

RIVM rapport 725501006/2002

**Berekende ammoniakconcentraties in  
Nederland vergeleken met de  
intensiveringsmetingen met passieve samplers**

J.A. van Jaarsveld en W.A.J van Pul

Dit onderzoek werd verricht in opdracht en ten laste van het ministerie van VROM in het kader van project M/725501, Verzuuring en grootschalige luchtverontreiniging, (mijlpaal Rapportage NH<sub>3</sub>-gat).

## Abstract

From September 2000 to September 2001 the ammonia concentrations in air were measured on a monthly basis at 159 locations in the Netherlands using passive samplers. Goals were to: a) check the representativeness of the ammonia concentration measurement locations in the National Air Quality Monitoring Network (LML in Dutch), b) discover the spatial pattern of the ammonia concentration in the Netherlands and c) determine the level of success in simulating the concentration pattern with the OPS model. Part of the research was reported by Velders et al. (2002). This report presents a comparison between measured and calculated concentrations with the OPS model on the basis of ammonia emissions in the Netherlands and direct surroundings. Special attention is paid to the representativeness of the measurement locations.

The passive samplers were placed at representative locations with respect to the spatial pattern of the ammonia emissions. A relatively larger amount of the ammonia measurement stations in the LML are located in areas with high emissions.

In general, the spatial pattern of the ammonia concentrations at the 159 locations was found to be well-represented by the OPS model. The calculations came to about 30% lower than the measurements, which is in agreement with results in previous years on the basis of the regular LML stations. The comparison between measured and modelled concentrations was improved by using more detailed emission inventories (from a scale of 5x5 km to 500x500 m).

The comparison between measured and modelled concentrations shows no clear spatial pattern.

In principle, a representative ammonia concentration for the Netherlands can still be achieved working from the LML stations. However, since local conditions in the direct surroundings of the measurement locations may severely disturb the measurements and the comparison with model calculations, the local conditions should be monitored regularly.

## Voorwoord

Van september 2000 tot september 2001 is voor het karteren van de ammoniakconcentraties in Nederland op 159 lokaties met passieve samplers ammoniak gemeten. Deze activiteit komt voort uit de onderzoeksaanbevelingen gedaan in de discussie rond het 'ammoniakgat'. Dit onderzoek heeft in 2000 plaatsgevonden in het project Intensivering Meetinspanning Luchtkwaliteit (M/723130) en in 2001 zijn de meetactiviteiten ondergebracht in het project Monitoring Lucht (M/723101). De analyses van de metingen en de kartering van de resultaten vinden plaats in het project Meten en Modelleren (S/722601). De vergelijking met modelberekeningen en analyse in relatie tot het 'ammoniakgat' vinden plaats in het project Verzuring en Grootschalige Luchtverontreiniging (M/725501).

## Inhoud

|   |           |
|---|-----------|
| <b>Samenvatting</b>   | <b>5</b>  |
| <b>1. Inleiding</b>   | <b>6</b>  |
| <b>2. Metingen</b>  | <b>7</b>  |
| 2.1 Het intensiveringsmeetnet .....   | 7         |
| 2.2 LML metingen.....   | 8         |
| 2.3 LML metingen versus intensiveringsmetingen .....  | 9         |
| <b>3. Model- en emissiegegevens</b>   | <b>11</b> |
| 3.1 Atmosferische processen en model .....  | 11        |
| 3.2 Landelijke emissiegegevens .....  | 12        |
| 3.3 Representativiteit meetpunten met betrekking tot de emissies .....                                  | 13        |
| <b>4. Vergelijking tussen gemeten en berekende concentraties</b>  | <b>16</b> |
| 4.1 Het effect van de ruimtelijke resolutie van de emissiegegevens.....                                 | 16        |
| 4.2 Vergelijking van de met OPS berekende concentraties en de LML- en de intensiveringsmetingen.....    | 17        |
| 4.3 Ruimtelijke verschillen tussen de met OPS berekende concentraties en de intensiveringsmetingen..... | 19        |
| <b>5. Discussie</b>   | <b>21</b> |
| <b>6. Conclusies en aanbevelingen</b>   | <b>22</b> |
| 6.1 Algemeen .....  | 22        |
| 6.2 LML-specifiek.....  | 23        |
| 6.3 Nieuwe LML-meetlocaties.....  | 23        |
| <b>Literatuur</b>   | <b>25</b> |
| <b>Bijlage 1 Invloed van de detaillering van emissies op de berekende ammoniakconcentraties</b>         | <b>26</b> |
| <b>Bijlage 2 Assimilatie van ontbrekende waarnemingen</b>   | <b>30</b> |
| <b>Bijlage 3 Verzendlijst</b>   | <b>35</b> |

