid verwachten dat deze tolerantielimiet door hoogstens 14% van de nieuwe meetwaarden zal worden overschreden, mits het lozingsproces niet wijzigt.

Als het een gedifferentieerde reeks betreft, moet het tolerantieinterval $_{(\gamma,1-\alpha)}$ worden berekend. Zijn er meer dan 20 meetwaarden beschikbaar ($n > 20$), dan volgt de bovengrens van dat interval uit:

$$\text{bovengrens } TI_{(\gamma,1-\alpha)} = x_{[u]} \quad \text{en} \quad u = \frac{1+\gamma}{2} \cdot (n+1) + z_{(1-\alpha/2)} \cdot \sqrt{n \cdot \frac{1+\gamma}{2} \cdot \left(1 - \frac{1+\gamma}{2}\right)}$$

met $x_{[u]}$ de meetwaarde die zich na rangschikking van klein naar groot op de u^e -positie bevindt (als u geen geheel getal is moet lineair worden geïnterpoleerd tussen de naastliggende meetwaarden) en $z_{(1-\alpha/2)}$ het $100 \cdot (1-\alpha/2)$ -percentiel van de standaardnormale verdeling. En de ondergrens van dat interval volgt uit:

$$\text{ondergrens } TI_{(\gamma,1-\alpha)} = x_{[l]} \quad \text{en} \quad l = \frac{1-\gamma}{2} \cdot (n+1) - z_{(1-\alpha/2)} \cdot \sqrt{n \cdot \frac{1-\gamma}{2} \cdot \left(1 - \frac{1-\gamma}{2}\right)}$$

met $x_{[l]}$ de meetwaarde die zich na rangschikking van klein naar groot op de l^e -positie bevindt (zie verder boven). Als er daarentegen weinig meetwaarden beschikbaar zijn, is het aan te raden de maximale meetwaarde ($x_{[n]}$) te hanteren als bovengrens en de minimale meetwaarde ($x_{[1]}$) als ondergrens van het tolerantieinterval. De daarbij horende dekingsgraad (γ) en betrouwbaarheid ($1-\alpha$) kunnen vervolgens worden vastgesteld aan de hand van de volgende relatie [Montgomery, 1991]:

$$n \approx \frac{1}{2} + \left(\frac{1+\gamma}{1-\gamma} \right) \cdot \frac{\chi_{(1-\alpha,4)}^2}{4}$$

met $\chi_{(1-\alpha,4)}^2$ het $100 \cdot (1-\alpha)$ -percentiel van de chikwadrat-verdeling bij 4 vrijheidsgraden (deze is te vinden in statistische tabellen).

3.2.4 Niet-normale kansverdeling, autocorrelatie

Als we niet uit kunnen gaan van een normale kansverdeling - ook niet na transformatie van de meetwaarden - en er sprake is van autocorrelatie van het lozingsproces, dan wordt een tolerantielimiet van toekomstige meetwaarden nog steeds berekend zoals beschreven in de voorgaande subparagraaf (§ 3.2.3), zij het ditmaal niet met alle beschikbare meetwaarden, maar alleen met de onafhankelijke meetwaarden. Dit houdt in dat eerst moet worden vastgesteld vanaf welk meetinterval kan worden uitgegaan van onafhankelijke meetwaarden en dat vervolgens meetwaarden moeten worden weggelaten bij het berekenen van het tolerantieinterval. Het is aan te bevelen een procedure hiervoor op te stellen, opdat hierbij een uniforme aanpak wordt gehanteerd.

3.3 Mogelijke lozingseisen voor gemiddeld gedrag

Een lozingseis voor gemiddeld gedrag komt neer op een eis aan het gemiddelde van een aantal meetwaarden. Volgens de statistische theorie (de Centrale Limietstelling) zal een kansverdeling van gemiddelden meer naderen tot de normale kansverdeling, naarmate er meer meetwaarden worden gemiddeld, ongeacht de kansverdeling van de meetwaarden. Als de meetwaarden afkomstig zijn uit een zeer scheve kansverdeling moet er nog wel worden gemiddeld over veel meetwaarden (50 à 75) om dit te bewerkstelligen, maar naarmate de meetwaarden afkomstig zijn uit een symmetrische kansverdeling reduceert het benodigde aantal sterk. We kunnen er van uitgaan dat na een eventueel benodigde transformatie van de meetwaarden tot symmetrie (zie § 2.3.3), de kansverdeling van het gemiddelde van vijf of meer meetwaarden voldoende genaderd is tot de normale kansverdeling. Voor wat betreft het formuleren van lozingseisen aan gemiddeld gedrag aan de hand van tolerantielimieten onderscheiden we daarom alleen nog maar de volgende twee gevallen:

- (1) normale kansverdeling, geen autocorrelatie;
- (2) normale kansverdeling, autocorrelatie.

3.3.1 Normale kansverdeling, geen autocorrelatie

Als we er van uit mogen gaan dat het gemiddelde van m opeenvolgende (al dan niet getransformeerde) meetwaarden afkomstig is uit een normale kansverdeling en we geen rekening hoeven te

houden met autocorrelatie van het lozingsproces, dan berekenen we de tolerantielimiet $_{(\gamma,1-\alpha)}$ van toekomstige gemiddelden als:

$$TL_{(\gamma,1-\alpha)} = \bar{x} + \frac{z_{(\gamma)} + \sqrt{\left(z_{(\gamma)}^2 - \left(1 - \frac{z_{(1-\alpha)}^2}{2 \cdot (n-1)}\right) \cdot \left(z_{(\gamma)}^2 - \frac{z_{(1-\alpha)}^2}{n} \right) \right)}{\left(1 - \frac{z_{(1-\alpha)}^2}{2 \cdot (n-1)}\right)} \cdot \frac{s}{\sqrt{m}}$$

met \bar{x} en s de schattingen van het gemiddelde en de standaardafwijking van het proces, n het aantal meetwaarden waarop die schattingen zijn gebaseerd, $z_{(\gamma)}$ het $100 \cdot \gamma$ -percentiel van de standaardnormale verdeling en $z_{(1-\alpha)}$ het $100 \cdot (1-\alpha)$ -percentiel van de standaardnormale verdeling.

Als het een gedifferentieerde reeks betreft, moet het tolerantieinterval $_{(\gamma,1-\alpha)}$ worden berekend. De boven- en ondergrens van dat interval volgen uit [Hald, 1952]:

$$TI_{(\gamma,1-\alpha)} = \bar{x} \pm z_{((1+\gamma)/2)} \cdot \sqrt{\frac{n-1}{\chi_{(\alpha,n-1)}^2}} \cdot \left(1 + \frac{1}{2n}\right) \cdot \frac{s}{\sqrt{m}}$$

met \bar{x} en s de schattingen van het gemiddelde en de standaardafwijking van het gedifferentieerde proces, n het aantal waarden waarop die schattingen zijn gebaseerd, $z_{((1+\gamma)/2)}$ het $100 \cdot (1+\gamma)/2$ -percentiel van de standaardnormale verdeling en $\chi_{(\alpha,n-1)}^2$ het $100 \cdot \alpha$ -percentiel van de chikwadratverdeling bij $n-1$ vrijheidsgraden.

Een andere mogelijkheid is een lozingseis op te stellen voor een speciaal soort voortschrijdend gemiddelde, namelijk het exponentieel gewogen voortschrijdend gemiddelde³ [Montgomery, 1991]. Dit is gedefinieerd als:

$$w_t = (1 - \lambda) \cdot w_{t-1} + \lambda \cdot x_t \quad \text{voor } t = 1, 2, \dots$$

met w_t het voortschrijdend gemiddelde voor tijdstip t , λ een constante ($0 < \lambda < 1$) en x_t de meetwaarde voor tijdstip t . De beginwaarde (w_0) wordt gezet op \bar{x} , de schatting van het gemiddelde van het proces. De in de literatuur aanbevolen grenswaarden (gemiddelde plus of min 3 sigma) zijn op te vatten als de begrenzingen van een tolerantieinterval $_{(99,7\%, >95\%)}$. Dit interval wordt berekend als:

$$TI_{(99,7\%, >95\%)} = \bar{x} \pm 3 \cdot s \cdot \sqrt{\frac{\lambda}{2 - \lambda}}$$

met s de schatting van de standaardafwijking van het proces. Voor λ kan een waarde van 0,2 worden aanbevolen [Zhang, 1998]. Het interval is direct te gebruiken als het een gedifferentieerde reeks betreft. Als het geen gedifferentieerde reeks betreft kan de bovengrens van het interval, op te vatten als de tolerantielimiet $_{(99,9\%, >95\%)}$, dienen als lozingseis.

De ervaring leert dat op basis van gewone gemiddelden vooral grote afwijkingen van het gemiddelde snel kunnen worden gedetecteerd, terwijl op basis van exponentieel gewogen voortschrijdende gemiddelden vooral kleine afwijkingen van het gemiddelde snel kunnen worden gedetecteerd. Daarom wordt ook wel aanbevolen beide methoden naast elkaar te hanteren.

