

RIVM rapport 722601006/2002

**Ruimtelijke verdeling van ammoniak-
concentraties in Nederland gemeten met passieve
samplers**

G.J.M. Velders, A. van der Meulen, J.A. van
Jaarsveld, W.A.J. van Pul, A.L.M. Dekkers

Dit onderzoek werd verricht in opdracht en ten laste van de directie van het RIVM, in het kader van het project S/722601, Meten en Modelleren (mijlpaal Rapportage NH₃-metingen).

Abstract

To obtain a spatial distribution of the ammonia concentrations in the Netherlands measurements of ammonia have been performed on a grid of 15 x 15 km (159 locations) with passive samplers from September 2000 until September 2001. The highest ammonia concentrations represented by the grid are observed in all months in the East of Noord-Brabant and the North of Limburg with yearly average concentrations of $15 \mu\text{g m}^{-3}$. Elevated concentrations of about $10 \mu\text{g m}^{-3}$ are seen in the Gelderse Vallei, the Achterhoek and Twente and concentrations of about $7 \mu\text{g m}^{-3}$ are seen in central Overijssel and Friesland. The monthly ammonia concentrations averaged over the Netherlands varied from $4 \mu\text{g m}^{-3}$ in fall of 2000 to $9.6 \mu\text{g m}^{-3}$ in May 2001 with a yearly average of $6.6 \mu\text{g m}^{-3}$. The yearly average concentration calculated from the passive samplers directly also yields $6.6 \mu\text{g m}^{-3}$, while the average of the passive sampler measurements on the eight LML-locations is higher with $7.8 \mu\text{g m}^{-3}$.

Voorwoord

In 2000 zijn in het project Intensivering Meetinspanning Luchtkwaliteit (M/723130) activiteiten opgestart voor het karteren van de ammoniakconcentratie in Nederland door middel van het meten van ammoniak met passieve samplers op 159 locaties. In 2001 zijn de meetactiviteiten ondergebracht in het project Monitoring Lucht (M/723101). De analyses van de metingen vinden plaats in het project Meten en Modelleren (S/722601) met betrekking tot de kartering en in het project Verzuring en Grootschalige Luchtverontreiniging (M/725501) met betrekking tot het vergelijken met modelberekeningen en de analyse van het ammoniakgat.

De provincies Gelderland, Friesland en Brabant worden bedankt voor het beschikbaar stellen van hun ammoniakmetingen voor vergelijk met onze eigen metingen in deze studie. Verder gaat dank uit naar Frank de Leeuw, Ed Buijsman en Hub Diederer voor het van commentaar voorzien van dit rapport en aan Jan de Ruiter voor het figuur van de ammoniakemissies.

Inhoud

| | |
|--|-----------|
| Abstract | 2 |
| Voorwoord | 3 |
| Inhoud | 4 |
| Samenvatting | 5 |
| 1. Inleiding | 6 |
| 2. Metingen met passieve samplers | 8 |
| 3. Modellerings van de ruimtelijke afhankelijkheid | 10 |
| 4. Ruimtelijke verdeling van ammoniak | 13 |
| <i>4.1 Ammoniakconcentratie in Nederland</i> | <i>13</i> |
| <i>4.2 Regionale variabiliteit</i> | <i>17</i> |
| <i>4.3 Invloed lokaal beïnvloede meetpunten op ammoniak-concentratie</i> | <i>22</i> |
| 5. Conclusies | 25 |
| Literatuur | 26 |
| Bijlage 1 Kaarten meetpunten | 27 |
| Bijlage 2 Variogrammen | 29 |
| Bijlage 3 NH₃-concentraties per maand | 31 |
| Bijlage 4 Krigingpredictie-karakteristieken per maand | 33 |
| Bijlage 5 Verzendlijst | 34 |

Samenvatting

Het Laboratorium voor Luchtonderzoek van het RIVM meet sinds 1993 ammoniak in de lucht op acht locaties in Nederland. Ruimtelijk heeft ammoniak een grillig verloop met hoge concentraties binnen enkele kilometers van bronnen en lage concentraties verder weg. Door het sterk variabele ruimtelijke patroon zijn de acht meetpunten onvoldoende voor het karakteriseren van ammoniak in Nederland op basis van metingen alleen. Dit laatste gebeurt daarom door gebruik van het OPS-model en schattingen van de emissies van ammoniak waarbij de metingen worden gebruikt ter schaling van het berekende concentratieveld. De afgelopen jaren is gebleken dat de berekende ammoniakconcentraties niet overeenkomen met de ammoniakmetingen op acht de LML-locaties (LML = Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit). De metingen zijn zo'n 20-30% hoger dan de berekeningen. Tevens werd de afgelopen jaren op grond van de berekeningen een daling in ammoniakconcentratie verwacht, terwijl de metingen een constante concentratie of lichte stijging te zien gaven. Dit verschil wordt het ammoniakgat genoemd.

De onzekerheid in de berekende concentratievelden van ammoniak wordt voor een groot deel bepaald door de onzekerheid in de emissies en in de parameterisatie van de depositie. Om een beeld te krijgen van de ruimtelijke verdeling van de ammoniakconcentratie in Nederland en om informatie te verkrijgen over de locatie van extra ammoniakmeetpunten heeft van september 2000 t/m september 2001 een intensieve ammoniakmeetcampagne plaatsgevonden. Op 159 locaties in Nederland zijn met passieve sampler ammoniakmetingen verricht op een grid van ongeveer 15 x 15 km. In dit rapport worden de resultaten besproken van de ammoniakconcentraties in Nederland, representatief voor dit grid, bepaald uit predicties op basis van de geostatistische techniek kriging. Kriging is een lineaire interpolatie techniek op basis van ruimtelijk correlaties tussen de meetpunten. Variaties in concentratie op een schaal kleiner dan 15 km zijn niet uit de metingen af te leiden. De hoogste ammoniakconcentraties komen in alle maanden voor in het oosten van Noord-Brabant en noorden van Limburg met een 12-maandsgemiddelde concentratie van $15 \mu\text{g m}^{-3}$. Verhoogde concentraties van tegen de $10 \mu\text{g m}^{-3}$ komen voor in de Gelderse Vallei, de Achterhoek en Twente en van ongeveer $7 \mu\text{g m}^{-3}$ in het midden van Overijssel en Friesland. De gemiddelde ammoniakconcentratie in Nederland varieerde van $4 \mu\text{g m}^{-3}$ in het najaar van 2000 tot $9,6 \mu\text{g m}^{-3}$ in mei 2001. Het 12-maandsgemiddelde is $6,6 \mu\text{g m}^{-3}$ met een ruimtelijke spreiding (25- en 75-percentielwaarden) van $4,6$ tot $8,2 \mu\text{g m}^{-3}$. Het jaargemiddelde van 155 meetlocaties (159 minus 4 afgekeurde locaties) levert ook $6,6 \mu\text{g m}^{-3}$ op, terwijl het gemiddelde van de passieve samplermetingen op de acht LML-locaties hoger is met $7,8 \mu\text{g m}^{-3}$.

De interpolatiefout van kriging ligt over heel Nederland tussen $2,4$ en $2,8 \mu\text{g m}^{-3}$. Dit komt overeen met een relatieve fout van 50-80% in gebieden met lage concentraties (westen) tot 15% in gebieden met de hoogste concentraties (oosten van Noord-Brabant en noorden van Limburg).

Op een fijne regionale schaal (<10 km) kunnen lokale bronnen een grote invloed hebben op de ammoniakconcentratie resulterend in hoge concentraties (meer dan $20 \mu\text{g m}^{-3}$ met in de zomermaanden waarden oplopend tot $50-70 \mu\text{g m}^{-3}$). Dit kan zich in heel Nederland voordoen en maakt het moeilijk om goede achtergrondstations te definiëren.

Tijdens de meetcampagne is in Nederland een mond- en klauwzeer (MKZ) epidemie uitgebroken. Of dit een effect heeft gehad op de ammoniakconcentraties in Nederland kan niet worden opgemaakt uit de metingen met passieve samplers alleen.

Dit rapport maakt onderdeel uit van een totale rapportage van de ammoniakproblematiek in Nederland. Deze bestaat verder uit een rapport van TNO van de metingen met passieve samplers en een rapport over het vergelijk van de metingen met OPS-modelberekeningen.

1. Inleiding

Het Laboratorium voor Luchtonderzoek (LLO) van het RIVM meet sinds 1993 ammoniakconcentraties in de buitenlucht op acht locaties in Nederland in het kader van het meetprogramma van het Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit (LML). Ammoniak wordt voornamelijk geëmitteerd in de landbouw via stallen met vee en het uitrijden van dierlijke mest. Via depositie en chemische reacties wordt het uit de atmosfeer verwijderd op een termijn van minuten tot uren. Ruimtelijk heeft ammoniak daarom een grillig verloop met hoge concentraties binnen enkele kilometers van bronnen en lage concentraties verder weg. Door het sterk variabele ruimtelijke patroon zijn de acht meetpunten van ammoniak onvoldoende voor het ruimtelijk karakteriseren van het ammoniakconcentratieveld over Nederland. Dit laatste gebeurt daarom door gebruik te maken van het OPS-model (zie o.a. Van Jaarsveld et al., 2000) en op basis van schattingen van de emissies van ammoniak. De metingen worden gebruikt ter schaling van het berekende ammoniakconcentratieveld. De afgelopen jaren is gebleken dat de berekende ammoniakconcentraties niet overeenkomen met de ammoniakmetingen (Milieubalans, RIVM, 1997). De metingen zijn zo'n 20-30% hoger dan de berekeningen. Verder is er een verschil waargenomen tussen de trend in de metingen en de berekeningen. Dit verschil wordt het ammoniakgat genoemd, waarvoor door middel van schaling kan worden gecorrigeerd.

De onzekerheid in de berekende concentratievelden van ammoniak wordt voor een groot deel bepaald door de onzekerheid in de emissies en in de parameterisatie van de depositie. Om een beeld te krijgen van de ruimtelijke verdeling van ammoniak in Nederland (onafhankelijk van modelberekeningen) en om informatie te verkrijgen over de locatie van extra ammoniakmeetpunten is in september 2000 een intensieve ammoniak meetcampagne gestart welke duurde van september 2000 t/m september 2001. Op 159 locaties in Nederland zijn passieve samplers opgehangen, ongeveer op een grid van 15 x 15 km, welke na een maand werden opgehaald en geanalyseerd (Duyzer en Weststrate, 2002).

Los van deze metingen hebben de provincies Gelderland, Brabant en Friesland in dezelfde periode ook metingen van ammoniak laten verrichten op een fijnere schaal (~1-2 km) in de Gelderse Vallei, de Peel en rondom Epe en in zuidoost Friesland. Deze metingen zijn in deze rapportage gebruikt ter ondersteuning van de andere metingen en ter verbetering van het ruimtelijk beeld van ammoniak.

In deze rapportage wordt de ruimtelijke verdeling van ammoniak in Nederland besproken gebaseerd op de metingen met de passieve samplers op het grid van 15 x 15 km.. De ammoniakconcentraties die besproken worden in dit rapport hebben betrekking op dit grid waarop de monsternamen heeft plaatsgevonden en worden daarom aangeduid met ammoniakconcentraties representatief voor het 15 x 15 km grid of korter met '15 km-schaal concentraties'. Variaties in concentratie op een schaal kleiner dan 15 km zijn niet uit de metingen af te leiden. In hoofdstuk 2 worden de door TNO uitgevoerde metingen kort beschreven, gevolgd in hoofdstuk 3 door een korte beschrijving van de methode van interpolatie (kriging). De ruimtelijke concentratievelden van ammoniak worden besproken in hoofdstuk 4 en de conclusies in hoofdstuk 5.

Tijdens de meetcampagne is in Nederland een mond- en klauwzeer (MKZ) epidemie uitgebroken. Dit heeft tot gevolg gehad dat veeveelbedrijven zijn geruimd, dieren lange tijd op stal hebben moeten staan en mest niet mocht worden uitgereden op het land. Dit kan een effect hebben gehad op de ammoniakemissies en daarmee op de ammoniakconcentratie in Nederland zoals gemeten in het voorjaar van 2001. De MKZ-periode heeft ook tot gevolg gehad dat enkele buisjes met passieve samplers niet konden worden verzameld.

Dit rapport maakt onderdeel uit van een totale rapportage van de ammoniakproblematiek in Nederland bestaande verder uit een rapport van TNO van de metingen met passieve samplers (Duyzer en Weststrate, 2002), een rapport over het vergelijk van de metingen met OPS-

berekeningen (Van Jaarsveld en Van Pul, 2002), een briefrapport met aanbevelingen voor de nieuwe ammoniakmeetlocaties en een briefrapport over het ammoniakgat.

2. Metingen met passieve samplers

Metingen van ammoniak met passieve samplers zijn in opdracht van het RIVM door TNO/MEP uitgevoerd in de periode september 2000 t/m september 2001 (Duyzer en Weststrate, 2002). Dit leverde maandgemiddelde ammoniakconcentraties op 159 locaties voor de maanden september 2000 t/m juni 2001 en voor september 2001. Voor de maanden juli-augustus 2001 is één waarde gemeten. De meetlocaties zijn weergegeven in Figuur 2.1 en staan ongeveer op een 15 x 15 km grid.

Het meetmethode voor het bepalen van de ammoniakconcentratie met behulp van passieve monsternemers is opgezet en onderzocht door TNO en ECN (Thijssen et al., 1998). Tijdens de monsterneming diffundeert ammoniak in de samplers (buisjes).