## Samenvatting

Gedurende één jaar (september 2000-september 2001) is in Nederland op 159 lokaties met passieve samplers de maandelijkse concentratie van ammoniak bepaald. Het doel van de metingen was driedelig: a) te onderzoeken hoe goed de representativiteit van de LML-stations is, b) een ruimtelijk dekkend beeld van de ammoniakconcentratie over Nederland te verkrijgen en c) te onderzoeken hoe goed dit beeld berekend kan worden met het OPS-model op basis van emissiegegevens. Op de onderdelen a en b is gerapporteerd door Velders et al. (2002).

In dit rapport wordt de vergelijking beschreven tussen concentratieberekeningen met OPS op basis van ammoniakemissies in Nederland en omgeving en de metingen van ammoniakconcentraties. Speciale aandacht is tevens besteed aan de representativiteit van de acht ammoniak-meetlokaties van het Landelijk Meetnet Luchtverontreiniging (LML).

De passieve samplers zijn zodanig gesitueerd dat ze representatief zijn met betrekking tot de ruimtelijke verdeling van de ammoniakemissies in Nederland. Van de LML-meetstations liggen er relatief meer in gebieden met hoge emissiedichtheden.

In het algemeen wordt een goede overeenkomst gevonden tussen de ruimtelijke verdeling van de berekende concentraties en de metingen. In absolute zin zijn de berekende concentraties ca. 30% lager dan de metingen. Dit is in lijn met wat gevonden wordt in andere jaren op basis van de reguliere metingen op de LML-stations. Dit betekent dat uitspraken in de Milieubalansen over de afwijking tussen berekende en gemeten ammoniakconcentraties in Nederland op basis van de LML-stations een goede weergave van de situatie voor Nederland is. De overeenkomst tussen berekende en gemeten concentraties blijkt beter te zijn bij gebruik van ruimtelijk meer gedetailleerde emissies (500x500 m in plaats van 5x5 km).

De verschillen tussen modelberekeningen en metingen vertonen een grillig ruimtelijk patroon over Nederland. Een verband met ruimtelijk variërende factoren zoals emissies en landbedekking kan (nog) niet gelegd worden.

In principe voldoet het meetnet aan de eis van representativiteit voor de ammoniakconcentratie over Nederland. Wel moet regelmatig de directe omgeving geïnspecteerd worden voor zeer lokale verstoringen. Van drie stations is gebleken dat de specifieke emissie- en/of meetomstandigheden zodanig zijn dat de vergelijking tussen meting en berekening nadelig beïnvloed wordt. De ammoniakconcentraties van het LML-meetstation Wieringerwerf zijn systematisch hoger dan concentraties in omliggende gebieden. Deze verhoging kan niet verklaard worden uit thans bekende lokale ammoniakemissies. De meetlocatie Eibergen is niet geschikt meer voor het uitvoeren van ammoniakmetingen vanwege omliggende begroeiing. Bij de interpretatie van de meetlocatie Huijbergen moet rekening gehouden worden dat vanuit de noordelijke windrichting een duidelijke invloed van bosgebied merkbaar is.

Verder worden nog suggesties voor nieuwe meetlokaties gedaan.

# 1. Inleiding

Ammoniakconcentraties worden sinds 1993 routinematig gemeten op een achttal lokaties van het Landelijk Meetnet voor Luchtverontreiniging (LML). Door het sterk variabele ruimtelijke patroon van ammoniakemissies zijn deze 8 meetpunten onvoldoende voor het karakteriseren van ammoniakverspreiding in Nederland en is er gekozen voor een benadering waarbij het ruimtelijk beeld wordt afgeleid via modellering van het verspreidingsproces met het OPS-model (Asman en van Jaarsveld, 1990; Van Jaarsveld, 1995). De afgelopen jaren is gebleken dat de berekende concentratiewaarden aanzienlijk lager (30-40%) waren dan de gemeten waarden, een verschil dat over de jaren 1993-1997 zelfs toenam. Dit toenemen van het verschil is het ‘ammoniakgat’ gaan heten. Het onderzoek naar dit fenomeen werd gerapporteerd in Van Jaarsveld et al. (2000) en een van de conclusies was dat de onderschatting op bepaalde meetstations systematisch hoger was dan op andere. De vraag was ook of de bestaande LML-metconfiguratie voldoende representatief is om als indicator voor de ammoniakemissie-ontwikkelingen in Nederland te dienen. Nader onderzoek naar de ruimtelijke representativiteit van de meetstations werd daarom aanbevolen.