3.3.2 Normale kansverdeling, autocorrelatie

Als we er van uit mogen gaan dat het gemiddelde van m opeenvolgende (al dan niet getransformeerde) meetwaarden afkomstig is uit een normale kansverdeling, er sprake is van autocorrelatie en een zwak stationair lozingsproces, dan kan de tolerantielimiet $_{(\gamma,1-\alpha)}$ van toekomstige gemiddelden worden berekend als aangegeven in § 3.3.1, maar nu met s vervangen door s^* , de voor de autocorrelatie gecorrigeerde schatting van de standaardafwijking van het proces, volgens:

³ In de literatuur aangeduid als EWMA ('Exponentially Weighted Moving Average').

$$s^* = \sqrt{\frac{s^2}{1 - \frac{2}{n \cdot n - 1} \cdot \sum_{l=1}^{n-1} ((n-l) \cdot \rho_l)}}$$

met ρ_l de autocorrelatiecoëfficiënt voor tijdsinterval l . Als alle autocorrelatiecoëfficiënten nul zijn, reduceert deze formule tot die van § 3.3.1. Een positieve autocorrelatie leidt dus tot een hogere tolerantielimiet.

Als het een gedifferentieerde reeks betreft, dan wordt het tolerantieinterval $_{(y, 1-\alpha)}$ berekend als aangegeven in § 3.3.1, maar nu eveneens met s vervangen door s^* , gedefinieerd als boven.

Het in de vorige subparagraaf beschreven exponentieel gewogen voortschrijdend gemiddelde kan ook worden gehanteerd in geval van autocorrelatie en een zwak stationair lozingsproces. Het tolerantieinterval dient dan echter te worden aangepast en wordt nu berekend als [Zhang, 1998]:

$$TI_{(99,7\%, >95\%)} = \bar{x} \pm 3 \cdot s \cdot \sqrt{\frac{\lambda}{2-\lambda} \cdot \left(1 + 2 \cdot \sum_{l=1}^k (\rho_l \cdot (1-\lambda)^l \cdot (1 - (1-\lambda)^{2(k-l)})) \right)}$$

met s de schatting van de standaardafwijking van het proces, ρ_l de autocorrelatiecoëfficiënt voor tijdsinterval l en k het aantal relevant te achten autocorrelatiecoëfficiënten. Om grote fouten bij het schatten van deze coëfficiënten te vermijden dient k niet groter te zijn dan $n/4$ (n is het aantal meetwaarden). Deze aanpak is dus niet aan te bevelen bij een slechts langzaam uitdempende autocorrelatie en een korte reeks. Voor λ kan een waarde van 0,2 worden aanbevolen [Zhang, 1998]. Het interval is direct te gebruiken als het een gedifferentieerde reeks betreft. Als het geen gedifferentieerde reeks betreft kan de bovengrens van het interval, op te vatten als de tolerantielimiet $_{(99,9\%, >95\%)}$, dienen als lozingseis.

3.4 Vertalen lozingseis naar ander monstertype

Om naleefbare lozingseisen, zoals beschreven in de voorgaande paragrafen, op te kunnen stellen, zijn meetwaarden nodig van de betreffende parameter. De lozingseis geldt dan echter alleen voor het van toepassing zijnde monstertype. Dus als een lozingseis is afgeleid met meetwaarden van dagverzamelmonsters, kan die niet worden gehanteerd voor steekmonsters.

Om een lozingseis voor meetwaarden van het ene monstertype te kunnen omzetten naar die van een ander type, zal er dus een vertaalslag moeten plaatsvinden. Daarbij gaan we uit van de volgende relatie tussen de meetwaarde van een steekmonster en de meetwaarde van een dagverzamelmonster:

$$x_{st,i} = x_{dv,i} + \varepsilon$$

met $x_{st,i}$ de meetwaarde van een steekmonster ergens gedurende dag i , $x_{dv,i}$ de meetwaarde van een dagverzamelmonster op dag i en ε het verschil tussen beide. Er geldt de volgende relatie tussen de standaardafwijkingen:

$$\sigma_{st}^2 = \sigma_{dv}^2 + \sigma_{\varepsilon}^2$$

De spreiding van steekmonsters zal dus meestal groter zijn dan die van dagverzamelmonster en minimaal gelijk daaraan (schattingsfouten niet meegerekend).

De standaardafwijking van het verschil tussen de meetwaarde van een dagverzamelmonster en de meetwaarde van een steekmonster (σ_{ε}) kan op drie manieren worden vastgesteld: (1) schatten uit de beschikbare parallelle meetwaarden, (2) schatten met een proefopzet, of (3) door beredering.

Ad (1) Schatten uit de beschikbare parallelle meetwaarden

Als er van voldoende dagen (meer dan 15) zowel een meetwaarde van een steekmonster als van een dagverzamelmonster beschikbaar is, kan σ_ε worden geschat uit het verschil van de twee uit die meetwaarden geschatte standaardafwijkingen:

$$s_\varepsilon = \sqrt{s_{st}^2 - s_{dv}^2}$$

Door schattingsfouten kan het verschil ook negatief zijn, maar dan is σ_ε blijkbaar zeer gering.

Ad (2) Schatten met een proefopzet

Een geschikte proefopzet om σ_ε te schatten, is op elk van een aantal aselekt gekozen dagen zowel een dagverzamelmonster als een aantal steekmonsters te nemen, de laatste aselekt geselecteerd binnen de lozingsperiode van de betreffende dag. Op basis van de resultaten kunnen we vervolgens σ_ε schatten als:

$$s_\varepsilon = \frac{\sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m (x_{st,ij} - x_{dv,i})^2}{n \cdot (m-1)}$$

met n het aantal bij deze proefopzet betrokken dagen met dagverzamelmonsters, m het aantal steekmonsters dat op elk van deze dagen is genomen, $x_{st,ij}$ de meetwaarde van het j -de steekmonster op dag i en $x_{dv,i}$ de meetwaarde van het dagverzamelmonster op dag i .

Ad (3) Beredenering

Een proefopzet als boven beschreven kost tijd en geld. Als deze niet beschikbaar zijn kunnen we ook proberen te beredeneren wat σ_ε is. Daarvoor is echter wel gedetailleerd inzicht in het lozingsproces nodig. Als er binnen een lozingsdag nauwelijks variatie te verwachten is in het lozingsproces, mogen we veronderstellen dat σ_ε minimaal of zelfs nul is. Een dergelijke verwachting is bijvoorbeeld te rechtvaardigen als er een grote buffer bestaat tussen het productieproces en de lozing.

Bij het vertalen van een lozingseis voor meetwaarden van het ene monstertype naar die van een ander type moet ook rekening worden gehouden met een eventuele autocorrelatie. Doordat dagverzamelmonsters doorgaans met gelijke meetintervallen worden genomen, is het daarmee mogelijk om vast te stellen of er sprake is van autocorrelatie (zie § 2.4). Als er sprake is van autocorrelatie, zal dat ook opgaan voor steekmonsters van het betreffende proces. De mate van autocorrelatie is echter afhankelijk van het meetinterval en bij steekmonsters varieert het meetinterval. Het is dan aan te bevelen uit te gaan van de autocorrelatie die is vastgesteld met de dagverzamelmonsters voor het *gemiddelde* meetinterval van de steekmonsters. Als er alleen steekmonsters beschikbaar zijn van het proces, met variërende meetintervallen, dan kan autocorrelatie alleen nog maar visueel worden vastgesteld. Een vertaling naar de autocorrelatie voor dagverzamelmonsters met een bepaalde meetfrequentie wordt dan erg speculatief.

3.5 Rekening houden met milieurelevantie van parameters

Het ligt voor de hand dat we het risico op het niet-signaleren van normoverschrijdingen meer beperkt willen houden bij parameters met een grotere milieurelevantie. De mogelijkheden hiertoe worden in het nu volgende besproken voor twee soorten normen:

- (1) emissiegrenswaarden;
- (2) naleefbare lozingseisen.

Ad (1) Een emissiegrenswaarde is een vaste norm, die doorgaans is gebaseerd op inzicht in de dosis-effect-relatie. Aan de hand van meetwaarden kan worden vastgesteld of er al dan niet sprake is van normoverschrijding. Zoals toegelicht in § 3.1, kunnen we het risico op het niet-signaleren van een normoverschrijding – het consumentenrisico - hierbij beperken tot 5%, door uit te gaan van een overschrijding, als geldt:

$$x_k + 1,645 \cdot \sigma_{ba} > L$$

met x_k de meetwaarde van parameter X , σ_{ba} de standaardafwijking van de bemonsterings- en analysefouten en L de emissiegrenswaarde voor de betreffende parameter. De consumentenbescherming bestaat echter alleen voor de meettijdstippen, daartussen is er geen enkele consumentenbescherming. Het totale beschermingsniveau hangt dus af van de meetfrequentie in de handhavingsfase. Het is daarom aan te bevelen om bij parameters met een grotere milieurelevantie een hogere meetfrequentie op te leggen. Ter aanvulling verdient het ook overweging een dynamische meetfrequentie op te leggen, die afhangt van de ligging van de kansverdeling van de meetwaarden ten opzichte van de norm (zie het voorbeeld in tabel 3.1). Om te bezien of de meetfrequentie aanpassing behoeft, dient dus met enige regelmaat te worden nagegaan of de kansverdeling is veranderd.

Tabel 3.1: Voorbeeld van een dynamische meetfrequentie, die afhangt van de ligging van de kansverdeling van de meetwaarden ten opzichte van de norm. De kansverdeling is hier gekenschetst aan de hand van het 99- en het 50-percentiel ($x_{0,99}$ en $x_{0,50}$) en hun verschil.