NH₃-meetlocaties passieve samplers

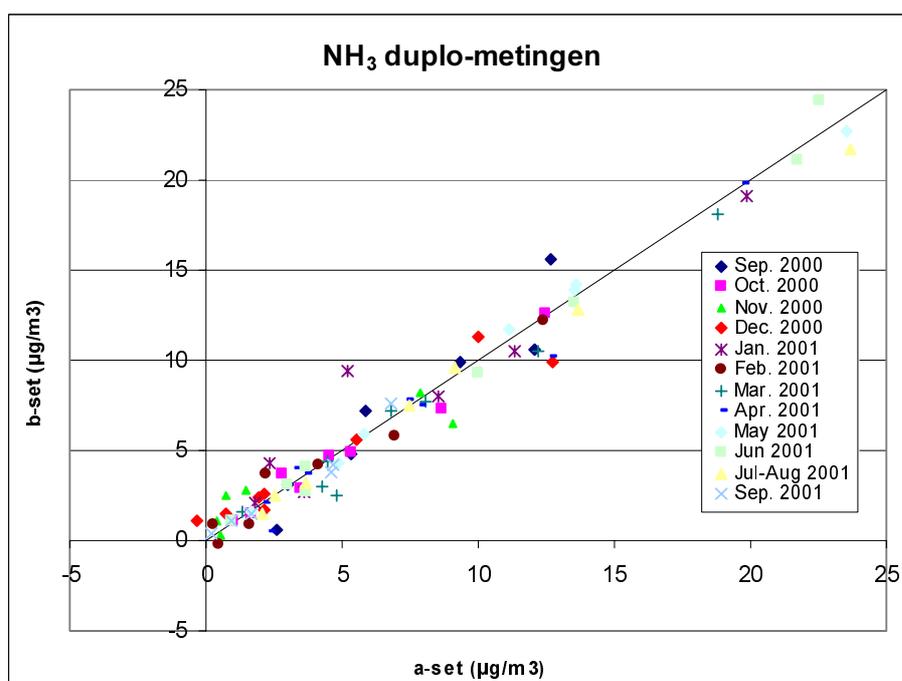


Figuur 2.1 Meetlocaties en codering van de passieve samplers voor ammoniak. De zwarte vierkantjes geven de locaties aan van de ammoniakmetingen in het LML. Op deze locaties zijn steeds 2 passieve samplers opgehangen (duplo-metingen).

Na afloop van de monsternemingsperiode worden de samplers opgehaald en wordt de hoeveelheid opgenomen ammoniak bepaald. De resultaten worden gecorrigeerd voor de temperatuur en gekalibreerd aan de hand van metingen met de AMOR ammoniakmeters op de acht LML-locaties. Op deze locaties zijn tevens duplo-metingen met passieve samplers uitgevoerd. Voor details over de metingen wordt verwezen naar het rapport van TNO (Duyzer en Weststrate, 2002).

Door de afzonderlijke metingen op de LML locaties (duplo-metingen) tegen elkaar uit te zetten (Figuur 2.2) is een hoge correlatie te zien met een helling van 0.990 ($R^2 = 0.969$). Het gemiddelde verschil tussen de a- en b-set is $0,8 \mu\text{g m}^{-3}$. Volgens Duyzer en Weststrate (2002) is de meetnauwkeurigheid van afzonderlijke metingen kleiner dan 5%.

Afgezien van de meetnauwkeurigheid van de individuele metingen is het ook van belang zich te realiseren dat de metingen een beperkte ruimtelijke representativiteit hebben. Door de korte levensduur van ammoniak in de atmosfeer en de hoge dichtheid van bronnen (stallen en mestuitrijgebieden) is de gemeten hoeveelheid ammoniak op een plek sterk afhankelijk van de locatie van de passieve sampler ten opzichte van bronnen. Een verandering in meetlocatie van een kilometer of positionering boven- of benedenwinds van een bron kan verschillen geven in gemeten concentratie van een factor twee of meer.

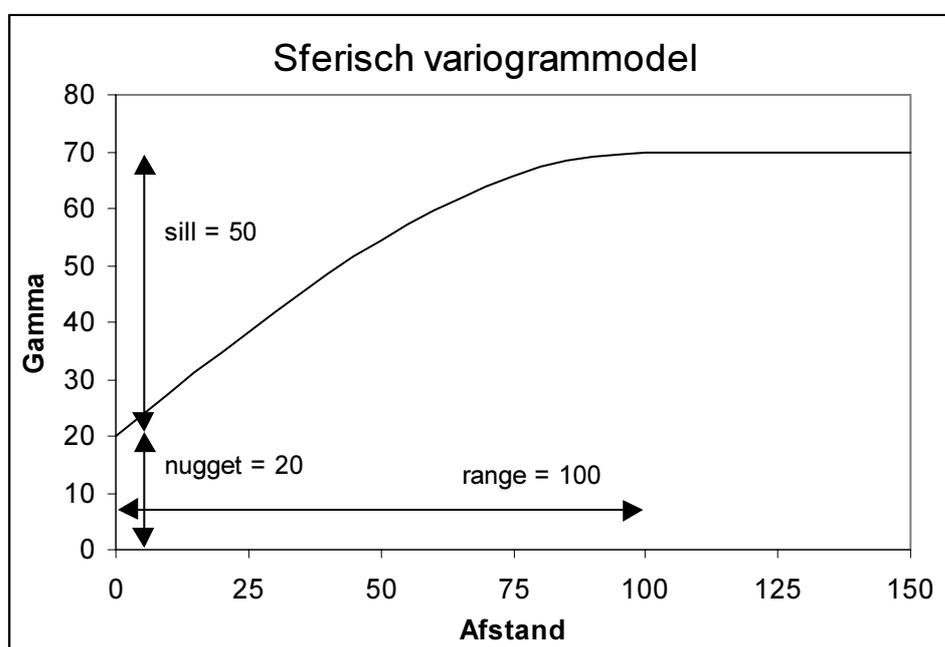


Figuur 2.2 Correlatie tussen de afzonderlijke maandgemiddelde metingen van de duplo-meetsets op de acht LML ammoniakmeetlocaties. De getrokken lijn is de 1:1 lijn.

3. Modelling van de ruimtelijke afhankelijkheid

Voor het bepalen van het ruimtelijk beeld van ammoniak in Nederland is een geostatistische techniek, genaamd kriging, toegepast op basis van de 159 meetwaarden (zie o.a. Chilès en Delfiner, 1999). Het doel is om ammoniakconcentraties te voorspellen (bepalen) op punten waar niet gemeten is. Kriging is een lineaire interpolatie techniek tussen waarnemingen op meetpunten en vertoont grote overeenkomsten met multiple regressie. Het grote verschil tussen beide methoden is echter dat bij kriging er: 1) één waarneming per meetpunt verondersteld wordt (bijv een jaargemiddelde concentratie in de lucht); 2) de waarnemingen onderling gecorreleerd zijn afhankelijk van de afstand van de betreffende meetpunten. Bij multiple lineaire regressie zijn de afwijkingen van de metingen t.o.v. de voorspelde regressielijn juist onafhankelijk en van constante grootte. De ruimtelijke afhankelijkheid van de metingen wordt beschreven door het semi-variogram. Theoretisch zijn er slechts een beperkt aantal semi-variogrammen mogelijk. In dit onderzoek wordt het isotrope sferisch semi-variogram gebruikt. Deze functie heeft een drietal parameters op basis waarvan het empirisch semi-variogram, dat de ruimtelijke afhankelijkheid beschrijft, worden geschat. Het geschatte semi-variogram beschrijft de variantie-covariantie matrix die gebruikt wordt voor de predicties (voorspellingen) van het ruimtelijke veld op punten waar al dan niet gemeten is. Tevens geeft het een schatting van de interpolatiefout voor elke predictie.

In Bijlage 2 zijn de empirische semi-variogrammen en gefitte sferische covariantie functies voor de 12 maanden met meetdata weergegeven. De semi-variogrammen horen bij de metingen weergegeven in Bijlage 1 en de geschatte parameterwaarden staan in Tabel 3.1.



Figuur 3.1 Voorbeeld van een isotroop sferisch semi-variogram.

Het semi-variogram kent een aantal karakteristieke (Figuur 3.1): de range, de nugget en de sill die de ruimtelijke structuur van de data beschrijven.

- De **range** geeft aan binnen welke afstand waarnemingen op meetpunten nog onderling gecorreleerd zijn. De ranges die worden gevonden bij de semi-variogrammen van de meetdata variëren van 100 tot 145 km. In sectie 4.2 worden ammoniakmetingen op veel kleinere ruimtelijk schaal geïntroduceerd (provinciale data). De ranges behorende bij deze data zijn

lastig te bepalen (onvoldoende meetpunten) maar zijn in de orde van enkele kilometers. De in Tabel 3.1 weergegeven ranges zijn echter veel groter hetgeen erop duidt dat deze sterk worden beïnvloed door het feit dat er met maandgemiddelde waarden wordt gewerkt welke worden bepaald door grootschalige meteorologie.

- De **nugget** is de variantie behorende bij een afstand nul. Theoretisch gesproken is de variantie, zoals beschreven met een semi-variogram, gelijk aan nul op afstand nul aangezien het dan de variantie van één enkel meetpunt betreft. In de praktijk blijkt echter vaak dat op hele korte afstand tussen meetpunten er al een bepaalde variantie bestaat. Deze discontinuïteit wordt het nugget-effect genoemd. Een meetfout bij de metingen kan er de oorzaak van zijn dat meetwaarden van twee meetpunten die erg dicht bij elkaar liggen toch van elkaar verschillen, hetgeen resulteert in een nugget ongelijk aan nul. Naast een meetfout kan ook een representatiefout resulteren in een nugget ongelijk aan nul. Met een representatiefout wordt hier bedoeld het feit dat een meetpunt wordt verondersteld representatief te zijn voor de (achtergrond)concentratie in een gebied van zo'n 15 x 15 km horende bij het grid van meetpunten. Ammoniak heeft echter een sterk lokaal karakter en meetpunten welke worden beïnvloed door lokale bronnen zullen representatief zijn voor een kleiner gebied dan 15 x 15 km. Dit resulteert in een fout welke zichtbaar wordt in een nugget. De nuggets behorende bij de semi-variogrammen (zie bijlage Bijlage 2) variëren van 1,1 tot 6,8 met een gemiddelde van 4,4. Dit correspondeert met een standaard deviatie is $2,1 \mu\text{g m}^{-3}$. De empirische semi-variogrammen van Bijlage 2 geven voor afstanden kleiner dan ~ 30 km regelmatig hogere waarden dan de gefitte curves. Een gaussisch semi-variogram model kan dit wat beter beschrijven dan een sferisch model. Een gaussisch semi-variogram model geeft een nugget (jaargemiddeld) van 6,7, hetgeen correspondeert met een standaard deviatie van $2,6 \mu\text{g m}^{-3}$. Op de interpolatie zelf heeft dit geen groot effect. Uit de duplo-metingen op de LML-locaties is een variantie van 0,64 welke overeenkomt met een standaard deviatie van $0,8 \mu\text{g m}^{-3}$ (gemiddeld over alle duplos en alle maanden). Uit het feit dat deze waarde kleiner is dan de gemiddelde nugget kan worden geconcludeerd dat de nugget meer wordt bepaald door de representatiefout en minder door de meetfout van de individuele metingen. Voor een schatting van de representatiefout wordt de grotere standaard deviatie genomen afgeleid uit het gaussisch semi-variogrammodel. Afgerond naar boven wordt de representatiefout geschat op $2 \mu\text{g m}^{-3}$ ($\sim 2,6-0,8$) en de meetfout aan $1 \mu\text{g m}^{-3}$.
- De **sill** is de variantie op afstanden groter dan de range, dus als de meetpunten niet meer gecorreleerd zijn.

Tabel 3.1 Nugget¹, sill en range van de gefitte sferische semi-variogrammen van Bijlage 2.

| Dataset | Nugget | Sill | Range | Nugget+Sill | Relatieve Nugget |
|--------------------|--------|------|-------|-------------|------------------|
| September 2000 | 3,6 | 14,4 | 107,0 | 18,0 | 19,9% |
| Oktober 2000 | 1,1 | 6,9 | 123,3 | 8,1 | 13,9% |
| November 2000 | 5,5 | 4,5 | 109,8 | 10,0 | 55,0% |
| December 2000 | 2,6 | 4,7 | 145,2 | 7,3 | 35,0% |
| Januari 2001 | 3,3 | 10,2 | 130,0 | 13,5 | 24,4% |
| Februari 2001 | 4,4 | 7,8 | 99,5 | 12,2 | 36,0% |
| Maart 2001 | 6,3 | 8,8 | 102,7 | 15,1 | 41,5% |
| April 2001 | 3,8 | 12,0 | 131,4 | 15,8 | 24,0% |
| May 2001 | 5,0 | 25,6 | 140,9 | 30,6 | 16,4% |
| Juni 2001 | 6,8 | 21,4 | 134,2 | 28,1 | 24,1% |
| Juli-Augustus 2001 | 6,4 | 19,2 | 109,9 | 25,5 | 24,9% |
| September 2001 | 3,7 | 10,1 | 138,1 | 13,8 | 26,7% |

1) Standaard deviatie = $\sqrt{\text{variantie}} = \sqrt{\text{nugget}}$

Er is onderzocht of er trendvlakken aanwezig waren in de meetdata waarvoor voor de interpolatie zou moeten worden gecorrigeerd. Een trendvlak in data resulteert in een oplopend semi-variogram met groter wordende afstand. Als een trendvlak niet wordt onderkend levert dit een verkeerd (statistisch) model op en een onjuiste ruimtelijke beschrijving. Het verwijderen van trendvlakken in de data bleek echter niet nodig te zijn. Uit analyses van de metingen is tevens gebleken dat er geen richtingsafhankelijkheid (anisotropie) in de data (covariatie matrix) zit.

Het softwarepakket S-plus (zie Dekkers, 2001) is gebruikt voor de statistische analyses zoals beschreven in dit rapport.

4. Ruimtelijke verdeling van ammoniak

De ammoniakmetingen zijn op basis van de waarnemingen op de 159 locaties geïnterpoleerd met kriging (zie hoofdstuk 3). De resultaten van deze geïnterpoleerde velden worden in sectie 4.1 beschreven en besproken. In sectie 4.2 worden de metingen vergeleken met ammoniakmetingen die zijn uitgevoerd in opdracht van verschillende provincies in de Peel, Epe, de Gelderse Vallei en zuidoost Friesland.

Van de 159 meetpunten in Nederland lagen er vier op minder dan 75 m van een grote stal (Duyzer en Weststrate, 2002). Het betreft meetpunten in Noord-Brabant (c12, c13 en c15) en Limburg (d11). Deze meetpunten zijn waarschijnlijk sterk beïnvloed door lokale emissies van de dichtbij gelegen stallen. Het doel van de metingen was om een beeld te krijgen van de ammoniakconcentraties in Nederland. Van de 159 meetpunten wijken er vier sterk af van de rest meetpunten wat betreft hun hoge meetwaarde en ruimtelijke representativiteit. Gebleken is dat deze vier meetpunten dicht bij grote stallen liggen en daardoor sterk worden beïnvloed door de emissies van deze stallen waardoor ze niet representatief zijn voor de concentratie in dat gebied op een schaal van 15 x 15 km. Voor de analyse van de metingen in secties 4.1 en 4.2 zijn de vier meetpunten met afwijkende (hoge) ammoniakconcentraties buiten beschouwing gelaten. In sectie 4.3 wordt nader ingegaan op deze meetpunten en op hun invloed op de '15 km-schaal' ammoniakconcentratie in Nederland.