Daarnaast waren voor een aantal gebieden in Nederland zoals Zeeland, Zuid-Holland, de Flevopolders en Groningen tot op heden geen ammoniakconcentratieniveaus bekend en kon dus ook niet geconcludeerd worden of het OPS-model dáár goede uitspraken kon doen. Inmiddels is op basis van de langere meetreeks van de ammoniakconcentratie geconcludeerd dat het ‘ammoniakgat’ niet meer aanwezig is. Dat wil zeggen de dalende trend in de emissies komt overeen met de trend in de concentratiemetingen van ammoniak (MB2002).

Bovenstaande argumentatie heeft er toe geleid om gedurende ruim één jaar, van september 2000 t/m september 2001, de ammoniakconcentratie over Nederland te karteren. Daartoe zijn op 159 lokaties in Nederland de ammoniakconcentratie met een passieve meetmethode bepaald, kortweg intensiveringsmetingen genoemd.

De intensiveringsmetingen zullen bovendien gebruikt worden om te onderzoeken waar eventuele nieuwe meetstations geplaatst kunnen worden.

Voor een gedetailleerde beschrijving van de metingen uitgevoerd door TNO zie het rapport door Duyzer en Weststrate (2002). Een analyse van de ruimtelijke verdeling van de ammoniakconcentratie over Nederland op basis van de intensiveringsmetingen en data-assimilatietechnieken zie het rapport door Velders et al. (2002).

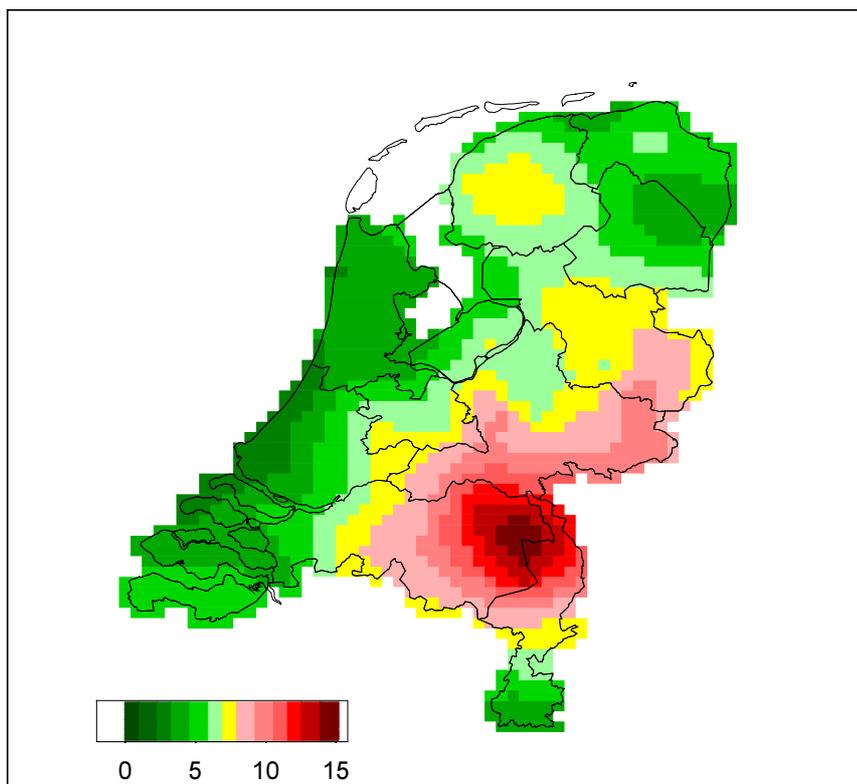
In dit rapport wordt de vergelijking gepresenteerd tussen de modelberekeningen en de meetresultaten van de ammoniakconcentraties op de intensiveringslokaties. In hoofdstuk 2 zal een kort overzicht van de LML en passieve sampler metingen gegeven worden voor wat betreft uitval van metingen en ijking. In hoofdstuk 3 worden het OPS-model en de emissiegegevens waarmee de concentraties op de passieve sampler lokaties berekend zijn toegelicht. In hoofdstuk 4 en 5 worden de resultaten van de vergelijking tussen metingen en berekende concentraties gegeven en bediscussieerd. In hoofdstuk 6 worden de conclusies van en aanbevelingen n.a.v. dit onderzoek gedaan inclusief suggesties voor nieuwe LML-meetlokaties.