Kenmerk kansverdeling	Aanbevolen meetfrequentie
$x_{0,99} + 2(x_{0,99} - x_{0,50}) < \text{norm}$	minimaal
$x_{0,99} + (x_{0,99} - x_{0,50}) < \text{norm}$ en $x_{0,99} + 2(x_{0,99} - x_{0,50}) > \text{norm}$	intermediair
$x_{0,99} < \text{norm}$ en $x_{0,99} + (x_{0,99} - x_{0,50}) > \text{norm}$	maximaal

Enige voorzichtigheid is geboden als we een hogere meetfrequentie willen opleggen dan die van de historische meetwaarden waarmee de kenmerken van hun kansverdeling zijn vastgesteld. Er is namelijk geen objectieve methode voorhanden om de autocorrelatiestructuur die is geconstateerd voor een bepaalde meetfrequentie te vertalen naar die van een hogere meetfrequentie.

Ad (2) Een naleefbare lozingseis is gebaseerd op de kansverdeling van de meetwaarden bij de gebruikelijke, beheerste procesvoering. We mogen aannemen dat er sprake is van een onbeheerste procesvoering als het percentage meetwaarden dat de lozingseis overschrijdt meer is dan wat verwacht zou mogen bij de gebruikelijke, beheerste procesvoering. Ook hier hangt het beschermingsniveau af van de meetfrequentie in de handhavingsfase en is het dus aan te bevelen om bij parameters met een grotere milieurelevantie een hogere meetfrequentie op te leggen. Een dynamische meetfrequentie op basis van de ligging van de kansverdeling van de meetwaarden ten opzichte van de lozingseis heeft hier geen zin, want die ligging zal bij een beheerste procesvoering niet veranderen.

3.6 Samenvatting van het formuleren van lozingseisen

Een geschikte naleefbare lozingseis is de tolerantielimiet, zijnde de grens waarvan we met een bepaalde betrouwbaarheid mogen verwachten dat die hooguit door een bepaald percentage nieuwe meetwaarden (of gemiddelden van meetwaarden) wordt overschreden, mits de procesvoering normaal en beheerst blijft. Als het percentage overschrijding meer bedraagt, mogen we met dezelfde betrouwbaarheid aannemen dat er niet meer sprake is van de gebruikelijke, beheerste procesvoering. Een tolerantielimiet wordt berekend uit historische meetwaarden en de berekeningswijze hangt af van de kansverdeling van het proces en van het al of niet optreden van autocorrelatie. De onzekerheden ten gevolge van bemonsterings- en analysefouten en de steekproeffout zijn reeds in de tolerantielimiet verdisconteerd.

Dit hoofdstuk geeft voor verschillende combinaties van kansverdeling en autocorrelatie aan hoe de tolerantielimiet kan worden berekend. Als kan worden uitgegaan van een normale kansverdeling, kan zelfs een tolerantielimiet worden berekend met een verwaarloosbare

overschrijdingskans, zoals 1/1.000. Deze kan dan worden gehanteerd als een lozingseis die niet overschreden mag worden. Als niet kan worden uitgegaan van een normale kansverdeling, zijn er minstens 1.000 onafhankelijke meetwaarden nodig om een dergelijke tolerantielimiet te kunnen berekenen.

Om een lozingseis die is afgeleid voor een bepaald monstertype (zoals dagverzamelmonsters, of steekmonsters) te kunnen omzetten naar een die van een ander monstertype, dient er een vertaalslag plaats te vinden, op basis van beschikbare parallele meetwaarden, een speciale proefopzet of beredenering. Daarbij dient ook rekening te worden gehouden met een eventuele autocorrelatie.

Als we het risico op het niet-signaleren van normoverschrijdingen voor parameters met een grotere milieurelevantie meer willen beperken, dan dient voor die parameters een hogere meetfrequentie te worden opgelegd. Enige voorzichtigheid is geboden als we een hogere meetfrequentie willen opleggen dan die van de historische meetwaarden waarmee de kenmerken van hun kansverdeling zijn vastgesteld. Er is namelijk geen objectieve methode voorhanden om de autocorrelatiestructuur die is geconstateerd voor een bepaalde meetfrequentie te vertalen naar die van een hogere meetfrequentie.

4 Benutten van relaties tussen parameters

Als verschillende parameters een voldoende sterke relatie vertonen, biedt zich de mogelijkheid aan om er één of meer te laten vervallen uit het meetprogramma. Dit hoofdstuk geeft aan hoe de sterkte van een relatie tussen twee parameters kan worden vastgesteld en hoe vervolgens de relatie kan worden benut om de meetinspanning te verminderen.

4.1 Vaststellen relaties tussen parameters

Een geschikte mogelijkheid om de relaties tussen parameters vast te stellen wordt geboden door correlatie-analyse, waarbij wordt afgegaan op de correlatiecoëfficiënt van twee variabelen, zijnde een maat voor de samenhang in hun meetwaarden. Afhankelijk van het soort kansverdelingen waar de meetwaarden uit afkomstig zijn, kan het gebruik van één van de twee volgende correlatiecoëfficiënten worden aanbevolen:

- (1) de lineaire, of ook wel Pearson-correlatiecoëfficiënt;
- (2) de Spearman-rangcorrelatiecoëfficiënt

4.1.1 De lineaire, of Pearson-correlatiecoëfficiënt

Als we er van uit kunnen gaan dat zowel de meetwaarden van parameter X als de meetwaarden van parameter Y afkomstig zijn uit een normale kansverdeling, eventueel na transformatie van de meetwaarden, dan is aan te bevelen hun lineaire relatie uit te drukken in de Pearson-correlatiecoëfficiënt, berekend als:

$$r_p = \frac{\sum_{t=1}^n ((x_t - \bar{x}) \cdot (y_t - \bar{y}))}{\sqrt{\left(\sum_{t=1}^n (x_t - \bar{x})^2\right) \cdot \left(\sum_{t=1}^n (y_t - \bar{y})^2\right)}}$$

met x_t en y_t de meetwaarde van X respectievelijk Y op tijdstip t , \bar{x} en \bar{y} het geschatte gemiddelde van X respectievelijk Y en n het aantal gepaarde meetwaarden van X en Y .

4.1.2 De Spearman-rangcorrelatiecoëfficiënt

Als we er niet van uit kunnen gaan dat zowel de meetwaarden van parameter X als de meetwaarden van parameter Y afkomstig zijn uit een normale kansverdeling, ook niet na transformatie van de meetwaarden, is aan te bevelen hun samenhang uit te drukken in de Spearman-rangcorrelatiecoëfficiënt, berekend als:

$$r_{Sp} = \frac{\sum_{t=1}^n (Rx_t \cdot Ry_t) - n \cdot \left(\frac{n+1}{2}\right)^2}{n \cdot (n^2 - 1) / 12}$$

met Rx_t het rangnummer van x_t als de meetwaarden van X oplopend zijn gerangschikt en Ry_t hetzelfde voor Y .

4.2 Voorspellen van niet-bemeten parameter met bemeten parameter

Een mogelijkheid om de meetwaarden van de ene parameter (Y) te beschrijven met die van een andere parameter (X), biedt het lineaire regressiemodel. Indien nodig, is aan te bevelen de meetwaarden van X en/of Y eerst te transformeren tot symmetrie (zie § 2.3.3), in welk geval in het onderstaande voor 'meetwaarde' moet worden gelezen: 'getransformeerde meetwaarde'. Het lineaire regressiemodel luidt:

$$y_t = b_0 + b_1 \cdot x_t + e_t$$

met y_t en x_t de meetwaarde van Y , respectievelijk X op tijdstip t , b_0 en b_1 modelcoëfficiënten en e_t het modelresidu voor tijdstip t . De modelcoëfficiënten worden geschat met de historische meetwaarden van beide parameters die beschikbaar zijn voor hetzelfde tijdstip (de gepaarde

meetwaarden). Vervolgens kunnen we dan met een nieuwe meetwaarde van X (x_k) de daarbij behorende meetwaarde van Y (y_k) voorspellen, volgens:

$$\hat{y}_k = b_0 + b_1 \cdot x_k$$

Deze voorspelling geeft de verwachte meetwaarde van Y , gegeven de meetwaarde van X (x_k), maar houdt nog geen rekening met de modelresiduen. Als we er echter van uit kunnen gaan dat:

- (1) de modelresiduen afkomstig zijn uit een normale kansverdeling,
 - (2) de modelresiduen geen autocorrelatie vertonen en
 - (3) de bemonsterings- en meetfout van X verwaarloosbaar is ten opzichte van die van Y ,
- dan kunnen we de bovengrens van het $100\% \cdot (1-\alpha)$ -voorspelinterval berekenen van de meetwaarde van Y , gegeven de meetwaarde x_k , volgens:

$$\text{bovengrens } VI_{(1-\alpha)} = \hat{y}_k + t_{(1-\alpha, n-2)} \cdot s_e \cdot \sqrt{1 + \frac{1}{n} + \frac{(x_k - \bar{x})^2}{\sum_{t=1}^n (x_t - \bar{x})^2}}$$

met $t_{(1-\alpha, n-2)}$ het $100 \cdot (1-\alpha)$ -percentiel van de Student-t-verdeling bij $n-2$ vrijheidsgraden, n het aantal gepaarde meetwaarden van X en Y waarmee het lineaire regressiemodel is geschat, \bar{x} het gemiddelde van X over die n meetwaarden en s_e de standaardafwijking van de modelresiduen.