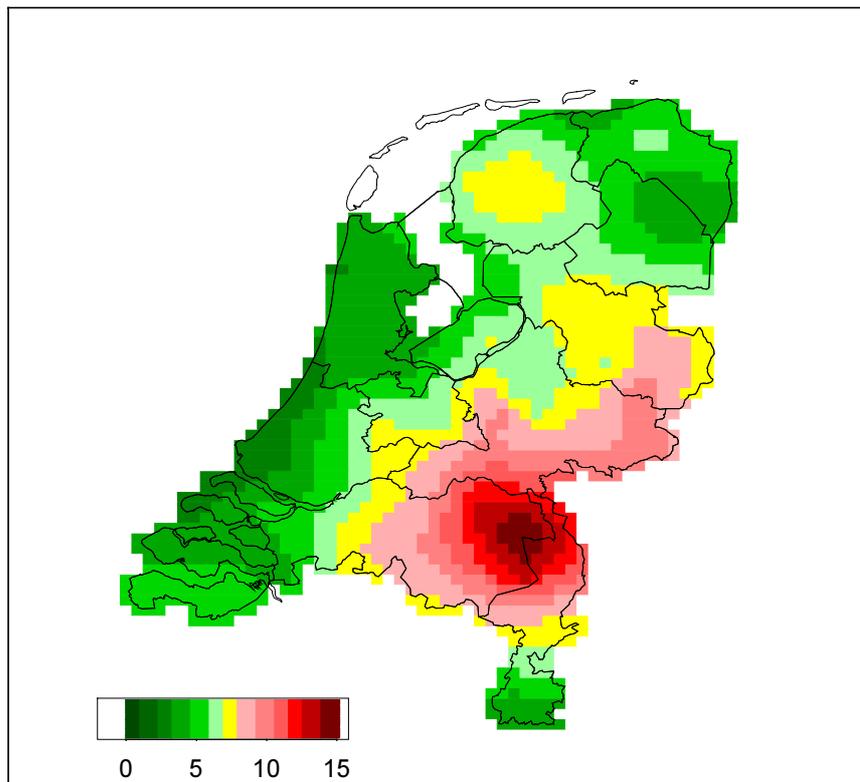
4.1 Ammoniakconcentratie in Nederland

In Bijlage 1 staan de meetwaarden grafisch uitgezet van de individuele meetpunten per maand zonder interpolatie, in Bijlage 3 de geïnterpoleerde ammoniakconcentraties per maand en in Bijlage 4 de bijbehorende krigingpredictie-karakteristieken (gemiddelden over Nederland, fouten etc.). De variatie van maand tot maand in ammoniakconcentratie is aanzienlijk, met hoge concentraties in het voorjaar en de zomer (mei-september) en lage concentraties in het najaar en de winter (oktober-februari). Voor alle maanden geldt dat hoge concentraties voorkomen in oost Noord-Brabant / noord Limburg (de Peel) en verhoogde concentraties in Gelderland (Gelderse Vallei en de Achterhoek) en Overijssel. De relatieve patronen in de maanden bevestigen dit beeld. Uit het vergelijken van geïnterpoleerde velden van genormaliseerde ammoniakconcentraties (gemiddelde = 0, variantie = 1) blijkt dat in alle maanden verhoogde concentraties zijn waargenomen in de hiervoor genoemde gebieden en dat de concentraties in deze gebieden ten opzichte van elkaar ongeveer een zelfde verhouding hebben in alle maanden. Dit duidt op een gemeenschappelijk patroon in de emissies of meteorologische condities welke bepalend zijn voor de ammoniakconcentraties.

In enkele maanden komen ook verhoogde concentraties voor in Friesland.

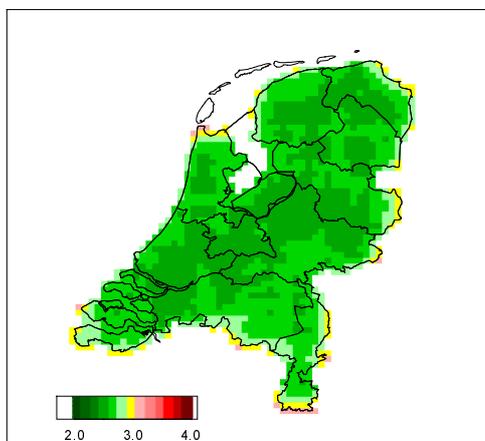
In zowel 2000 en 2001 zijn metingen verricht in de maand september. De concentraties in beide septembermaanden komen qua ruimtelijk patroon goed overeen, maar verschillen absoluut aanzienlijk.

In Figuur 4.1 staat de ammoniakconcentratie gemiddeld over 12 maanden, van september 2000 t/m augustus 2001 en in Figuur 4.3 de seizoensgemiddelden. Voor bepaling van dit 12-maandsgemiddelde en de seizoensgemiddelden zijn de metingen van de afzonderlijke maanden eerst genormaliseerd en vervolgens is per maand het empirische semi-variogram bepaald. Een sferisch semi-variogrammodel is gefit door het totaal van de 12 empirische semi-variogrammen. Met behulp van dit model zijn per maand de ammoniak metingen geïnterpoleerd met kriging, waarna ze gerenormaliseerd zijn. Uiteindelijk zijn van deze geïnterpoleerde velden het 12-maandsgemiddelde bepaald per gridcel en de seizoensgemiddelden. In Figuur 4.2 staan de standaard fouten (absoluut en relatief) horende bij de kriginginterpolatie van de 12-maandsgemiddelde ammoniakconcentratie uit Figuur 4.1.

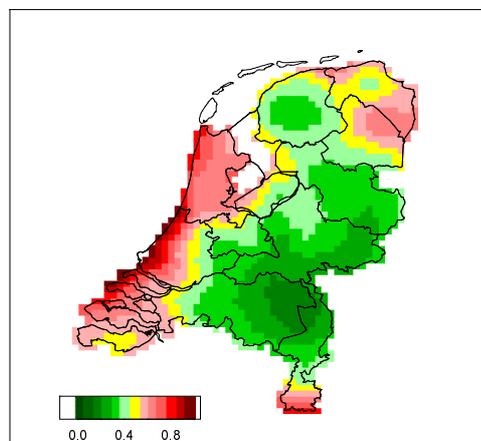
Gemiddeld NH₃: Sept. 2000 - Aug. 2001

Figuur 4.1 Gemiddelde NH₃-concentratie ($\mu\text{g m}^{-3}$) op het 15 x 15 km grid van sept. 2000 t/m aug. 2001.

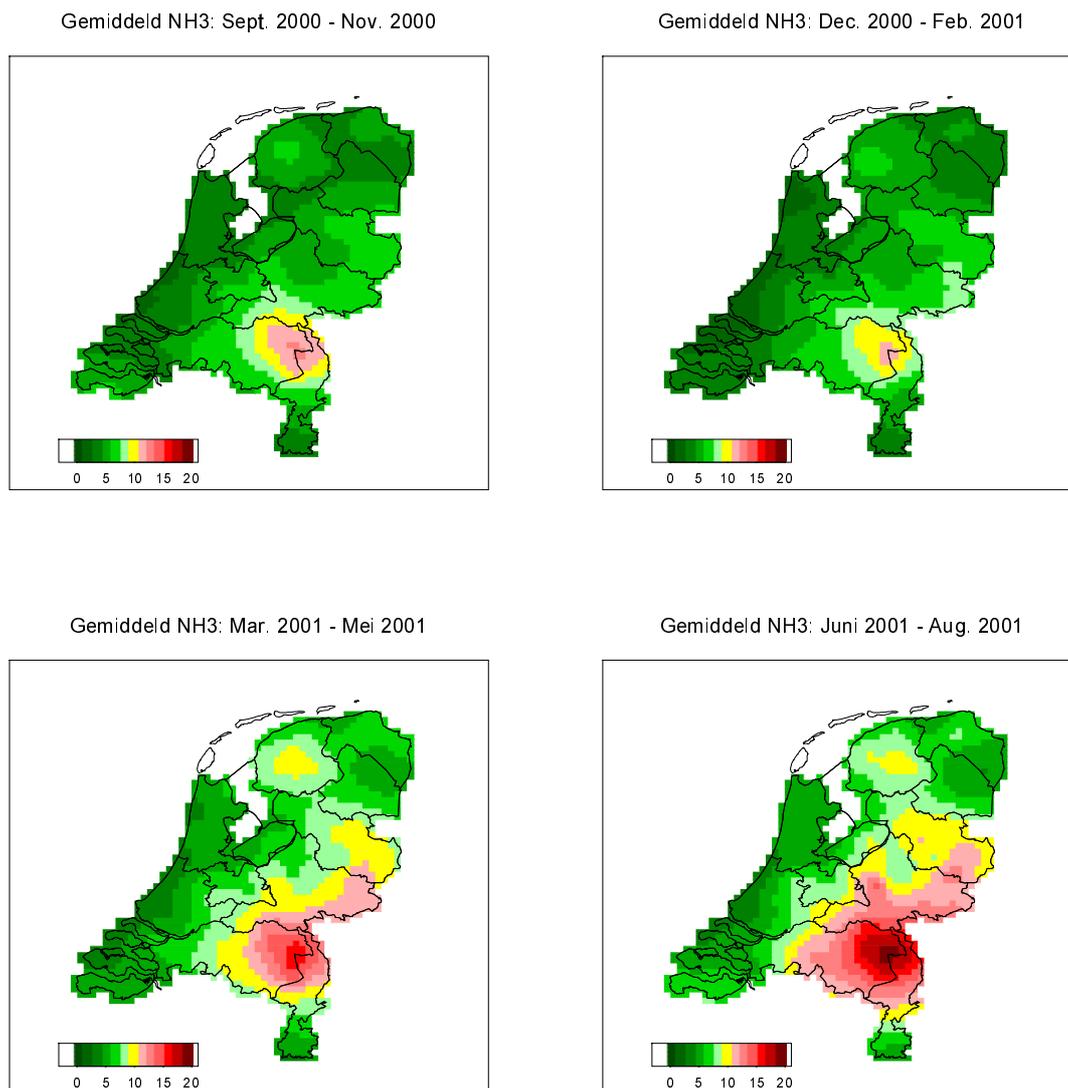
Standaard fout NH₃: Sept. 2000 - Aug. 2001



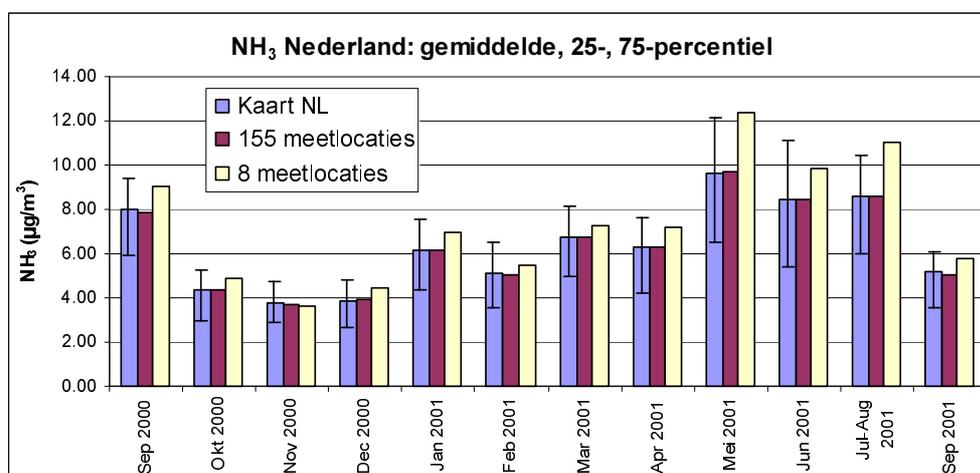
Relatieve standaard fout NH₃: Sept. 2000 - Aug. 2001



Figuur 4.2 Gemiddelde (sept. 2000 t/m aug. 2001) van de maandelijkse predictiefouten in de NH₃-concentratie per gridcel (links absoluut in $\mu\text{g m}^{-3}$; rechts relatief met 0.8 = 80%).



Figuur 4.3 Seizoensgemiddelde NH₃-concentraties ($\mu\text{g m}^{-3}$).



Figuur 4.4 Gemiddelde ammoniakconcentraties in Nederland ($\mu\text{g m}^{-3}$). Het gemiddelde is bepaald over de geïnterpoleerde concentratievelden, de 155 en 8 (LML) meetlocaties.

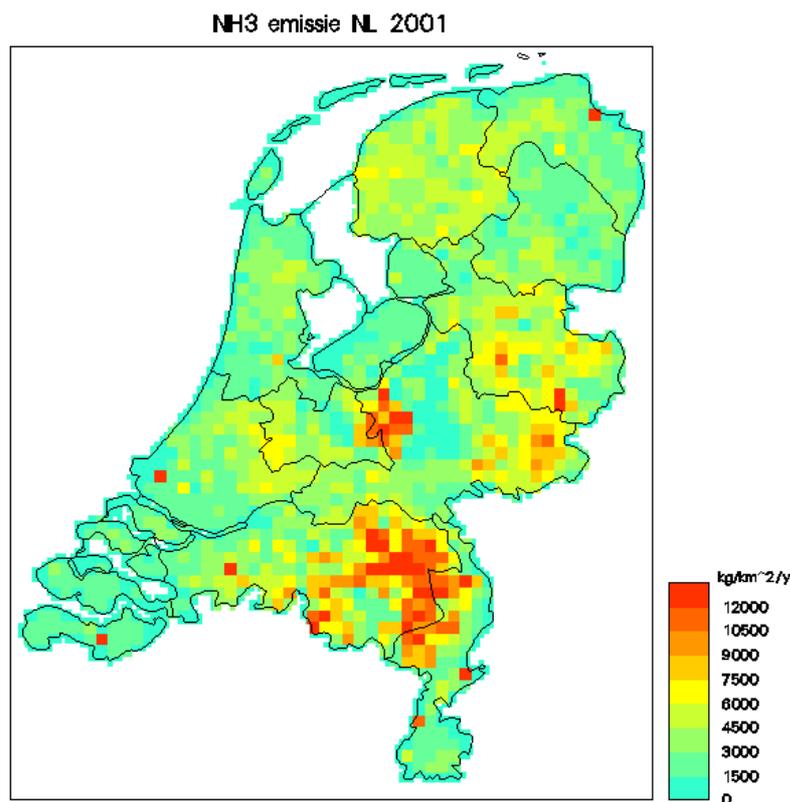
In Figuur 4.1, 12-maandsgemiddelde ammoniakconcentratie, is te zien dat concentraties (op het 15 x 15 km grid) boven $10 \mu\text{g m}^{-3}$ voorkomen in oost Noord-Brabant/Limburg en concentraties tot $15 \mu\text{g m}^{-3}$ in de Peel. Ammoniakconcentraties van tegen $10 \mu\text{g m}^{-3}$ komen ook voor het zuiden van Gelderland, de Gelderse Vallei, de Achterhoek en Twente, terwijl concentraties van ongeveer $7 \mu\text{g m}^{-3}$ voorkomen in midden Overijssel en Friesland. In het westen van Nederland (Noord- en Zuid-Holland, Zeeland, Utrecht) en in Flevoland, Drente, Groningen en het zuiden van Limburg de gemiddelde achterconcentraties onder $5 \mu\text{g m}^{-3}$ liggen. Dit concentratiepatroon komt grotendeels overeen met de verdeling van ammoniakemissies over Nederland zoals gegeven in Figuur 4.5 (Zie ook de Milieubalans, RIVM, 2000).