## 2. Metingen

### 2.1 Het intensiveringsmeetnet

Het intensiveringsmeetnet bestond uit 159 lokaties regelmatig verdeeld over Nederland. De meetlokaties zijn weergegeven in figuur 2.1 en staan ongeveer op een 15x15 km grid. Er is gebruik gemaakt van een passieve meetmethode op maandbasis. Op de lokaties van de acht LML-meetstations zijn ook passieve samplers geplaatst in tweevoud. De calibratie van de passieve meetmethode is uitgevoerd op basis van een vergelijking met de resultaten van de reguliere meetstations op maandbasis. De meetmethode is in detail besproken in Thijsse et al. (1998). Voor meer detail over ijking, opzet en methodiek van het intensiveringsmeetnet, zie Duyzer en Weststrate (2002) en Velders et al. (2002). In dit hoofdstuk wordt de invloed van



Gemiddeld NH<sub>3</sub>: Sept. 2000 - Aug. 2001

*Figuur 2.2. Jaargemiddelde ammoniakconcentratie over Nederland (in  $\mu\text{g m}^{-3}$ ) van september 2000-augustus 2001 op basis van een interpolatie van 155 passieve samplermetingen (figuur 4.1. uit Velders et al. 2002). Met deze interpolatie is een beeld van de regionale verdeling van de ammoniakconcentratie verkregen. Vier lokaties zijn niet meegenomen omdat deze zeer lokaal beïnvloed zijn door bronnen en niet representatief geacht worden voor de concentratie in een gebied van 15x15 km .*

uitval van de LML-metingen op de ijking van de intensiveringsmetingen behandeld. De ammoniakconcentratie over Nederland op basis van een interpolatie van de passieve samplermetingen is weergegeven in figuur 2.2.

## 2.2 LML metingen

Om LML-metingen op uurbasis te kunnen vergelijken met maandgemiddelde resultaten van de passieve meetmethode is het noodzakelijk om voor de LML-metingen ook maandgemiddelden te bepalen. De uitval van de automatische NH<sub>3</sub> meetstations van het LML is relatief hoog vergeleken met andere componenten en is in sommige maanden zelfs meer dan 50% van de tijd. Gezien de variaties in concentraties over het jaar maar ook binnen een maand kunnen de ontbrekende uurwaarden niet genegeerd worden bij het bepalen van

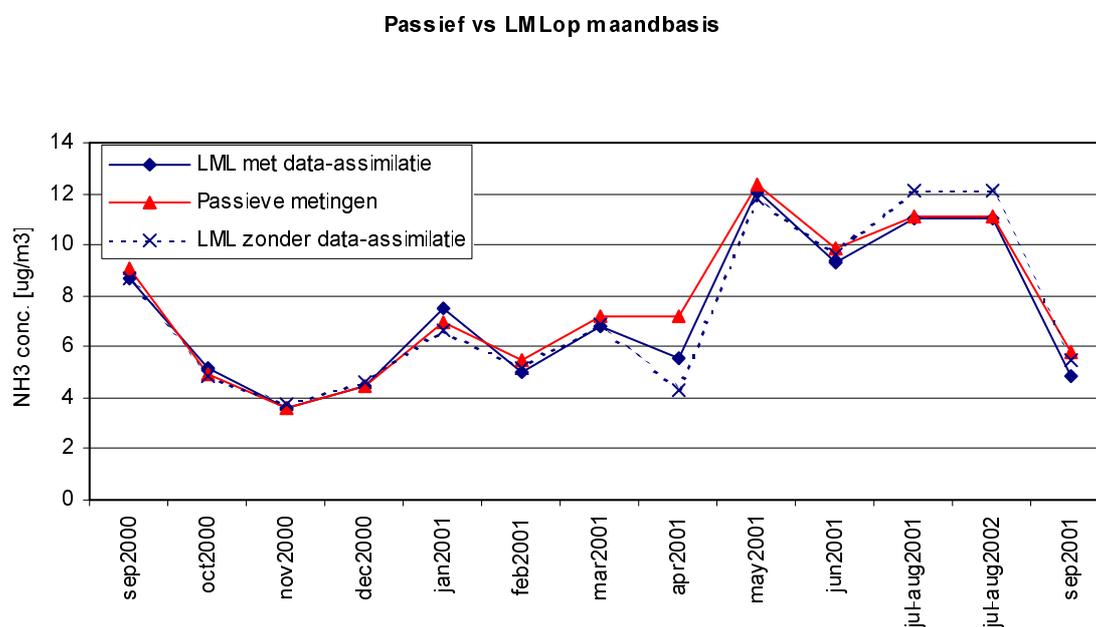
periodegemiddelden, immers bij deze methode wordt een ontbrekende waarde impliciet gelijk gesteld aan de periodegemiddelde waarde. De lengte van perioden met uitval kunnen veelal meerdere dagen beslaan en soms oplopen tot enkele weken.