Als de modelresiduen wél autocorrelatie vertonen, zal s_e geen zuivere schatting vormen van de standaardafwijking van de modelresiduen. Als de autocorrelatie niet te groot is, kan daarvoor als volgt worden gecorrigeerd:

$$s_e^* = \sqrt{\frac{s_e^2}{1 - \frac{2}{n \cdot n - 1} \cdot \sum_{l=1}^{n-1} ((n-l) \cdot \rho_l)}}$$

met ρ_l de autocorrelatiecoëfficiënt van de modelresiduen voor tijdsinterval l .

Als de modelresiduen *niet* afkomstig zijn uit een normale kansverdeling, maar geen autocorrelatie vertonen en de bemonsterings- en meetfout van X verwaarloosbaar is ten opzichte van die van Y , dan kunnen we de bovengrens van het $100\% \cdot (1-\alpha)$ -voorspelinterval berekenen van de meetwaarde van Y , gegeven de meetwaarde x_k , volgens [Helsel and Hirsch, 1992]:

$$\text{bovengrens } VI_{(1-\alpha)} = \hat{y}_k + e_{(1-\alpha) \cdot (n+1)}$$

met $e_{(1-\alpha) \cdot (n+1)}$ het modelresidu dat zich na rangschikking van klein naar groot op de positie $(1-\alpha) \cdot (n+1)$ bevindt, of, als $(1-\alpha) \cdot (n+1)$ geen geheel getal is, de waarde die ontstaat door lineaire interpolatie tussen de twee naastliggende modelresiduen. Als deze modelresiduen wél autocorrelatie vertonen, dient het voorspelinterval alleen te worden vastgesteld met de onafhankelijke modelresiduen. Dit houdt in dat eerst moet worden vastgesteld vanaf welk meetinterval kan worden uitgegaan van onafhankelijke modelresiduen en dat vervolgens modelresiduen moeten worden weggelaten bij het berekenen van het interval (hierdoor verandert ook n , het aantal gehanteerde waarden). Het is aan te bevelen een procedure hiervoor op te stellen, opdat hierbij een uniforme aanpak wordt gehanteerd.

Bij lozingsparameters zal doorgaans niet worden voldaan aan de derde van de drie bovengenoemde randvoorwaarden, doordat voor de meeste parameters bemonsterings- en meetfouten onvermijdelijk zijn. De betrouwbaarheid van het berekende voorspelinterval kan daardoor afwijken van de bedoelde betrouwbaarheid, waardoor het voorspelmodel niet geschikt is als een *volle-dige* vervanging van het meten van de betreffende parameter. Wij stellen derhalve het volgende gebruik van het voorspelmodel voor:

- (1) als de bovengrens van het 95%-voorspelinterval van de meetwaarde van parameter Y onder de lozingseis blijft, gaan we er van uit dat er geen overschrijding plaatsvindt;

- (2) als de bovengrens van het 95%-voorspelinterval van de meetwaarde van parameter Y meer is dan de lozingseis, dient deze parameter alsnog te worden geanalyseerd in het betreffende monster. Dit houdt in dat het monster dus enige tijd stand-by moet blijven.

Aanpak is ook toe te passen voor gemiddelden

Behalve voor meetwaarden, kan deze aanpak ook worden gehanteerd voor het gemiddelde van een aantal meetwaarden van Y . Daartoe dient het lineaire regressiemodel te worden afgeleid tussen het gemiddelde van een aantal meetwaarden van Y en het gemiddelde van een aantal meetwaarden van X .

4.3 Criterium voor de relatie tussen twee parameters

De bovenbeschreven aanpak kan in principe ook worden gehanteerd als de relatie tussen X en Y gering is, zij het dat het 95%-voorspelinterval van de meetwaarde van Y , gegeven een meetwaarde van X , dan vermoedelijk in zeer veel gevallen meer zal zijn dan de lozingseis en Y dan tóch vaak gemeten moet worden. Het voorspellen levert dan weinig voordeel, of zelfs een nadeel op (er zijn immers extra werkzaamheden nodig), ten opzichte van de situatie waarbij beide parameters worden gemeten.

De correlatiecoëfficiënt (Pearson of Spearman) kan dienen om een eerste selectie te maken van parameters die gerelateerd zijn. Daarbij kan bijvoorbeeld als criterium worden gehanteerd dat de correlatiecoëfficiënt tussen twee parameters minstens 0,50 moet zijn om een nader onderzoek naar het vervangen van één van beide te rechtvaardigen. Vervolgens dient het lineaire regressiemodel tussen beide parameters te worden afgeleid, inclusief de bovengrens van het 95%-voorspelinterval. De parameter die met de minste inspanning (kosten) kan worden gemeten is hierbij X . We kunnen bijvoorbeeld als criterium hanteren dat het zinvol is om de relatie te benutten – en parameter Y dus niet meer te meten – als het bereik van historische X -waarden waarvoor de bovengrens van het 95%-voorspelinterval van Y boven de lozingseis uitkomt, hooguit 75% is van het totale bereik van historische X -waarden. Dit betekent dat dan voor minstens 25% van de nieuwe metingen van parameter X de meting van parameter Y kan vervallen.

4.4 Samenvatting van het benutten van relaties tussen parameters

Als twee parameters een voldoende sterke relatie vertonen, kan dit worden gebruikt om de meetinspanning te verminderen. De relatie dient daartoe te worden uitgedrukt in een lineair regressiemodel en de daaruit volgende bovengrens van het interval dat met 95% betrouwbaarheid de meetwaarde van de ene parameter (Y) zal bevatten, gegeven de meetwaarde van de andere parameter (X). De berekening van de bovengrens dient rekening te houden met de kansverdeling en de autocorrelatie van de modelresiduën. Als voor een nieuwe meetwaarde van X de bovengrens onder de lozingseis voor Y blijft, gaan we er van uit dat er geen overschrijding plaatsvindt, anders dient Y alsnog te worden geanalyseerd in het betreffende monster. Een eerste selectie van gerelateerde parameters kan worden uitgevoerd aan de hand van correlatiecoëfficiënten. Vervolgens dient te worden vastgesteld of de bovengrens niet te vaak boven de lozingseis uitkomt.

5 Formuleren lozingseisen voor vrachten

Als we beschikken over een meetwaarde van de concentratie van een bepaalde parameter op dag i (x_i , in gewicht per volume) en een meetwaarde van het geloosde debiet op die dag (Q_i , in volume per dag), dan berekenen we de geloosde vracht van die dag (L_i , in gewicht per dag) als:

$$L_i = x_i \cdot Q_i$$

Voor het formuleren van naleefbare lozingseisen voor momentane vrachten en voor gemiddelde vrachten over een korte periode – zoals een week, of een maand – kan in principe dezelfde aanpak worden gehanteerd als beschreven voor concentraties in de voorgaande hoofdstukken, namelijk voortborduren op het inzicht in de kansverdeling van de meetwaarden onder gebruikelijke, beheerste procesvoering. Maar deze aanpak is niet geschikt voor jaarvrachten, doordat er doorgaans te weinig historische jaarvrachten beschikbaar zijn om iets over hun kansverdeling te kunnen zeggen. Dit hoofdstuk beschrijft eerst een tweetal methoden die het meest geschikt zijn om jaarvrachten te berekenen § 5.1 en bespreekt dan de mogelijkheden voor het formuleren van lozingseisen voor jaarvrachten (§ 5.2). Dit hoofdstuk sluit af met een korte samenvatting (§ 5.3).

5.1 Schatten van jaarvracht

Er zijn verschillende methoden beschikbaar om een jaarvracht te schatten uit steekproeven van de concentratie en het debiet in dat betreffende jaar. Bij een uitvoerig simulatieonderzoek zijn de nauwkeurigheden van deze methoden vergeleken, uitgaande van meetreeksen van kwaliteitsparameters en debieten van Rijn en Maas [Klavers et al., 1992]. Daarbij bleken de volgende twee methoden het meest nauwkeurig: (1) de directe methode en (2) de gewogen concentratiemethode.

Ad (1) directe methode

$$L = K \cdot \left(\sum_{i=1}^n (x_i \cdot Q_i) \right) \cdot \frac{N}{n}$$

met L de jaarvracht (kg/jaar), K een conversiefactor (voor omrekening van de eenheden), x_i de concentratie op dag i (mg/l of $\mu\text{g/l}$), Q_i het daggemiddelde debiet op dag i (m^3/s), N het aantal lozingsdagen in dat jaar en n het aantal gepaarde meetwaarden van concentratie en debiet.

Ad (2) gewogen concentratiemethode

$$L = K \cdot \left(\frac{\sum_{i=1}^n (x_i \cdot Q_i)}{\sum_{i=1}^n Q_i} \right) \cdot \left(\frac{\sum_{j=1}^m Q_j}{m} \right) \cdot N$$

met Q_j het daggemiddelde debiet op dag j (m^3/s) en m het aantal daggemiddelde debieten (voor de overige termen zie boven).

Als er alleen gepaarde meetwaarden beschikbaar zijn van concentratie en debiet ($n = m$), dan leveren beide methoden hetzelfde resultaat. En als bovendien de concentratie is gemeten met dagverzamelmonsters en er voor elke lozingsdag meetwaarden van concentratie en debiet beschikbaar zijn ($n = m = N$), dan wordt de jaarvracht met beide methoden *in principe* praktisch foutloos geschat. De steekproeffout bedraagt dan namelijk 0, zodat alleen de bemonsterings- en meetfouten overblijven. Als daar geen uitschieters bijzitten en de bemonsterings- en meetmethoden geen systematische fouten vertonen, worden deze fouten door het grote aantal meetwaarden echter sterk uitgemiddeld, tot praktisch nul.