De absolute fout behorende bij de kriginginterpolatie (predictie fout, zie Figuur 4.2) ligt over heel Nederland tussen $2,4$ en $2,8 \mu\text{g m}^{-3}$ (gemiddeld $2,64 \mu\text{g m}^{-3}$) hetgeen resulteert in een relatieve fout variërend van 50-80% in de gebieden met lage concentraties (westen) tot 20-40% in gebieden met verhoogde concentraties (Gelderland, Overijssel, Friesland) tot 15% in gebieden met de hoogste concentraties (oost Noord-Brabant/noord Limburg). Deze fout bevat een component van de meetnauwkeurigheid van de individuele passieve samplers en een component van de representativiteit welke ontstaat als een meetpunt niet representatief is voor een gebied van ongeveer 15 x 15 km (grid waarop de meetpunten liggen). De meetfout ten gevolge van de meettechniek met passieve samplers is kleiner dan $1 \mu\text{g m}^{-3}$ (5% van een maximum van $20 \mu\text{g m}^{-3}$, Duyzer en Weststrate (2002)), terwijl de representatiefout geschat wordt op $2 \mu\text{g m}^{-3}$ (zie sectie 3).

Uit de Figuren 4.3 en 4.4 volgt dat in het voorjaar en de zomer de hoogste concentraties (op het 15 x 15 km grid) van ammoniak in Nederland voorkomen met gemiddeld over Nederland een maximum concentratie in mei 2001 van $9,6 \mu\text{g m}^{-3}$ met een spreiding (25- en 75-percentiel) van $6,5$ tot $12,1 \mu\text{g m}^{-3}$. De laagste gemiddelde concentratie wordt gevonden in het najaar, ongeveer $4 \mu\text{g m}^{-3}$. Dit seizoensverloop komt overeen met de bevindingen van Bogaard en Duyzer (1998) en Van Jaarsveld et al. (2000) welke een piek vonden in het voorjaar gerelateerd aan verhoogde uitrij-activiteiten van mest en een piek in de zomer welke wordt toegeschreven aan temperatuurinvloeden op zowel uitrij- als stalemissies.

De concentratie gemiddeld over het jaar en gemiddeld over het oppervlak van Nederland is $6,6 \mu\text{g m}^{-3}$ (25- en 75-percentielen van $4,6$ en $8,2 \mu\text{g m}^{-3}$). De middeling over Nederland is uitgevoerd op de geïnterpoleerde concentratievelden zoals weergegeven in Bijlage 3. Het jaargemiddelde van de 155 (159 minus de 4 afgekeurde) meetlocaties levert ook $6,6 \mu\text{g m}^{-3}$ op. De gemiddelde ammoniakconcentratie, gemeten met de passieve samplers, op de acht LML-locaties is hoger met $7,8 \mu\text{g m}^{-3}$. Het gemiddelde van de metingen op de acht LML-locaties is daarmee 18% hoger dan het gemiddelde voor Nederland. Uit Figuur 4.4 is te zien dat dit verschil vooral komt door de hogere waarden in de zomermaanden. Als de 4 afgekeurde meetlocaties worden meegenomen stijgt de jaargemiddelde concentratie van $6,6 \mu\text{g m}^{-3}$ tot $7,1 \mu\text{g m}^{-3}$ (bepaald uit 159 locaties).

Tijdens de meetcampagne is in Nederland een mond- en klauwzeer (MKZ) epidemie uitgebroken. Dit heeft tot gevolg gehad dat veeveeltbedrijven zijn geruimd, dieren lange tijd op stal hebben moeten staan en mest niet mocht worden uitgereden op het land. Dit heeft een effect hebben gehad op de ammoniakemissies en daarmee op de ammoniakconcentratie in Nederland zoals gemeten in de periode van februari t/m juni 2001. Een eventueel effect kan echter niet herleid worden uit de gemeten ammoniakconcentraties besproken in dit rapport. Dit komt doordat er maar één jaar gemeten is met passieve samplers en meteorologische variaties van maand-tot-maand en jaar-tot-jaar grote verschillen kunnen geven in ammoniakconcentraties. Een MKZ-effect is mogelijk wel waarneembaar uit een analyse van metingen van meerdere jaren op de acht LML-locaties. De MKZ-periode heeft ook tot gevolg gehad dat enkele buisjes met passieve samplers niet konden worden verzameld. In enkele gevallen is hiervoor in de metingen gecorrigeerd, terwijl in andere gevallen geen meetwaarde beschikbaar was voor een meetlocatie.



Figuur 4.5 Ammoniakemissies in Nederland in 2001.

4.2 Regionale variabiliteit

De ammoniakmetingen met de 159 passieve samplers geven een beeld van de ammoniakconcentratie in Nederland op het grid van 15 x 15 km. Deze metingen worden hier aangeduid als NL-data. Op regionale schaal treden echter grote variaties in ammoniakconcentratie op. In opdracht van verschillende provincies zijn ammoniakmetingen met passieve samplers uitgevoerd met hoge ruimtelijke resolutie in de Peel, Epe, de Gelderse Vallei en zuidoost Friesland. In Figuur 4.6 is de grote ruimtelijke variatie in concentratie zichtbaar op fijne regionale schaal. Deze variaties zijn groter dan op de landelijke schaal welke een meer grootschalige ammoniakconcentratie weergeeft. De regionale metingen worden aangeduid als provinciale data (Prov-data). De metingen hebben op dezelfde tijdsperiode (maand) betrekking.

Op locaties die direct worden beïnvloed door lokale bronnen worden concentraties gevonden van maandgemiddeld regelmatig meer dan $20 \mu\text{g m}^{-3}$ met in de zomermaanden waarden oplopend tot $50\text{-}70 \mu\text{g m}^{-3}$.

De provinciale data (Prov-data) zijn vergeleken met dicht in de buurt gelegen NL-meetpunten. In Figuur 4.7 is de ligging te zien van de Prov-meetpunten t.o.v. de NL-meetpunten d20 (de Peel), fl (Epe), en meetpunten in zuidwest Friesland en de Gelderse Vallei.

Om de variabiliteit weer te geven van de Prov-data t.o.v. de NL-data zijn voor de meetpunten d20 (de Peel) en d2 in de Gelderse Vallei de maandelijkse Prov-metingen uitgezet tegen de bijbehorende NL-meting in Figuren 4.8 en 4.9. Duidelijk is de grote spreiding in de Prov-data ten opzichte van het NL-meetpunt d20. Ieder bolletje representeert op de x-as de maandgemiddelde NH₃-concentratie in d20 en op de y-as de bijbehorende gemiddelde NH₃-concentratie voor de Prov-data binnen het 10x10 km kwadrant. Om een regressielijn uit te rekenen dienen de Provengegevens eerst zodanig getransformeerd te worden, dat de spreiding niet meer oploopt voor grotere waarden op de x-as. Dit gebeurt via een Box-Cox transformatie met parameter lambda

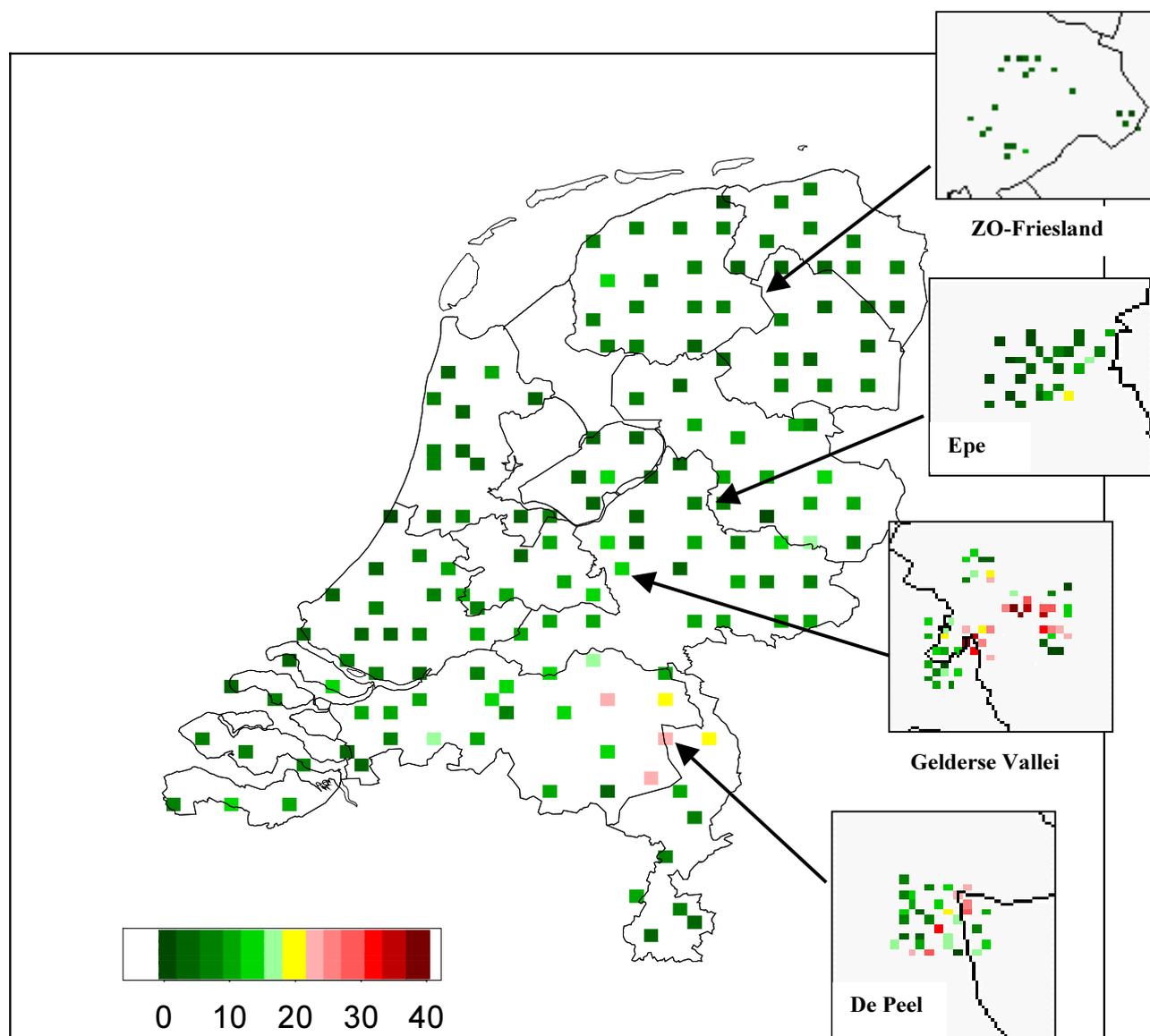
(λ), waarvoor de optimale waarde gebruikt wordt. De lineaire regressie op de getransformeerde gegevens verklaart voor d20 slechts 11% van de variantie en het verwijderen van een enkele uitschieter biedt niet veel soulaas. Vervolgens kunnen de regressielijn en de bijbehorende betrouwbaarheidsintervallen (grijs is het 95% betrouwbaarheidsinterval behorende bij de verwachte voorspellingen, dat is de regressielijn zelf en oranje zijn de 95% betrouwbaarheidsintervallen indien er een nieuw meetpunt toegevoegd zou worden). Uit Figuur 4.8 blijkt dat op het meetpunt d20 gemiddeld hogere waarden worden gemeten dan in het Prov-meetnet en dat er een enorme spreiding tot bijna twee maal de gemeten waarde van d20 geen uitzondering is voor het Prov-meetnet. Dit benadrukt het belang om zeer nauwkeurig de ligging van elk meetpunt te bepalen en te onderzoeken wat de invloeden van omliggende stallen of andere emissiebronnen is.

In Figuur 4.9 staan de resultaten van een zelfde analyse weergegeven voor station d2 in de Gelderse Vallei. De regressielijn in deze figuur verklaart zo'n 40% van de variantie en voor dit station komen de Prov-data gemiddeld wel goed overeen met de metingen in d2. De lijn $y=x$ ligt geheel binnen het 95% betrouwbaarheidsinterval (grijze lijnen) om de gemiddelde voorspelde waarde van de lineaire regressie (de blauwe lijnen).

Hetzelfde geldt voor de 10x10 km kwadranten rondom de stations a3 en g2 in de Gelderse Vallei en voor e21 in zuidwest Friesland. De Prov-waarnemingen rondom e19 zijn systematisch zo'n $3 \mu\text{g m}^{-3}$ te laag, dat is zo'n 30-50%.

Het feit dat erg hoge concentraties, veroorzaakt door de invloed van lokale bronnen, in een set van metingen worden gevonden heeft tot gevolg dat bij het maken van een concentratieveld van ammoniak fouten kunnen optreden door het onder- en overschatten van lokale effecten. Als 'te hoge' concentraties niet worden herkend als zijnde veroorzaakt door lokale bronnen en worden meegenomen bij het bepalen van een concentratie treedt er (lokaal) een overschatting op. Andersom, als metingen worden weggelaten omdat ontorecht wordt verondersteld dat ze zijn beïnvloed door lokale bronnen treedt een onderschatting op. Een zorgvuldige analyse van de omgeving van een meetpunt is dus belangrijk. In sectie 4.3 is een statistische aanpak gekozen voor het herkennen van uitschieters in de ammoniakmeetdata.