5.2 Mogelijkheden voor wat betreft lozingseisen voor jaarvrachten

In de meeste gevallen zullen er slechts 1 of 2 historische jaarvrachten beschikbaar zijn, wat natuurlijk onvoldoende is om de kenmerken van de kansverdeling van de jaarvrachten vast te kunnen stellen. Het is dan dus niet mogelijk om een naleefbare lozingseis voor jaarvrachten op te stellen.

Om toch tot een soort lozingseis te kunnen komen, verdient het aanbeveling te onderzoeken of er per bedrijf (of soort bedrijf) een 'haalbare jaarvracht' kan worden afgeleid, op basis van de haalbare effluentconcentratie en een raming van het jaardebiet of het verloop van het debiet over het jaar volgens de stand der techniek (het 'haalbare debiet'). Om de haalbare vracht te berekenen dienen vervolgens de twee geraamde grootheden – haalbare concentratie en haalbaar debiet – op een gepaste wijze te worden vermenigvuldigd, afhankelijk van de tijdseenheden waarop ze betrekking hebben, om de haalbare vracht te berekenen.

5.3 Samenvatting van lozingseisen voor vrachten

Voor het formuleren van naleefbare lozingseisen voor momentane vrachten en voor gemiddelde vrachten over een korte periode, kan in principe dezelfde aanpak worden gehanteerd als voor concentraties, namelijk voortborduren op het inzicht in de kansverdeling van de meetwaarden onder gebruikelijke, beheerste procesvoering. Voor jaarvrachten is deze aanpak echter niet geschikt, doordat er doorgaans te weinig historische jaarvrachten beschikbaar zijn. Om toch tot een soort lozingseis te kunnen komen, moet worden onderzocht of er een 'haalbare jaarvracht' kan worden afgeleid uit de haalbare effluentconcentratie en een haalbaar debiet.

De nauwkeurigste methoden om jaarvrachten te schatten zijn de directe methode en de gewogen concentratiemethode.

6 Signaleren en behandelen van uitschieters

Uitschieters zijn meetwaarden die duidelijk afwijken van de andere meetwaarden uit dezelfde steekproef. Ze kunnen veroorzaakt zijn door:

- (1) uitzonderlijke bemonsterings- of meetfouten en/of transcriptiefouten;
- (2) een onbeheerste situatie;
- (3) een uitzonderlijk geval van de gebruikelijke, beheerste situatie.

Voor onze toepassing is het van belang dat meetwaarden veroorzaakt door uitzonderlijke fouten of onbeheerste situaties verwijderd worden, maar als ze een uitzonderlijk geval van een beheerste situatie vertegenwoordigen moeten ze niet worden verwijderd. Het is dus zaak dat de beslissing om een uitschieter te verwijderen wordt gebaseerd op zijn achtergrond, anders nemen we een verkeerde spreiding aan voor de meetwaarden onder de gebruikelijke, beheerste procesvoering.

6.1 Signaleren van uitschieters

Er zijn diverse statistische toetsen beschikbaar om objectief te detecteren welke meetwaarden niet passen bij de kansverdeling waar de overige meetwaarden van de steekproef uit afkomstig zijn. Deze toetsen hebben echter als nadeel dat ze er van uitgaan dat de overige meetwaarden afkomstig zijn uit een bepaalde bekende kansverdeling, zoals in de meeste gevallen de normale kansverdeling. Dit uitgangspunt is moeilijk verifieerbaar. Een steekproef van meetwaarden uit een sterk positief scheve kansverdeling kan daardoor onterecht worden aangezien voor een steekproef uit een normale kansverdeling die één of meer uitschieters bevat. Zonder detailkennis van de lozing valt het verwijderen van uitschieters dan ook nauwelijks te objectiveren. Het opschonen van een verzameling meetwaarden kan daardoor zeer veel inspanning vergen van de beheerder, die immers bij het bedrijf veel navraag zal moeten doen naar de historische details van het lozingsproces. Het is daarom aan te bevelen het lozende bedrijf te verplichten om aan te geven welke verstrekte meetwaarden representatief zijn voor de gebruikelijke, beheerste procesvoering. Meetwaarden die fout zijn, of die zijn verkregen tijdens ongewone voorvallen moeten dus door het bedrijf worden gemarkeerd. En voor elke nog resterende uitschieter is het raadzaam het bedrijf te verplichten aan te tonen of te beargumenteren dat deze wél representatief is voor de gebruikelijke, beheerste procesvoering. Voor deze discussie is er dus wel behoefte aan een door beide partijen gedragen methode om uitschieters te signaleren. Een geschikte methode daarvoor is de reeks van meetwaarden (x_1, x_2, \dots, x_n) om te zetten tot een reeks van gestudentiseerde afwijkingen (d_1, d_2, \dots, d_n) , volgens:

$$d_i = \frac{x_i - \bar{x}_{(-i)}}{s_{(-i)}}$$

met $\bar{x}_{(-i)}$ en $s_{(-i)}$ het geschatte gemiddelde respectievelijk de geschatte standaardafwijking van het proces dat de meetwaarden heeft gegenereerd, *uitgezonderd* de betreffende meetwaarde x_i . Het uitsluiten van de betreffende meetwaarde bij het berekenen van het gemiddelde en de standaardafwijking voorkomt dat deze kengetallen zodanig worden beïnvloed dat een uitschieter wordt gemaskeerd. Elke gestudentiseerde afwijking die groter is dan +3 of kleiner dan -3 kunnen we een uitschieter noemen. Als een uitschieter door een uitzonderlijke fout of een onbeheerste situatie is veroorzaakt, dient deze te worden verwijderd en dient de gehele procedure te worden herhaald (de kengetallen veranderen dan immers). Deze aanpak levert een groot onderscheidend vermogen en door het nader onderzoek naar de achtergrond van uitschieters zal het risico op het onterecht verwijderen van een uitschieter zeer beperkt blijven.

6.2 Samenvatting van het signaleren en behandelen van uitschieters

Het opschonen van een meetreeks vergt detailkennis van de lozing en het is derhalve raadzaam dit te laten uitvoeren door het lozende bedrijf. Evenzo is het raadzaam om het bedrijf voor verstrekte uitschieters te laten aantonen of beargumenteren dat deze representatief zijn voor de normale

beheerste procesvoering. Een meetwaarde kan worden beschouwd als uitschieter, als zijn absolute gestudentiseerde afwijking groter is dan 3.

7 Omgaan met gecensureerde meetwaarden

Het is niet ongebruikelijk dat een meetreeks ook waarden bevat die zijn aangeduid als een '<' -teken, gevolgd door een bepaalde concentratie, die staat voor de rapportagegrens. Dit noemt men ook wel 'gecensureerde' waarden. Dergelijke niet-kwantitatieve gegevens vormen uiteraard een probleem bij de statistische analyse van de meetreeks. In dit hoofdstuk wordt aangegeven hoe daar mee kan worden omgegaan. Daartoe wordt eerst de beste oplossing aangedragen, namelijk het opheffen van de censuur (§ 7.1). Maar voor de gevallen dat de ongecensureerde waarden niet (meer) beschikbaar zijn, worden tevens sub-optimale oplossingen aangedragen, met onderscheid tussen verschillende situaties (§ 7.2 t/m § 7.4). Dit hoofdstuk sluit af met een korte samenvatting (§ 7.5).

7.1 Beste oplossing: hef de censuur door het laboratorium op

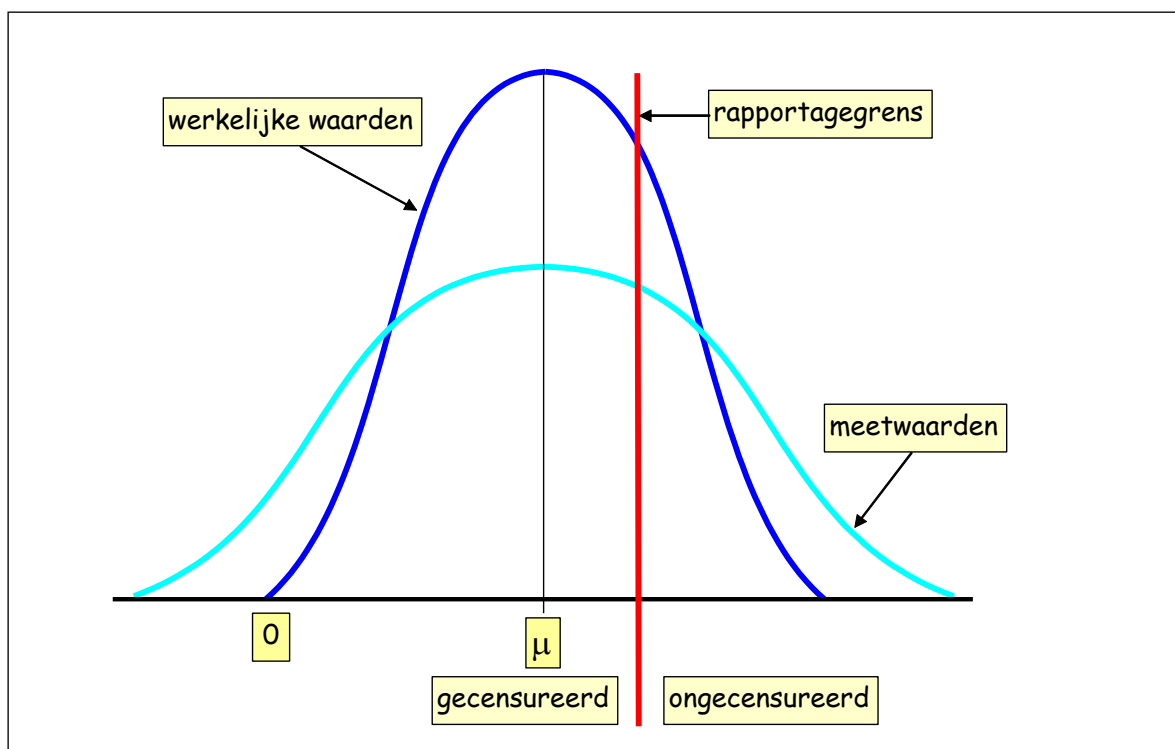
De beste oplossing voor het gestelde probleem is het betreffende laboratorium te verzoeken om van elke gecensureerde waarde de ongecensureerde meetwaarde te verstrekken. Bij veel parameters worden er namelijk wel degelijk waarden gemeten onder de rapportagegrens. En het is altijd beter om *alle* gemeten waarden te gebruiken voor statistische analyse, dus zowel de meetwaarden *bóven* als de meetwaarden *ónder* de rapportagegrens, zelfs als daar negatieve meetwaarden bij zitten. Deze aanbeveling is al vele malen eerder gedaan (zie bijvoorbeeld [EPA, 1980; ASTM, 1984; Gilliom et al., 1984; Gilbert, 1987; Porter et al., 1988 en Ward et al., 1990]), maar helaas zijn er nog steeds veel laboratoria die meetwaarden onder de rapportagegrens alleen gecensureerd verstrekken. Dit is gebaseerd op de hardnekkige misvatting dat meetwaarden onder deze grens een *té* grote meetfout zouden bevatten om nog gebruikt te kunnen worden. De *relatieve* meetfout is inderdaad meestal vrij groot op dat niveau, maar voor de statistische analyse telt alleen de kansverdeling van de meetfout en die wijkt in principe niet af van die van meetwaarden boven de rapportagegrens.

Het nut van het opheffen van de censuur kunnen we toelichten aan de hand van figuur 7.1. Deze toont twee kansverdelingen, namelijk: (1) die van de werkelijke waarden – hier alle zeer laag - van een bepaald verschijnsel en (2) die van alle mogelijke meetwaarden van het verschijnsel. Door het optreden van meetfouten is de kansverdeling van de meetwaarden breder dan die van de werkelijke waarden. En doordat de werkelijke waarden zeer laag zijn, kunnen er door meetfouten zelfs negatieve meetwaarden voorkomen. Maar als er geen censuur zou zijn, zouden we het gemiddelde van het verschijnsel (μ) zelfs met een beperkt aantal aselekt genomen monsters van het verschijnsel nog wel degelijk goed kunnen schatten uit de meetwaarden. De censuur door het laboratorium zal echter alle informatie onder de rapportagegrens tegenhouden, wat een onnodige barrière opwerpt voor het schatten van het gemiddelde.

Een overtuigend bewijs van de schade die laboratorium-censuur toebrengt aan de mogelijkheid om trends te detecteren is ook geleverd door [Gilliom et al, 1984], met een uitvoerig simulatieonderzoek. En [Ward et al. ,1990] beschrijven een praktijkvoorbeeld, waar een trend enkele jaren eerder kon worden gedetecteerd door de laboratorium-censuur op te heffen.

Het opheffen van de censuur biedt dus zondermeer de beste oplossing als onze steekproef gecensureerde waarden bevat, niet alleen doordat het de toepassing van statistische standaardmethoden mogelijk maakt, maar - wat nog veel belangrijker is - doordat het leidt tot kengetallen en conclusies die statistisch gezien preciezer en krachtiger zijn dan bij gebruik van één of andere benaderingsmethode.

Figuur 7.1: Voorbeeld van de schade die censuur toebrengt aan de informatie over een bepaald verschijnsel.



7.2 Suboptimale oplossingen voor omgang met gecensureerde waarden

Als het opheffen van de laboratorium-censuur niet (meer) mogelijk is, dienen we een benaderingsmethode te hanteren bij onze statistische analyse. Welke methode daarvoor het meest geschikt is hangt af van het soort statistische analyse. We maken daarbij onderscheid tussen:

- (1) analyses waarvoor elke gecensureerde waarde afzonderlijk moet zijn vervangen door een zo goed mogelijke benadering van deze waarde. Omdat we geen onderscheid kunnen maken tussen de gecensureerde waarden, komt dit er op neer dat elke gecensureerde waarde wordt vervangen door *dezelfde* vervangwaarde. Voorbeelden van dergelijke analyses zijn het vaststellen van autocorrelatie in een meetreeks en het vaststellen van relaties tussen parameters;
- (2) analyses waarvoor de gehele groep gecensureerde waarden moet zijn vervangen door een groep waarden met zoveel mogelijk dezelfde relevante kenmerken, zoals gemiddelde en spreiding. Het vervangen van elke gecensureerde waarde afzonderlijk door een zo goed mogelijke benadering van die waarde is daarbij niet nodig en zelfs af te raden, doordat de spreiding dan zal worden onderschat (voor elke gecensureerde waarde zal namelijk dezelfde vervangwaarde worden gehanteerd). Voorbeelden van dergelijke analyses zijn het schatten van kengetallen, zoals gemiddelde en standaardafwijking, het vaststellen van het soort kansverdeling, het vaststellen van seizoensmatigheid en het toetsen aan lozingseisen.

Overigens moeten we er, ongeacht de gehanteerde benaderingsmethode, rekening mee houden dat bij hoge percentages gecensureerde waarden (> 50%), de betrouwbaarheid van de statistische analyse zeer gering kan zijn.

7.3 Vervangen van afzonderlijke gecensureerde waarden

Als voor de statistische analyse elke gecensureerde waarde afzonderlijk moet zijn vervangen door een zo goed mogelijke benadering van deze waarde, kunnen we één van de volgende methoden hanteren:

- (1) vervangen van elke gecensureerde waarde door de helft van de analysegrens;
- (2) vervangen van elke gecensureerde waarde door de vervangwaarde zoals berekend met de DG90-methode (zie § 7.4).

De eerste methode is het meest bekend en wordt ook het meest toegepast. De tweede methode vergt meer rekenwerk, maar levert vermoedelijk betere benaderingen op.

7.4 Vervangen van een groep gecensureerde waarden

Als voor de statistische analyse de gehele groep gecensureerde waarden moet zijn vervangen door een groep waarden met zoveel mogelijk dezelfde relevante kenmerken, zoals gemiddelde en spreiding, dan komt vooral de 'log-waarschijnlijkheids-regressiemethode' in aanmerking (§ 7.4.1). Een minder complexe benaderingsmethode, die qua prestaties echter weinig onderdoet voor de log-waarschijnlijkheids-regressiemethode, is de methode van de uniforme verdeling (§ 7.4.2). En als het er alleen om gaat centrummaten te schatten, zoals het gemiddelde of de mediaan, dan kan de DG90-methode worden aanbevolen (§ 7.4.3).

7.4.1 Log-waarschijnlijkheids-regressiemethode

Als we kenmerken willen schatten van de kansverdeling waar een aantal meetwaarden, waaronder ook gecensureerde waarden, uit afkomstig is, dan is de zogenaamde 'log-waarschijnlijkheids-regressiemethode' aan te bevelen. Deze heeft namelijk zowel bij simulatieonderzoek als bij praktijkonderzoek voor vele soorten waterkwaliteitsgegevens betrouwbare resultaten opgeleverd [Gilliom and Helsel, 1986; Helsel and Gilliom, 1986]. De methode kwam daarbij als beste uit de bus, vergeleken met een zevental andere benaderingsmethoden.

De log-waarschijnlijkheids-regressiemethode komt er op neer dat de gecensureerde waarden worden vervangen door waarden die afkomstig zijn uit een lognormale kansverdeling, waarvan de karakteristieken zijn afgeleid met lineaire regressie van de logaritmes van de ongecensureerde meetwaarden op hun normaalscores (z-scores). Daartoe moeten de volgende stappen worden uitgevoerd:

- (1) rangschik de steekproef van n waarden van klein naar groot, waarbij dus een aantal (c) gecensureerde waarden vooraan staat, gevolgd door een aantal (u) ongecensureerde waarden ($n=c+u$). Dit geeft de op grootte gerangschikte meetreeks $x_{[1]}, x_{[2]}, \dots, x_{[c]}, x_{[c+1]}, x_{[c+2]}, \dots, x_{[n]}$;
- (2) bereken de plotpositie (p_r) voor elke waarde, volgens:

$$p_r = \frac{r}{n+1}$$

met r het rangnummer van de betreffende waarde ($r=1,2, \dots, n$). Deze plotpositie is een schatting van de kans op een meetwaarde kleiner dan of gelijk aan $x_{[r]}$;

- (3) bereken voor elke waarde de normaalscore (z_r), volgens:

$$z_r = \Phi^{-1}[p_r]$$

met Φ^{-1} de inverse cumulatieve standaardnormale verdeling. In MS-Excel is deze normaalscore te berekenen als $z_r = \text{NORMSINV}(p_r)$;

- (4) schat het lineaire regressiemodel dat de relatie beschrijft tussen de logaritmes van de u ongecensureerde waarden ($x_{[c+1]}, x_{[c+2]}, \dots, x_{[n]}$) en hun normaalscores:

$$\ln[x_{[r]}] = b_0 + b_1 \cdot z_r + e_r$$

met b_0 het geschatte intercept, b_1 de geschatte helling en e het modelresidu;

- (5) extrapoleer dit model om de logaritmes van de c gecensureerde waarden ($x_{[1]}, x_{[2]}, \dots, x_{[c]}$) te schatten:

$$\ln[\hat{x}_{[r]}] = b_0 + b_1 \cdot z_r$$

- (6) schat nu de vervangende, kwantitatieve waarden voor de gecensureerde waarden in de meetschaal, door terug te transformeren:

$$\hat{x}_{[r]} = e^{\ln[\hat{x}_{[r]}]}$$

Het is mogelijk dat een vervangende waarde boven de rapportagegrens uitkomt, in welk geval deze gelijk moet worden gesteld aan de rapportagegrens [Gibbons, 1994];

- (7) doordat alle gecensureerde waarden nu zijn ingevuld, kan de gebruikelijke statistische standaardmethode worden gehanteerd om kenmerken van de kansverdeling vast te stellen, zoals het gemiddelde of de standaardafwijking.