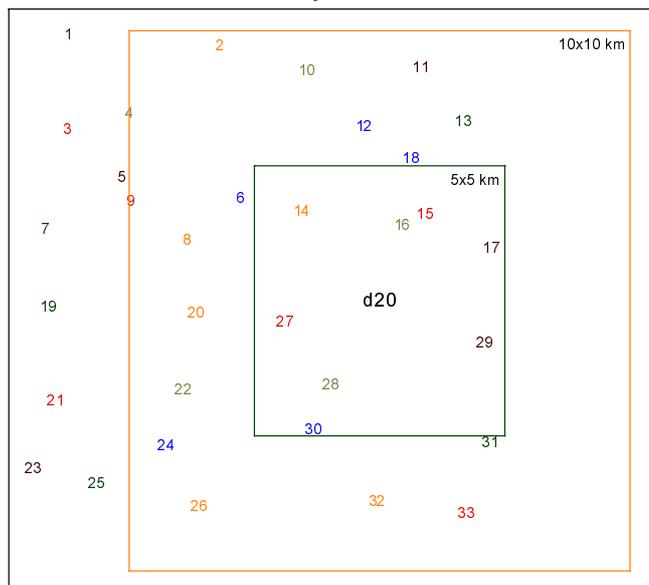
Provinciale data NH₃ september 2000



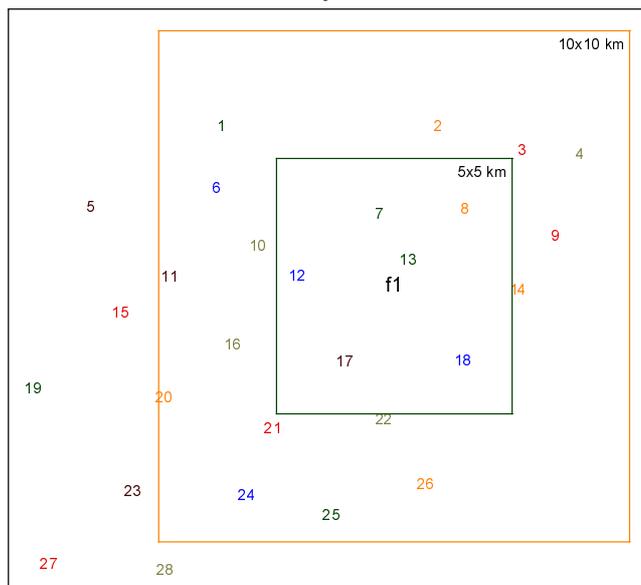
Figuur 4.6 Metingen van NH₃-concentraties ($\mu\text{g m}^{-3}$) door provincies weergegeven in het grid van metingen in heel Nederland voor september 2000.

De provinciale data bevinden zich in een gebied van ongeveer 20 x 20 km voor ZO-Friesland, 8 x 8 km voor Epe, 15 x 15 km voor de Gelderse Vallei en 8 x 8 km voor De Peel.

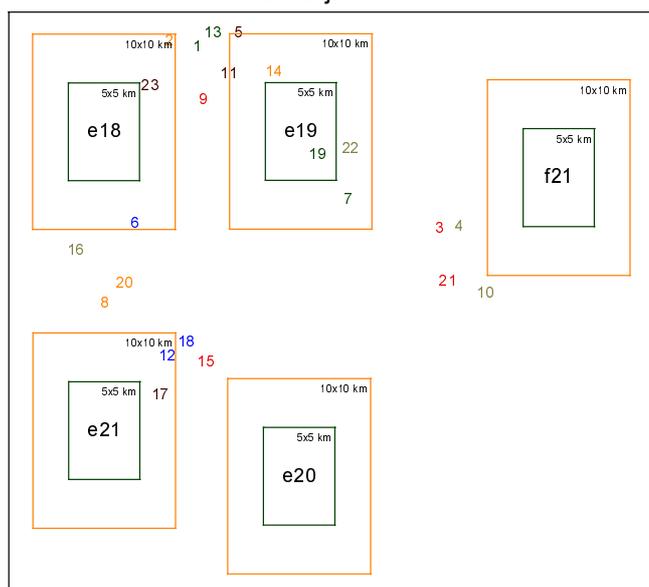
Peel : prov. stations in 5x5 resp. 10x10 km kwadrant om landelijk station d20



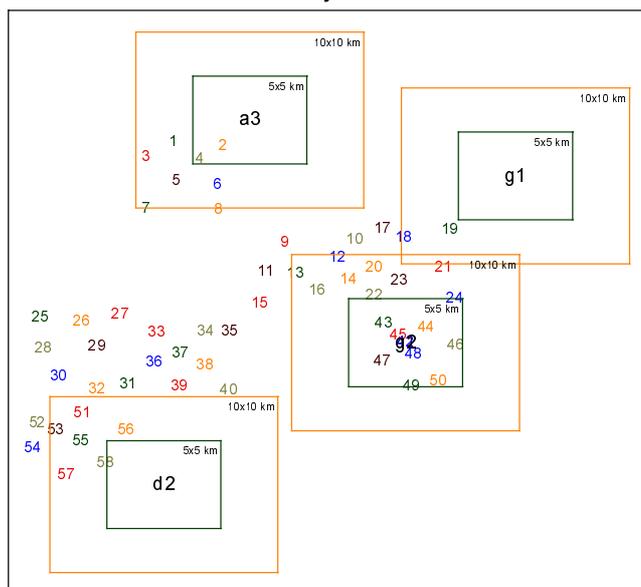
Epe : prov. stations in 5x5 resp. 10x10 km kwadrant om landelijk station f1



Friesland : prov. stations in 5x5 resp. 10x10 km kwadrant om landelijke stations

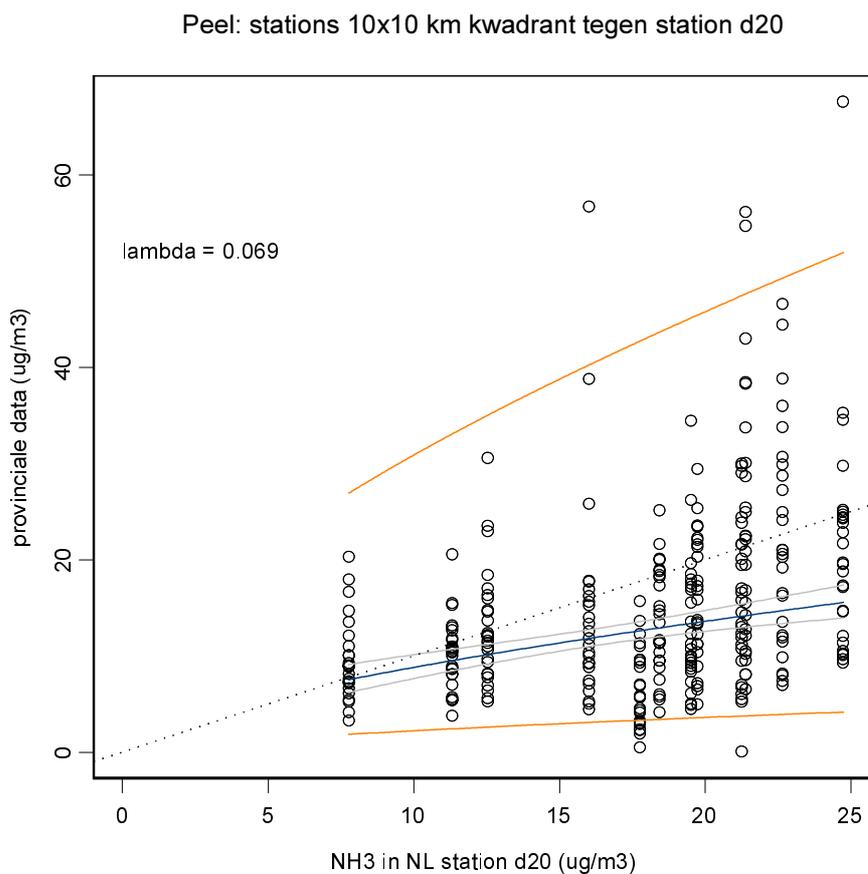


Gelderse Vallei : prov. stations in 5x5 resp. 10x10 km kwadrant om landelijke stations



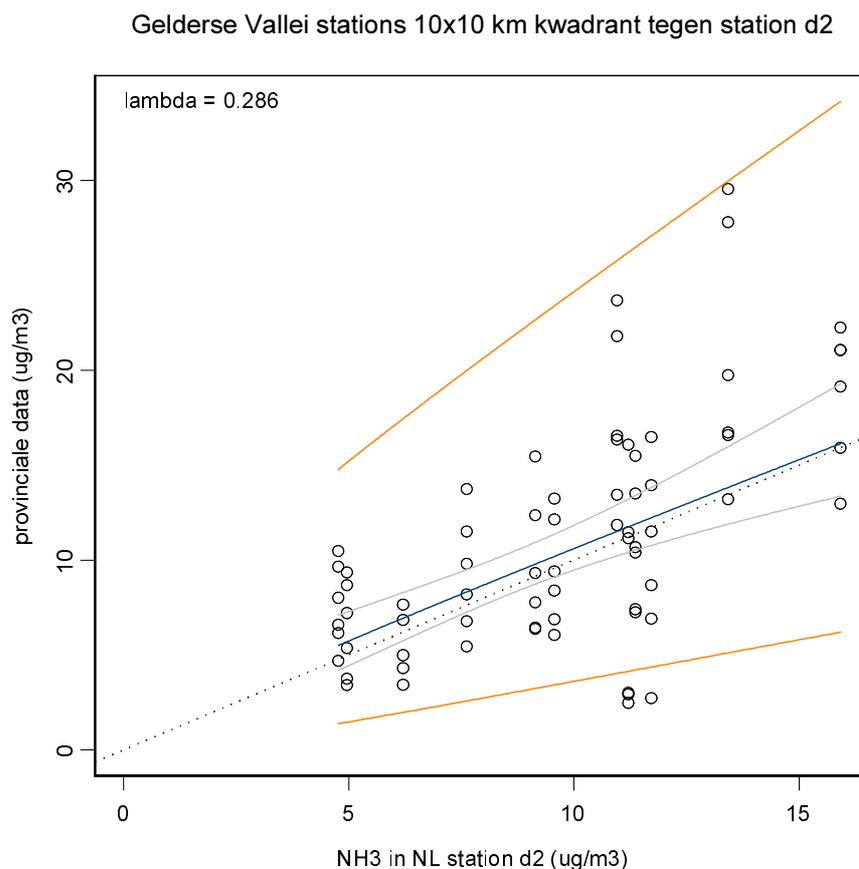
Figuur 4.7 Ligging van de Prov-stations t.o.v. NL-stations voor resp. de Peel (d20), Epe (f1), zuidwest Friesland (e18, e19, e20, e21 en f21) en de Gelderse Vallei (a3, d2, g1 en g2).

De gekleurde nummers zijn de Prov-meetpunten en om de NL-meetpunten zijn twee kwadranten getrokken zijn van resp. 5x5 km en 10x10 km. Alleen de Prov-meetpunten binnen een kwadrant zijn meegenomen bij de analyses voor de vergelijking van de meetresultaten. Merk op dat 2 Prov-meetpunten die zeer dicht bij d20 (de Peel) liggen niet in de figuur zijn weergegeven.



Figuur 4.8 Maandelijksse NH_3 -metingen van het Prov-meetnet uitgezet tegen de bijbehorende maandelijksse NH_3 -concentratie op NL-station d20 (de Peel).

Lambda geeft de optimale Box-Cox transformatie weer (in dit geval bijna een log-transformatie) die ervoor zorgt dat de spreiding in de Prov-data constant is voor alle meetwaarden in d20. De regressielijn (blauw) met bijbehorend 95% betrouwbaarheidsinterval (grijs) zijn berekend op basis van de getransformeerde gegevens en vervolgens teruggetransformeerd. De enorme spreiding in de Prov-data wordt tevens weergegeven door de oranje 95% betrouwbaarheidsintervallen voor een nieuwe meting. De gestippelde lijn is de lijn $y=x$.

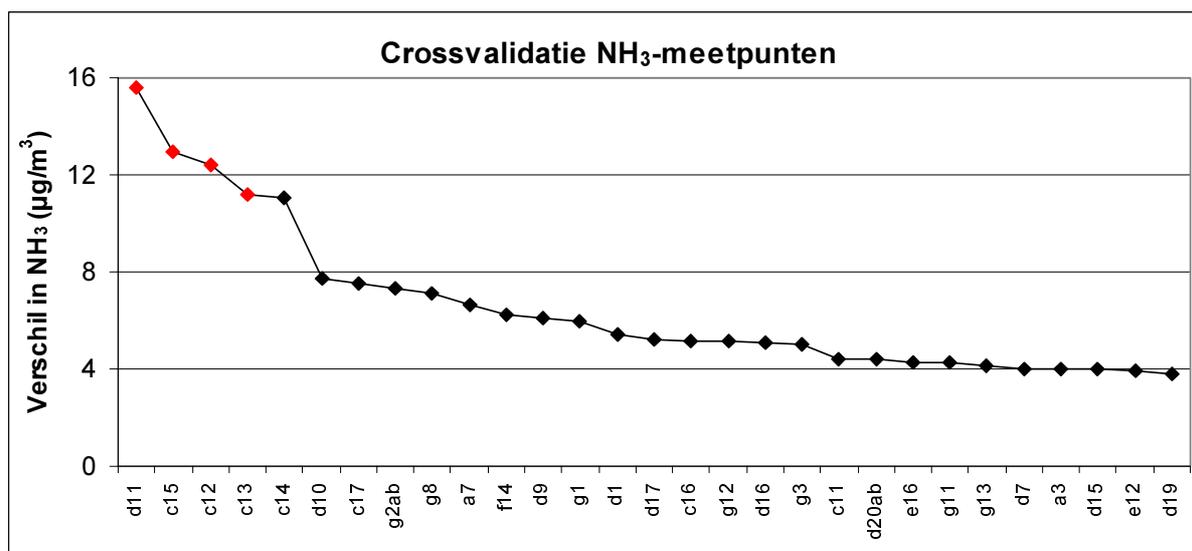


Figuur 4.9 Maandelijkse NH_3 -metingen van het Prov-meetnet uitgezet tegen de bijbehorende maandelijkse NH_3 -concentratie op NL-station d2 in de Gelderse Vallei.

Lambda geeft de optimale Box-Cox transformatie weer, die ervoor zorgt dat de spreiding in de Prov-data constant is voor alle meetwaarden in d2. De regressielijn (blauw) met bijbehorend 95% betrouwbaarheidsinterval (grijs) zijn berekend op basis van de getransformeerde gegevens en vervolgens teruggetransformeerd en hier op de oorspronkelijke schaal weergegeven. De spreiding in de Prov-data wordt tevens weergegeven door de oranje 95% betrouwbaarheidsintervallen voor een nieuwe meting. De gestippelde lijn is de lijn $y=x$ en deze blijkt nu geheel in het betrouwbaarheidsinterval om de voorspelde lijn te liggen..

4.3 Invloed lokaal beïnvloede meetpunten op ammoniakconcentratie

In sectie 4.1 lag de nadruk op de ammoniakconcentratie op het 15 x 15 km grid en zijn vier meetpunten die niet representatief zijn verondersteld voor de concentratie op dit grid niet meegenomen in de interpolatie en analyses. Deze vier meetpunten liggen op minder dan 75 m van een grote stal. Het betreft meetpunten in Noord-Brabant (c12, c13 en c15) en Limburg (d11). De meetpunten zijn waarschijnlijk sterk beïnvloed door lokale emissies van de dichtbij gelegen stallen. Het doel van de meetcampagne was om een beeld te krijgen van de meer grootschalige ammoniakconcentraties in Nederland. Meetpunten dicht bij grote stallen worden sterk beïnvloed door de emissies van deze stallen en zijn daardoor niet representatief voor de concentratie in dat gebied. Aangezien deze vier meetpunten afwijken van de andere 155 meetpunten wat betreft hun hoge meetwaarde en ruimtelijke representativiteit zijn ze buiten de beschouwingen van de voorgaande secties gelaten. De rechtvaardiging van het weglaten van deze punten wordt hier nader toegelicht en de invloed van het wel meenemen van deze punten in de interpolatie wordt besproken.

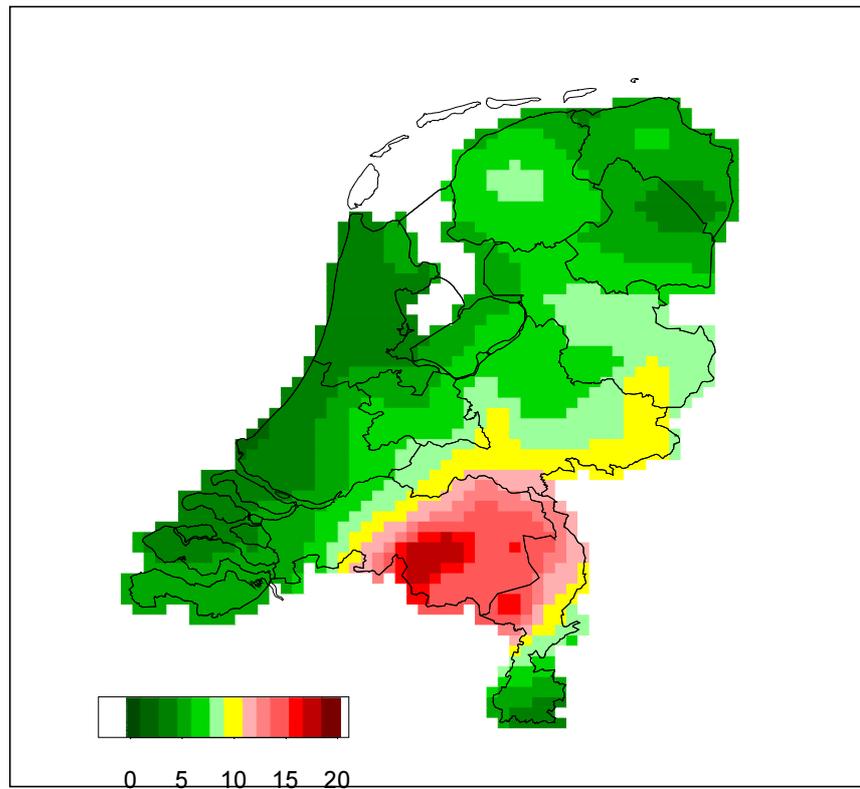


Figuur 4.10 Crossvalidatie van de NH₃-krigingpredicties voor alle meetpunten gesorteerd op grootte.

Absoluut verschil tussen predictie op een meetlocatie is bepaald op basis van alle meetpunten en de predictie op basis van alle meetpunten minus het ene meetpunt (jaargemiddeld). De rode punten zijn de vier lokaal beïnvloede meetpunten.

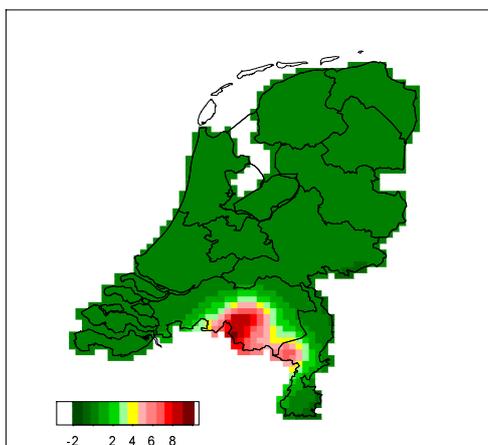
Om na te gaan of de vier meetpunten (c12, c13, c15 en d11) een andere karakteristiek hebben dan de overige 155 is een crossvalidatie uitgevoerd. Hierbij is voor een meetpunt het verschil bepaald tussen de krigingpredictie op basis van alle meetpunten en de krigingpredictie op basis van alle meetpunten minus het ene meetpunt. Deze procedure is uitgevoerd voor alle meetpunten en gemiddeld over de 12 maanden. In Figuur 4.10 staan de absolute verschillen in predicties weergegeven. Vijf meetpunten wijken qua karakteristiek duidelijk af van de andere meetpunten: zij vertonen de grootste verschillen in predicties bij de crossvalidatie. Dit zijn de vier meetpunten die dicht bij grote stallen liggen (d11, c15, c12 en c13) en een meetpunt (c14) dat omringd wordt door de andere vier meetpunten waardoor zijn predictie sterk door deze punten wordt beïnvloed. Een crossvalidatie uitgevoerd op de (155) waarnemingen exclusief deze vier meetpunten levert verschillen in predicties die kleiner zijn dan $7 \mu\text{g m}^{-3}$. De grote predictieverschillen van de vier betreffende meetpunten geven aan dat deze punten afwijken van de andere meetpunten en niet gekarakteriseerd kunnen worden als representatief voor de NH₃-concentratie op het 15 x 5 km grid. Het zijn echter wel goede metingen alleen worden zij zeer waarschijnlijk sterk door lokale emissies (van grote stallen) beïnvloed.

In Figuur 4.11 staat de NH₃-concentratie bepaald met meeneming van de vier lokaal beïnvloede meetpunten in Brabant/Limburg. Het 12-maandsgemiddelde is bepaald door het gemiddelde te nemen van de krigingpredicties van de maandwaarden. Voor alle predicties is hetzelfde semi-variogram gebruikt als afgeleid voor Figuur 4.1. In Figuur 4.12 staat de invloed van de vier lokaal beïnvloede meetpunten op de NH₃-concentratie (=Figuur 4.11 minus Figuur 4.1). Buiten Noord-Brabant en Limburg is de invloed van de vier lokaal beïnvloede meetpunten kleiner dan $0,5 \mu\text{g m}^{-3}$. Dicht bij de vier meetpunten loopt de invloed van deze punten op tot $10 \mu\text{g m}^{-3}$. Dit soort lokale effecten, veroorzaakt door meetpunten die sterk lokaal worden beïnvloed, komen niet alleen in Brabant/Limburg voor. Het lokale karakter van ammoniak (emissies, depositie, afbraak en verspreiding) resulteert in een ruimtelijk sterk variërend patroon in de ammoniakconcentratie in Nederland met hoge concentraties dicht (binnen een paar km) in de buurt van bronnen. Dit is geïllustreerd in Figuur 4.6.

Gemiddeld NH₃ (incl. lokaal beïnvloede stations)

Figuur 4.11 Gemiddelde NH₃-concentratie ($\mu\text{g m}^{-3}$) van september 2000 t/m augustus 2001 bepaald inclusief de vier lokaal beïnvloede meetpunten.

Gem. NH₃: Effect lokaal beïnvloede stations



=Figuur 4.11 minus Figuur 4.1

Figuur 4.12 Invloed vier lokaal beïnvloede stations op NH₃-concentratie ($\mu\text{g m}^{-3}$).

5. Conclusies

Van september 2000 t/m september 2001 zijn op 159 locaties in Nederland, met passieve samplers, ammoniakmetingen verricht. De metingen zijn geïnterpoleerd via de geostatistische methode kriging. De volgende conclusies kunnen worden getrokken over de metingen en geïnterpoleerde concentratievelden met betrekking tot de ammoniakconcentratie representatief voor het 15 x 15 km grid en lokale verhogingen in Nederland:

- Per maand komen de hoogste ammoniakconcentraties (op het 15 x 15 km grid) voor in het oosten van Noord-Brabant en noorden van Limburg met een 12-maandsgemiddelde concentratie van $15 \mu\text{g m}^{-3}$. Verhoogde concentraties van tegen de $10 \mu\text{g m}^{-3}$ komen voor in de Gelderse Vallei, de Achterhoek en Twente en van ongeveer $7 \mu\text{g m}^{-3}$ in het midden van Overijssel en Friesland.
- De maandgemiddelde ammoniakconcentratie in Nederland, bepaald uit ruimtelijk geïnterpoleerde velden, varieerde van $4 \mu\text{g m}^{-3}$ in het najaar van 2000 tot $9,6 \mu\text{g m}^{-3}$ in mei 2001. Het 12-maandsgemiddelde is $6,6 \mu\text{g m}^{-3}$ met een ruimtelijke spreiding (25- en 75-percentielwaarden) van $4,6$ tot $8,2 \mu\text{g m}^{-3}$. Het jaargemiddelde van 155 meetlocaties (159 minus 4 afgekeurde locaties) levert ook $6,6 \mu\text{g m}^{-3}$ op. De gemiddelde ammoniakconcentratie van de passieve samplermetingen op de acht LML-locaties is hoger met $7,8 \mu\text{g m}^{-3}$. Het gemiddelde van de metingen op de acht LML-locaties is dus 18% hoger dan het gemiddelde voor Nederland.
- De absolute interpolatiefout voor de maandgemiddelde concentraties ligt over heel Nederland tussen $2,4$ en $2,8 \mu\text{g m}^{-3}$. Dit komt overeen met een relatieve fout van 50-80% in gebieden met lage concentraties (westen) tot 15% in gebieden met de hoogste concentraties (oosten van Noord-Brabant en noorden van Limburg).
- De duplo-metingen met passieve samplers op de acht LML-locaties geven een spreiding ten gevolge van meetfouten die kleiner is dan de ruimtelijke representativiteit van de passieve samplermetingen. De meetfout wordt gelijk gesteld aan de standaard deviatie in de duplo-metingen en bedraagt (afgerond) $1 \mu\text{g m}^{-3}$, terwijl de representatiefout wordt geschat op $2 \mu\text{g m}^{-3}$ (afgeleid uit het verschil tussen de wortel uit de gemiddelde nugget van de semi-variogrammen en de meetfout).
- In opdracht van enkele provincies zijn in dezelfde periode op een fijnere ruimtelijke schaal metingen uitgevoerd rondom Epe, in De Peel, in de Gelderse Vallei en in zuidoost-Friesland. Deze metingen vertonen een grote spreiding in concentratie.
- Op een fijne regionale schaal (<10 km) kunnen lokale bronnen een grote invloed hebben op de ammoniakconcentratie resulterend in hoge concentraties. Dit kan zich in heel Nederland voordoen en maakt het moeilijk om goede achtergrondstations te definiëren.
- De gemiddelde concentratie van de provinciale metingen rondom Epe en in De Peel komt redelijk overeen met de concentratie gemeten op dichtbij gelegen meetpunten uit de set van 159 waaruit geconcludeerd kan worden dat deze laatste meetpunten representatief zijn voor hun omgeving.

Literatuur

Bogaard, A.J., en J. Duyzer, Een vergelijk tussen resultaten van metingen en berekeningen van de concentratie van ammoniak in de buitenlucht op een schaal kleiner dan 5 kilometer, TNO-MEP rapport R 97/423, 1998.

Chilès, J.-P., en P. Delfiner, Geostatistics, modeling spatial uncertainty, Wiley, New York, ISBN 0 471 08315 1, 1999.

Dekkers, A.L.M., S-plus voor het RIVM, Krachtig statistische software gereedschap, RIVM rapport 422516 001, 2001.

Duyzer, J.H., en J.H. Weststrate, Kartering van het concentratieveld van ammoniak over Nederland, TNO rapport R 2002/074, 2002.

RIVM, Milieubalans 1997, Samsom H.D. Tjeenk Willink, Alphen aan den Rijn, ISBN 90 4220 100 2, 1997.

RIVM, Milieubalans 2000, Kluwer, Alphen aan den Rijn, ISBN 90 140 7190 6, 2000.

Thijssen, Th. R., J.H. Duyzer, H.L.M. Verhagen, G.P. Wyers, A. Wayers en J.J. Möls, Measurements of ambient ammonia with diffusion tube samplers, Atmos. Environ. 32, 333-337, 1998.

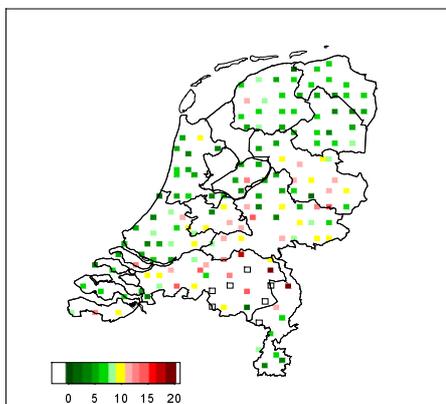
Van Jaarsveld, J.A., A. Bleeker en N.J.P. Hoogervorst, Evaluatie ammoniak emissiereducties met behulp van metingen en modelberekeningen, RIVM rapport 722108 025, 2000.

Van Jaarsveld, J.A., en W.A.J. van Pul, RIVM rapport in voorbereiding, 2002.

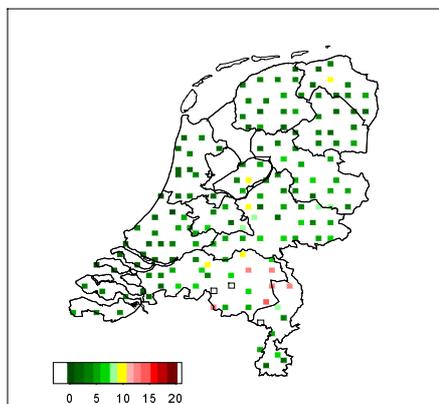
Bijlage 1 Kaarten meetpunten

Gemeten ammoniakconcentraties ($\mu\text{g m}^{-3}$) op de 159 locaties. Open vierkantjes geven gemeten concentraties hoger dan $20 \mu\text{g m}^{-3}$ aan.