7.4.2 Methode van de uniforme verdeling

Een minder complexe methode waarmee we kenmerken kunnen vaststellen van een kansverdeling waaruit een aantal meetwaarden, waaronder ook gecensureerde waarden, afkomstig is, is de methode van de uniforme verdeling. Deze gaat er van uit dat de gecensureerde waarden een uniforme verdeling vormen tussen nul en de rapportagegrens. Als er c gecensureerde waarden zijn ($x_{[1]}, x_{[2]}, \dots, x_{[c]}$), wordt de vervangwaarde van elke gecensureerde waarde afzonderlijk berekend als:

$$\hat{x}_{[r]} = \frac{rg \cdot (r-1)}{c-1} \quad \text{voor } r = 1, 2, \dots, c$$

met rg de rapportagegrens. De resulterende vervangwaarden zijn symmetrisch ten opzichte van de helft van de rapportagegrens.

Voorbeeld

Als er 4 gecensureerde waarden zijn en de rapportagegrens bedraagt 1 $\mu\text{g/l}$, dan bedragen de vier vervangwaarden respectievelijk 0, 0,33, 0,66 en 1 $\mu\text{g/l}$.

Waar het gaat om het schatten van het gemiddelde, mediaan of standaardafwijking in aanwezigheid van gecensureerde waarden, bleek deze methode slechts weinig onder te doen voor de genoemde log-waarschijnlijkheids-regressiemethode [Gilliom and Helsel, 1986; Helsel and Gilliom, 1986]. De methode van de uniforme verdeling is echter veel eenvoudiger toe te passen en we mogen deze dus kwalificeren als 'quick and not so dirty'.

7.4.3 Alleen voor schatten gemiddelde of mediaan: DG90-methode

Recent is in opdracht van RIKZ en RIZA een onderzoek uitgevoerd naar het verwerken van gecensureerde waarden bij het berekenen van een jaargemiddelde, een jaarmediaan, of een jaarvracht [Swaving en De Vries, 2000]. Daarbij zijn vijf methoden vergeleken, waaronder ook de bekendste, namelijk het vervangen van elke gecensureerde waarde door de helft van de rapportagegrens. Het onderzoek is uitgevoerd aan de hand van simulaties met verzamelingen meetwaarden van concentraties en debieten uit de praktijk van RIKZ en RIZA. Deze verzamelingen zijn op verschillende concentratieniveaus gecensureerd, om vervolgens de prestaties van de verschillende methoden objectief vast te kunnen stellen. Ook hierbij kwam, net als bij de eerder aangehaalde onderzoeken [Gilliom and Helsel, 1986; Helsel and Gilliom, 1986] de log-waarschijnlijkheids-regressiemethode als beste uit de bus. Vanwege zijn complexiteit (zie § 7.4.1) hebben de onderzoekers echter een benadering van deze methode ontwikkeld, die veel eenvoudiger kan worden toegepast, de zogenaamde 'DG90'-methode⁴.

Om een jaargemiddelde concentratie of een jaarvracht te kunnen schatten vervangt de DG90-methode elke gecensureerde waarde door een waarde, die afhangt van de verdeling van de meetwaarden. Deze vervangwaarde (x_v) is namelijk gebaseerd op de fractie meetwaarden onder de rapportagegrens (f) en op de inverse van de breedte van de verdeling, uitgedrukt als de ratio van de rapportagegrens (rg) en het geschatte 90-percentiel ($\hat{x}_{0,90}$) van het proces, volgens:

$$x_v = rg \cdot \left(\frac{rg}{\hat{x}_{0,90}} \right)^f \quad \text{voor } f \leq 0.5 \quad \text{en} \quad x_v = rg \cdot \left(\frac{rg}{\hat{x}_{0,90}} \right)^{-1,6+4,2 \cdot f} \quad \text{voor } f \geq 0.5$$

⁴ 'DG' staat hierbij voor detectiegrens. In dit rapport verkiezen wij echter de ruimere aanduiding 'rapportagegrens'. Deze omvat namelijk alle soorten grenzen waaronder gecensureerd wordt.

Na het vervangen van alle gecensureerde waarden door x_v kan de jaargemiddelde concentratie of jaarvrucht vervolgens op de gebruikelijke wijze worden berekend. Het 90-percentiel wordt hierbij overigens geschat als:

$$\hat{x}_{0,90} = x_{(0,9 \cdot n + 0,1)}$$

zijnde de meetwaarde met index $0,9 \cdot n + 0,1$ als we alle meetwaarden (gecensureerd en ongecensureerd) van klein naar groot hebben gerangschikt (n is hierbij het aantal meetwaarden). Als de berekende index $0,9 \cdot n + 0,1$ geen geheel getal is, wordt lineair geïnterpoleerd tussen de twee naastliggende meetwaarden.

Voor het schatten van een jaarmediaan van de concentratie ($x_{0,50}$) is er geen aanpassing nodig als f , de fractie meetwaarden onder de rapportagegrens kleiner is dan 0,5. De mediaan kan dan namelijk op de gebruikelijke wijze worden geschat. Als f exact 0,5 is, dan is de rapportagegrens de schatting van de mediaan. En in de andere gevallen wordt de mediaan direct geschat volgens:

$$\hat{x}_{0,50} = rg \cdot \left(\frac{rg}{\hat{x}_{90}} \right)^{-2,1+4,2 \cdot f} \quad \text{voor } f > 0,5$$

Uit bovenstaande formules valt af te leiden dat naarmate de verdeling breder is en daarmee de verhouding tussen de rapportagegrens het 90-percentiel kleiner is, de berekende waarde dichter bij nul zal liggen. Als de meetwaarden daarentegen dichter bij elkaar liggen (de verhouding tussen de rapportagegrens en het 90-percentiel is dan groter), zal de berekende waarde dichter bij de rapportagegrens liggen.

Doordat bij de DG90-methode alle gecensureerde waarden worden vervangen door dezelfde vervangwaarde, is deze methode niet geschikt om andere kenmerken van de kansverdeling vast te stellen dan de centrummaten (gemiddelde en mediaan).

7.5 Samenvatting van het omgaan met gecensureerde waarden

Als de statistische analyse van een meetreeks wordt belemmerd door gecensureerde waarden, is de beste oplossing om het laboratorium te vragen alsnog de ongecensureerde meetwaarden te verstrekken. Als dat niet mogelijk is, dient een benaderingsmethode te worden gehanteerd die aansluit op het soort statistische analyse. In dit hoofdstuk worden enkele geschikte methoden gepresenteerd. Voor het vaststellen van autocorrelatie in een meetreeks en het vaststellen van relaties tussen parameters kunnen de gecensureerde waarden het best worden vervangen met de DG90-methode. Voor andere statistische analyses komt de log-waarschijnlijkheids-regressiemethode het meest in aanmerking.