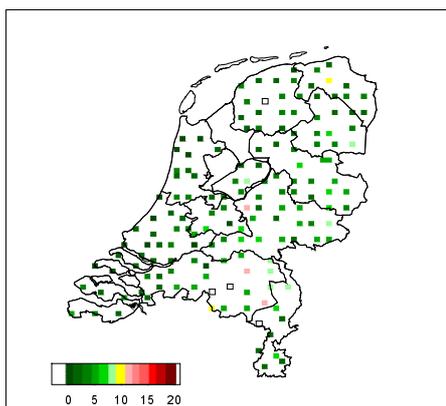
september 2000



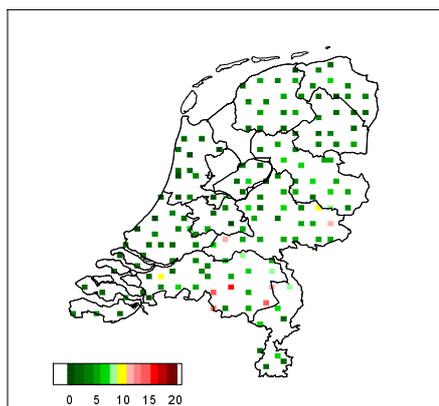
oktober 2000



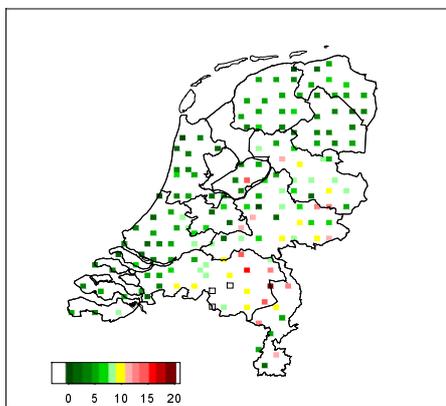
november 2000



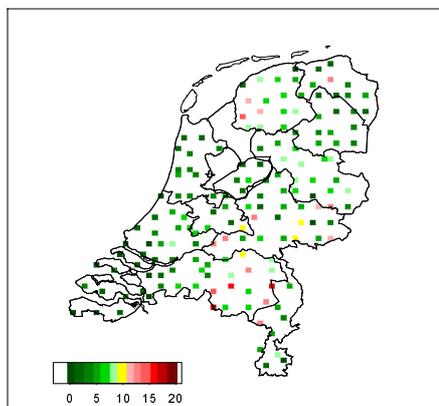
december 2000



januari 2001

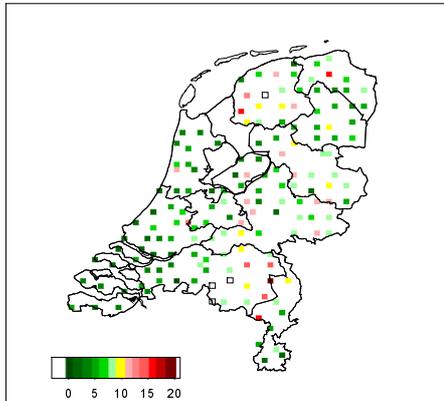


februari 2001

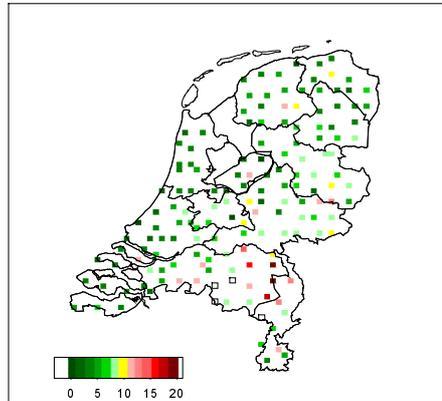


Vervolg bijlage 1: kaarten meetpunten.

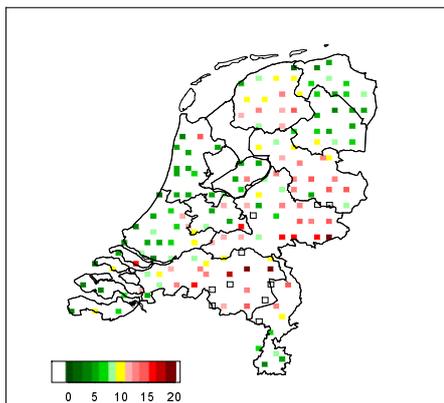
maart 2001



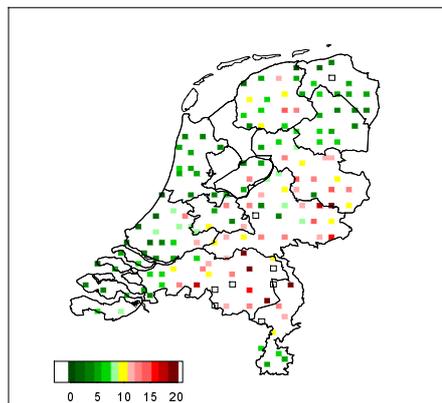
april 2001



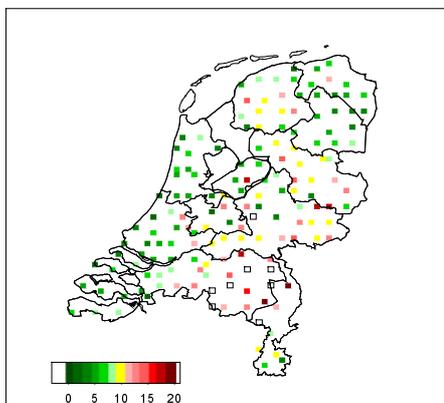
mei 2001



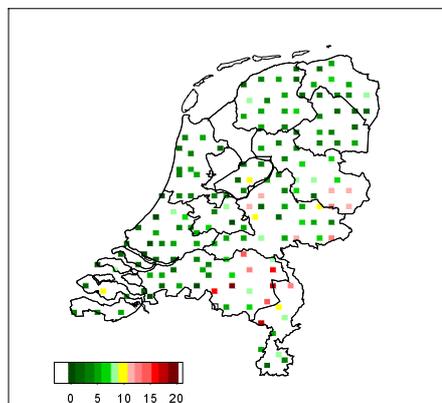
juni 2001



juli-augustus 2001

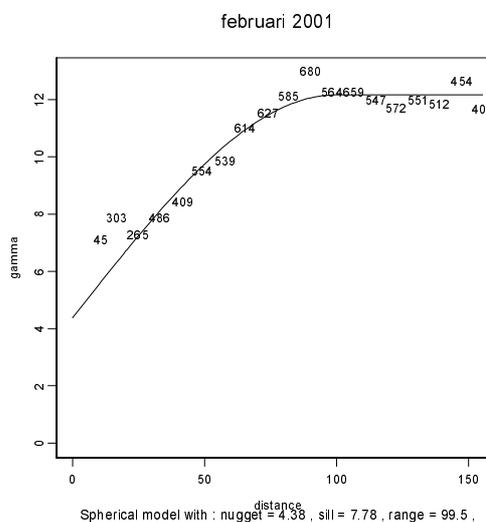
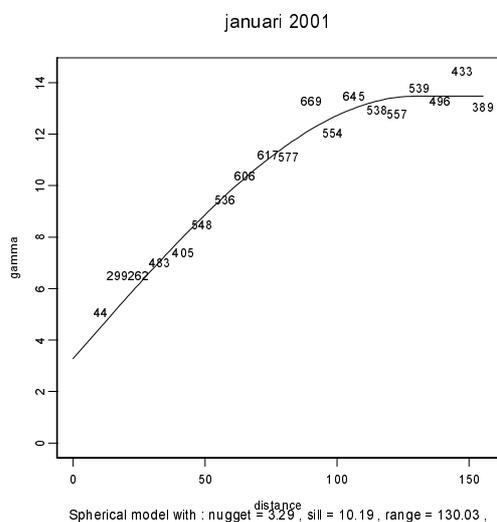
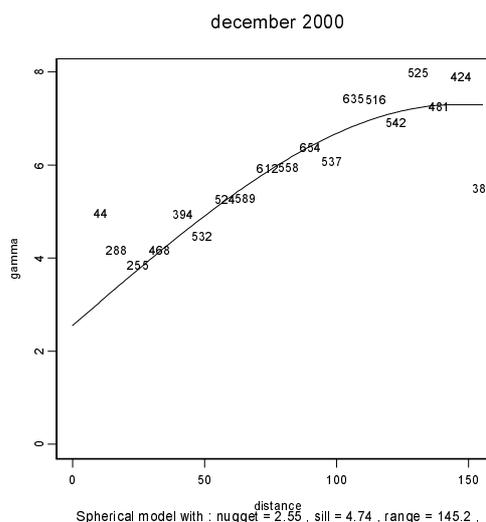
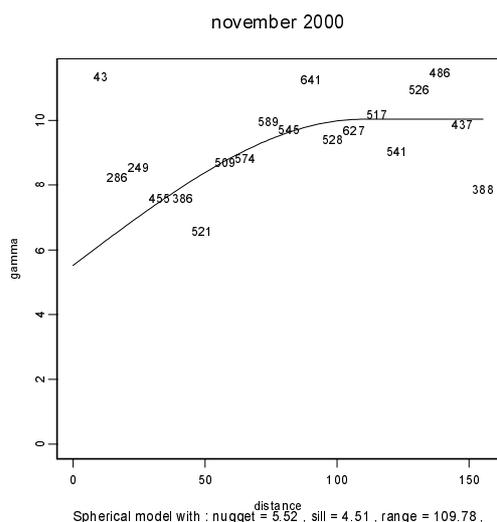
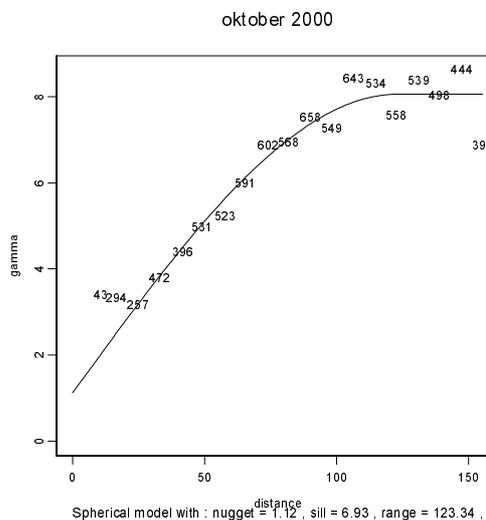
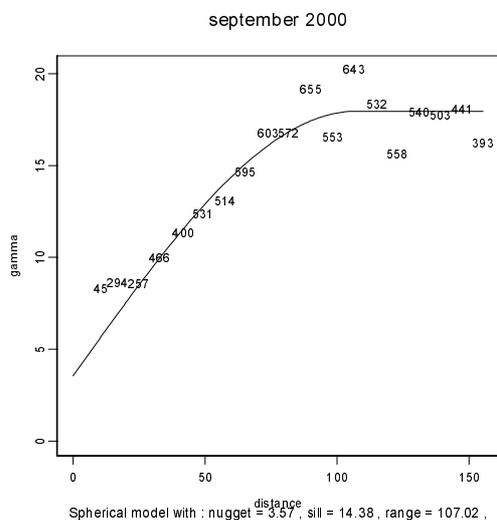


september 2001

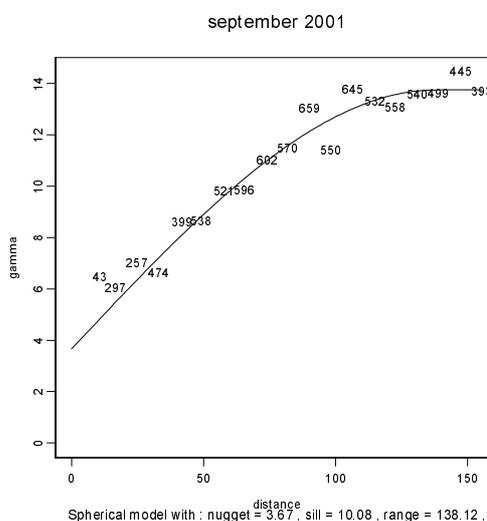
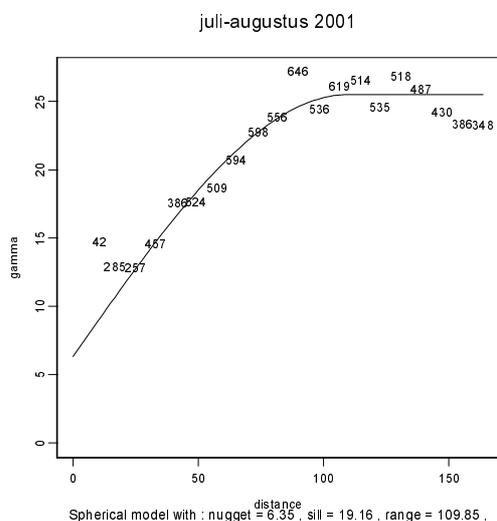
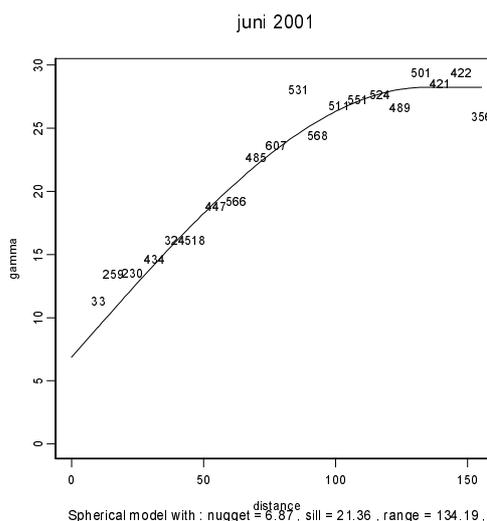
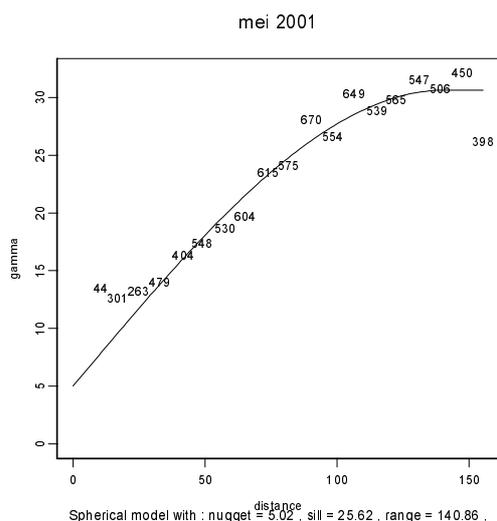
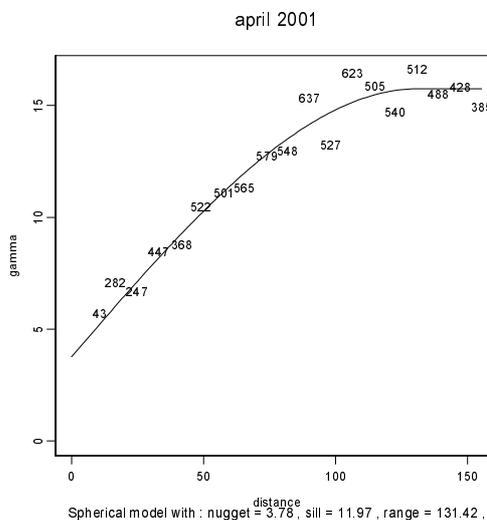
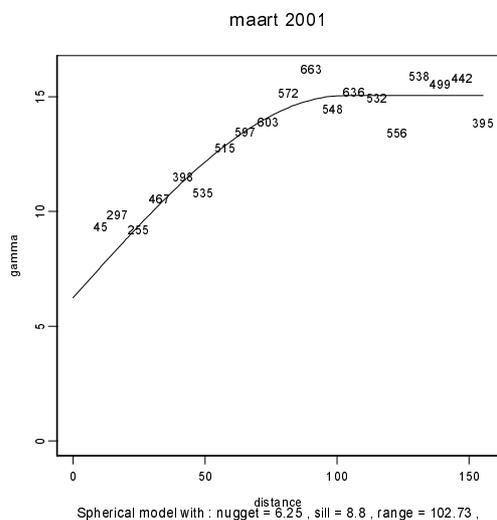


Bijlage 2 Variogrammen

Empirische semi-variogrammen weergegeven met getallen (= aantal paren op gelijke afstand) en de gefitte sferisch variogrammen (getrokken curves) voor september 2000 t/m september 2001.