8 Hoe verder?

Dit rapport beschrijft nog slechts de *mogelijkheden* die de statistiek kan bieden om te komen tot eenduidige, zo mogelijk uniforme, handhaafbare en naleefbare lozingseisen. Uiteindelijk zal er echter een uitgewerkte en - bij voorkeur - gebruiksvriendelijke softwarematige procedure moeten komen voor het opstellen van het gewenste soort lozingseisen. Daartoe moeten nog de volgende stappen worden gezet:

1. besluiten welke meetinformatie over de lozing het bedrijf bij de vergunningsaanvraag *minimaal* dient te overleggen (periode, aantal meetwaarden). Hierbij zo mogelijk onderscheid maken tussen een proces mét en een proces zónder autocorrelatie (in het eerste geval zal namelijk informatie over een langere periode gewenst zijn);
2. besluiten welke criteria er moeten worden gehanteerd om vast te stellen of een bedrijf afdoende heeft aangetoond of beargumenteerd dat een verstrekte uitschieter nog de gebruikelijke, beheerste procesvoering vertegenwoordigt;
3. besluiten hoe om te gaan met een situatie waarbij er té weinig meetinformatie beschikbaar is;
4. besluiten welke criteria er moeten worden gehanteerd om vast te stellen of er sprake is van niet-normaliteit, autocorrelatie of seizoenseffecten (dit kunnen zijn ‘zachte’ criteria, op basis van een visuele beoordeling van een grafiek, of ‘hardere’ criteria, op basis van statistische toetsen);
5. besluiten wanneer differentiëren is geboden;
6. besluiten hoe om te gaan met een seizoensmatig lozingspatroon, zowel voor wat betreft het vaststellen van niet-normaliteit en autocorrelatie (dit laatste kan complex worden als het korte seizoenen betreft), als voor wat betreft het opstellen van lozingseisen;
7. besluiten of lozingseisen voor gemiddeld gedrag moeten worden gebaseerd op het gemiddelde over een aantal monsters (en zo ja, over welk aantal), op het exponentieel gewogen voortschrijdend gemiddelde, of over beide;
8. besluiten welke betrouwbaarheid ($1-\alpha$) en dekkingsgraad (γ) moeten worden gehanteerd voor een tolerantielimiet die als lozingseis moet fungeren;
9. besluiten welke criteria moeten worden gehanteerd voor het benutten van relaties tussen parameters;
10. nagaan of er een ‘haalbare lozingseis’ voor jaarvrachten kan worden afgeleid;
11. opstellen van een procedure voor het omgaan met gecensureerde waarden;
12. besluiten hoe in de handhavingsfase moet worden omgegaan met kort op elkaar volgende overschrijdingen in geval van een proces met autocorrelatie;
13. vervaardigen van gebruiksvriendelijke software ter ondersteuning van de procedure;
14. testen van de software op een breed scala aan praktijkgevallen. Zonodig software aanpassen;
15. vervaardigen van gebruiksaanwijzing van de software;
16. software (en gebruiksaanwijzing) laten uitproberen door een aantal leden van de beoogde doelgroep. Reacties verzamelen en zonodig software en gebruiksaanwijzing aanpassen;
17. introduceren van software en gebruiksaanwijzing bij de beoogde doelgroep door middel van workshop(s);
18. beheren van software, instellen van helpdesk en verzorgen van updates.

Literatuurverwijzingen

ASTM (1984): "Annual Book of ASTM Standards Section 11, Water and Environmental Technology". Vol. 11.01. Designation D4210-83, pp. 7 - 15. American Society for Testing and Materials.

Barnett, V. and O' Hagan, A. (1997): "Setting environmental standards: the statistical approach to handling uncertainty and variation". Chapman and Hall, London.

Bayley, G.V. and Hammersley, J.M. (1946): "The effective number of independent observations in an autocorrelated time series". Journal of the Royal Statistical Society, 8(1B), 1946, pp. 184 – 197.

Box, G.E.P. and Jenkins, G.M. (1976): "Time Series Analysis: Forecasting and Control". Holden-Day, San Francisco.

Bradley, J.V. (1968): "Distribution-Free Statistical Tests". Prentice-Hall, Englewood Cliffs.

Brockwell, P.J. and Davis, R.A. (1986): "Time Series: Theory and Methods". Springer, Berlin.

Conover, W.L. (1980): "Practical Nonparametric Statistics". John Wiley and Sons, New York, 493 pp.

Dodge, H.F. (1977): "Keep it Simple". Journal of Quality Technology, 9, 3, pp. 102 (1977).

EPA (1980): "Upgrading Environmental Radiation Data". EPA 520/1-80-012, Office of Radiation Programs, U.S. Environmental Protection Agency, Washington D.C.

Gibbons, R.D. (1994): "Statistical Methods for Groundwater Monitoring". John Wiley and Sons, New York, 286 pp.

Gilbert, R.O. (1987): "Statistical Methods for Environmental Pollution Monitoring". Van Nostrand Reinhold, New York, 320 pp.

Gilliom, R.J., Hirsch, R.M. and Gilroy, E.J. (1984): "Effect of censoring trace-level water-quality data on trend-detection capability". Environmental Science and Technology, Vol. 18, 1984, pp. 530 - 535.

Gilliom, R.J. and Helsel, D.R. (1986): "Estimation of Distributional Parameters for Censored Trace Level Water Quality Data - 1 - Estimation Techniques". Water Resources Research, Vol. 22, No. 2, February 1986, pp. 135 - 146.

Hald, A. (1952): "Statistical Theory with Engineering Applications". John Wiley & Sons, New York, 783 pp.

Helsel D.R. and Gilliom, R.J. (1986): "Estimation of Distributional Parameters for Censored Trace Level Water Quality Data - 2 - Verification and Applications". Water Resources Research, Vol. 22, No. 2, February 1986, pp. 147 - 155.

Helsel, D.R. and Cohn, T.A. (1988): "Estimation of Descriptive Statistics for Multiply Censored Water Quality Data". Water Resources Research, Vol. 24, No. 12, December 1988, pp. 1997 - 2004.

Helsel, D.R. (1990): "Less than obvious - Statistical treatment of data below the detection limit". Environmental Science and Technology, Vol. 24, No. 12, 1990, pp. 1766 - 1774.

Helsel, D.R. and Hirsch, R.M. (1992): "Statistical Methods in Water Resources". Studies in Environmental Science 49, Elsevier, Amsterdam, 522 pp.

Klavers, H.C., De Vries, A., Bekkers, L. en Van Twuiver, H. (1992): "Vrachtberekenningsmethoden voor Maas en Rijn". Rapport RIZA/DGW.

Matalas, N.C. and Langbein, W.B. (1962): "Information content of the mean". Journal of Geophys. Research, 67(9), 1962, pp. 3441 - 3448.

Montgomery, D.C. (1991): "Introduction to Statistical Quality Control". John Wiley & Sons, New York, second edition, 674 pp.

Natrella, M.G. (1963): "Experimental Statistics". NBS Handbook 91, US Department of Commerce.

Porter, P.S., Ward, R.C. and Bell, H.F. (1988): "The detection limit - water quality monitoring data are plagued with levels of chemicals that are too low to be measured precisely". Environmental Science and Technology, Vol. 22, No. 8, 1988, pp. 856 - 861.

Swaving, M. en De Vries, L. (2000): "Omgaan met waarden onder de detectiegrens". Rapport E1680-01, CQM BV, Eindhoven, 7 november 2000.

Ward, R.C., Loftis, J.C. and McBride, G.B. (1990): "Design of Water Quality Monitoring Systems". Van Nostrand Reinhold, New York, 231 pp.

Zhang, N.F. (1998): "A Statistical Control Chart for Stationary Process Data". Technometrics, February 1998, Vol. 40, No. 1, pp. 24 - 38.

Bijlage – Verklaring van een aantal statistische termen

Autocorrelatie: het verschijnsel dat opeenvolgende meetwaarden niet onafhankelijk van elkaar zijn. Als een milieuproces met een hoge frequentie wordt waargenomen treedt doorgaans positieve autocorrelatie op, wat inhoudt dat opeenvolgende meetwaarden meer op elkaar lijken dan op verder in de tijd gelegen meetwaarden. Een aantal opeenvolgende meetwaarden zal daardoor meer de kenmerken weerspiegelen van een segment van de kansverdeling waar ze uit afkomstig zijn, dan van de gehele kansverdeling. Als hier geen rekening mee wordt gehouden, zal bijvoorbeeld de standaardafwijking van die kansverdeling worden onderschat.

Autocorrelogram: een grafiek die de autocorrelatiecoëfficiënt – een maat voor de samenhang tussen meetwaarden – weergeeft als functie van het tijdsinterval tussen de meetwaarden.

Betrouwbaarheidsinterval: maat voor de precisie waarmee een bepaald kengetal, zoals een gemiddelde, of een percentiel is geschat. Zo geeft het 95%-betrouwbaarheidsinterval van een geschat percentiel het interval aan waarbinnen het werkelijke percentiel zich ‘vast wel’ zal bevinden (namelijk in 95 van de 100 gevallen).

Differentiëren: het omzetten van een reeks meetwaarden tot een reeks van de verschillen tussen opeenvolgende meetwaarden. Dit kan in sommige gevallen bewerkstelligen dat een grootschalige structuur in een meetreeks, zoals een golfbeweging, of een langetermijntrend, verdwijnt.

Percentiel: kengetal van een kansverdeling. Het P-percentiel is de waarde die door P% van de kansverdeling wordt onderschreden en door (100-P)% wordt overschreden.

Proces: alle mogelijke meetreeksen van een bepaalde lozingsparameter.

Tolerantielimiet $_{(\gamma, 1-\alpha)}$: de bovengrens van het $100\% \cdot (1-\alpha)$ -betrouwbaarheidsinterval van het geschatte $100 \cdot \gamma$ -percentiel van een kansverdeling.

Transformeren: het wiskundig omzetten van meetwaarden, zoals het nemen van de logaritme, of machtsverheffen. Als meetwaarden niet afkomstig zijn uit een normale kansverdeling, dan lukt het soms om de meetwaarden zodanig te transformeren dat de getransformeerde waarden wél afkomstig zijn uit een normale kansverdeling. Dit heeft als voordeel dat er dan scherpere kansuitspraken kunnen worden gedaan, bijvoorbeeld over toekomstige meetwaarden.

Zwak stationair proces: een proces waarvan het gemiddelde, de standaardafwijking en de autocorrelatie niet veranderen in de tijd. Hier wordt bijvoorbeeld niet aan voldaan als het proces een grootschalige structuur vertoont, zoals een golfbeweging, of een langetermijntrend.