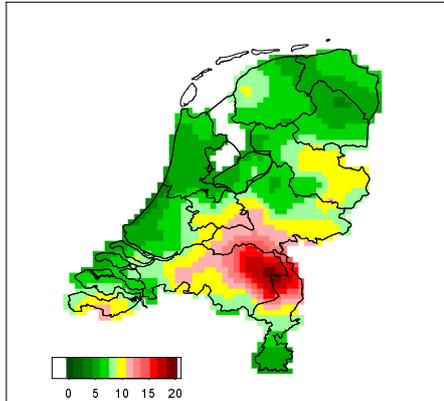
Vervolg bijlage 2: variogrammen.



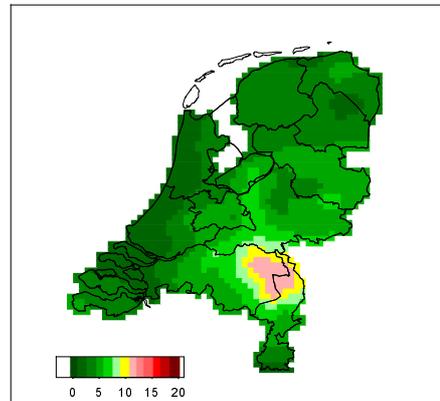
Bijlage 3 NH_3 -concentraties per maand

Geïnterpoleerde (kriging) ammoniakconcentraties ($\mu\text{g m}^{-3}$) per maand van september 2000 t/m september 2001.

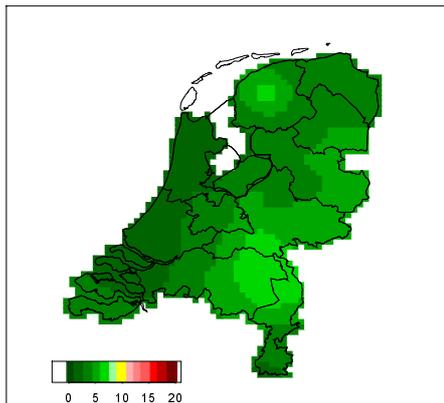
september 2000



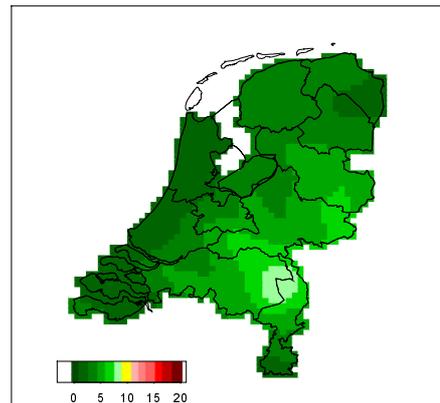
oktober 2000



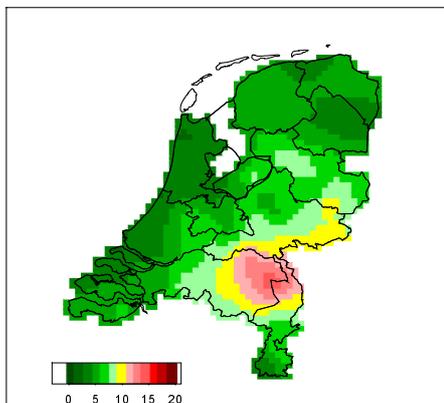
november 2000



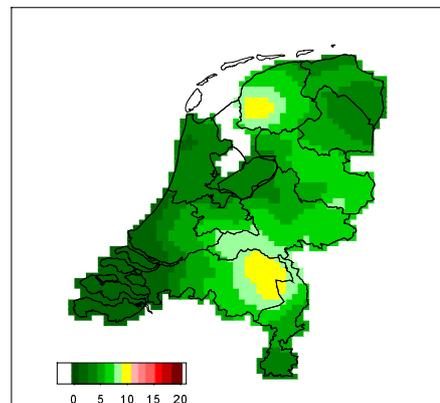
december 2000



januari 2001

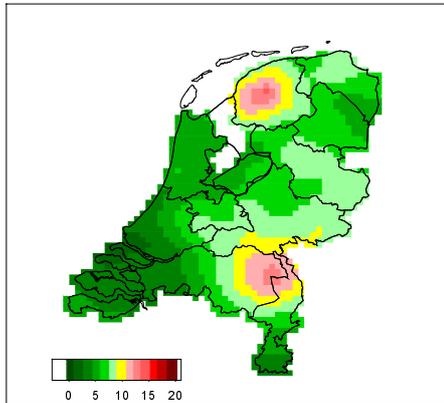


februari 2001

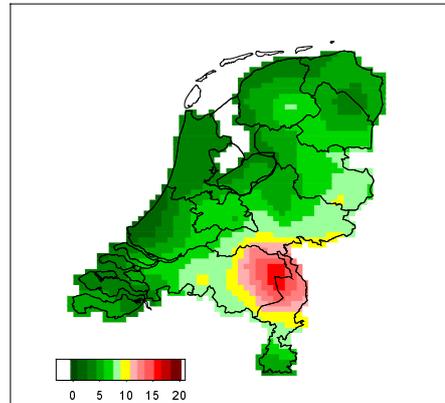


Vervolg bijlage 3: NH₃-concentraties ($\mu\text{g m}^{-3}$) per maand.

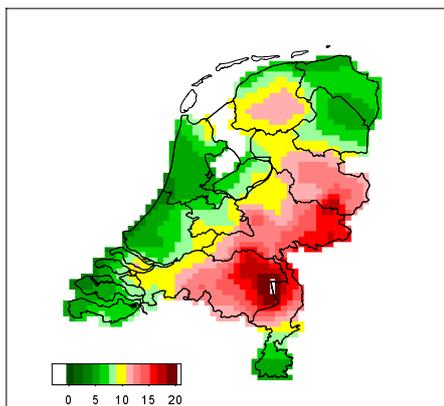
maart 2001



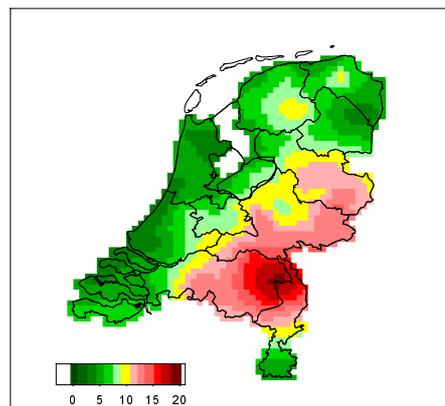
april 2001



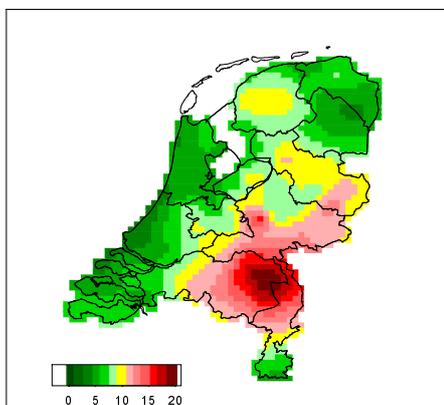
mei 2001



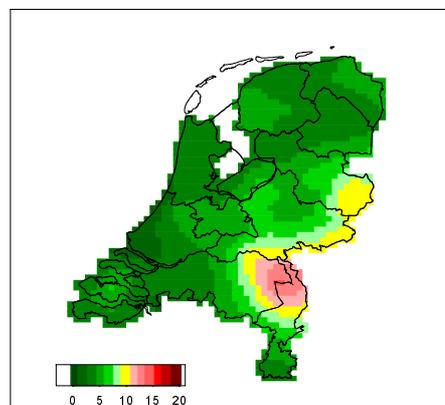
juni 2001



juli-augustus 2001



september 2001



Bijlage 4 Krigingpredictie-karakteristieken per maand

In Tabel B.1 staan de gemiddelden over Nederland van de krigingpredicties, de fouten (absoluut en relatief), de minimum, maximum en 25- en 75 percentielwaarden. De absolute waarde van de kriging predictiefouten vertonen weinig variatie over Nederland.

Tabel B.1 Schattingen van de krigingpredicties over Nederland (gemiddelde, absolute en relatieve fout, minimum, maximum, 25- en 75 percentielen) behorende bij de geïnterpoleerde ammoniakconcentraties per maand van september 2000 t/m september 2001.

| Dataset | Min. µg m⁻³ | 25-perc. µg m⁻³ | Gemiddeld µg m⁻³ | 75-perc. µg m⁻³ | Max. µg m⁻³ | Fout µg m⁻³ | Relatieve fout (%) |
|--------------------|---|---|--|---|---|---|-------------------------------------|
| September 2000 | 3,6 | 5,9 | 8,0 | 9,4 | 19,2 | 2,5 | 35 |
| Oktober 2000 | 1,4 | 3,0 | 4,4 | 5,2 | 11,9 | 1,5 | 40 |
| November 2000 | 1,3 | 2,9 | 3,8 | 4,8 | 7,4 | 2,6 | 81 |
| December 2000 | 1,2 | 2,7 | 3,9 | 4,8 | 8,5 | 1,9 | 57 |
| Januari 2001 | 2,6 | 4,4 | 6,1 | 7,5 | 14,5 | 2,3 | 42 |
| Februari 2001 | 1,2 | 3,5 | 5,1 | 6,5 | 10,5 | 2,5 | 62 |
| Maart 2001 | 2,4 | 4,9 | 6,7 | 8,1 | 13,8 | 2,9 | 50 |
| April 2001 | 1,3 | 4,3 | 6,3 | 7,7 | 16,5 | 2,4 | 46 |
| May 2001 | 3,3 | 6,5 | 9,6 | 12,1 | 20,5 | 3,0 | 36 |
| Juni 2001 | 2,7 | 5,4 | 8,4 | 11,1 | 18,9 | 3,3 | 47 |
| Juli-Augustus 2001 | 3,3 | 6,0 | 8,6 | 10,4 | 19,7 | 3,2 | 43 |
| September 2001 | 1,7 | 3,6 | 5,2 | 6,0 | 13,8 | 2,3 | 53 |

Bijlage 5 Verzendlijst

- 1 Directeur-Generaal RIVM, H.A.P.M. Pont
- 2 Directeur Milieu- Natuurplanbureau, N.D. van Egmond
- 3 M. Alessi (DGM)
- 4 M. de Bode (LNV)
- 5 P. Boei (Prov. Gelderland)
- 6 W. de Boer (Prov. Friesland)
- 7 W. Bruins (IKC Landbouw)
- 8 E. Dame (DGM)
- 9 J.H. Duyzer (TNO/MEP)
- 10 L. van der Eerden (Alterra)
- 11 M. van Eerd (CBS)
- 12 J.W. Erisman (ECN)
- 13 K. Folkertsma (Prov. Drenthe)
- 14 P. Hofschreuder (WUR)
- 15 H. Kuypers (LNV)
- 16 H. Leneman (LEI-DLO)
- 17 S. Mesu (IKC, Landbouw)
- 18 G.J. Monteny (IMAG-DLO)
- 19 H. Spiertz (WUR)
- 20 L. van Staalduinen (LEI-DLO)
- 21 J. Sliggers (DGM)
- 22 S. Smeulders (DGM)
- 23 J. Steenvoorden (Alterra)
- 24 A. Stein (WU)
- 25 C. Venderbos (Prov. Noord-Brabant)
- 26 W. de Vries (Alterra)
- 27 J.H. Weststrate (TNO/MEP)
- 28 J.M.M. Aben (RIVM/LLO)
- 29 R.A.W. Albers (RIVM/MON)
- 30 J.P. Beck (RIVM/LLO)
- 31 A.H.M. Bresser (RIVM/LWD)
- 32 E. Buijsman (RIVM/LLO)
- 33 H.S.M.A. Dieren (RIVM/LLO)
- 34 H.C. Eerens (RIVM/LLO)
- 35 A. van der Giessen (RIVM/CIM)
- 36 J. van de Kassteele (RIVM/LLO)
- 37 F. Langeweg (RIVM/MNP)
- 38 F.A.A.M. de Leeuw (RIVM/LLO)
- 39 K. van de Hoek (RIVM/LAE)
- 40 D. van Lith (RIVM/LLO)
- 41 J.F. de Rooter (RIVM/LLO)
- 42 D. van Straalen (RIVM/MON)
- 43 H. Visser (RIVM/CIM)
- 44-48 Auteurs
- 49 Depot Nederlandse Publikaties en Nederlandse Bibliografie
- 50 SBC/Communicatie
- 51 Bureau Rapportenregistratie
- 52 Bibliotheek RIVM
- 53 Bibliotheek LLO
- 54-63 Bureau Rapportenbeheer
- 64-90 Reserve exemplaren