Gekozen is daarom voor een methode om de ontbrekende waarde te assimileren op basis van gemiddelde concentratieverhoudingen met andere stations. Hierbij wordt gebruik gemaakt van het gegeven dat er gemeenschappelijke oorzaken zijn voor hogere of lagere concentraties in Nederland zoals windsnelheid, windrichting, temperatuur, mestuitrijperioden etc. Zo vertonen meetstations als Vredepeel (Noord-Brabant) en Wekerom (Gelderland) die beide zijn gelegen in intensieve  $\text{NH}_3$ -emissiegebieden een sterke correlatie voor wat betreft daggemiddelde  $\text{NH}_3$ -concentraties, dit ondanks de vrij grote afstand tussen de stations.

## 2.3 LML metingen versus intensiveringsmetingen

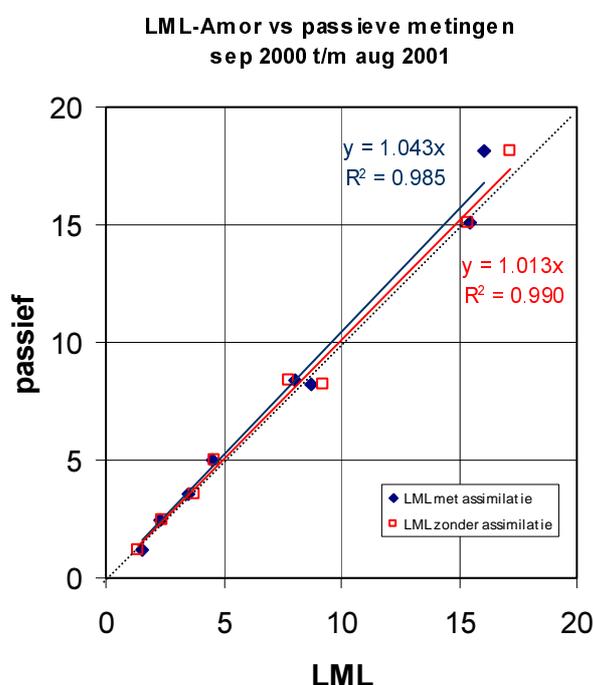
De passieve sampler metingen op de acht lokaties zijn gecalibreerd aan de hand van de LML-metingen op alle maanddata over de periode september 2000-september 2001. Er wordt hiermee één ijklijn verkregen die voor de gehele meetperiode van een jaar geldig is en alle intensiveringsmetingen zijn hiermee berekend.

Op *maandbasis* komen de LML-metingen en passieve sampler metingen, gemiddeld over de acht-LML stations, goed overeen (figuur 2.3). De dynamiek van de ammoniakconcentratie door het jaar heen wordt goed gevolgd. De LML-maandgemiddelden waarbij de ontbrekende waarnemingen zijn geassimileerd volgens de eerder genoemde methode uit paragraaf 2.2 komen in het algemeen beter overeen met de passieve metingen dan de LML-



Figuur 2.3. Vergelijking van maandgemiddelde  $\text{NH}_3$ -concentraties uit LML-metingen en de passieve meetmethode. De getoonde waarden zijn steeds het gemiddelde van 8 LML-meetlocaties.

maandgemiddelde op basis van het rekenkundig gemiddelde van uitsluitend de feitelijke metingen (figuur 2.3). In april 2001 is het verschil het grootst. Dit is ook de maand met de meeste uitval. De vergelijking is echter wel gebaseerd op het gemiddelde van acht meetstations. Voor individuele stations is het verschil tussen niet en wel geassimileerde maanddata soms aanzienlijk groter. Omdat de opzet van de intensiveringsmetingen vooral is gericht op de ruimtelijke aspecten van  $\text{NH}_3$ -concentraties ligt het voor de hand om vergelijkingen tussen metingen onderling en tussen metingen en modelresultaten te baseren op individuele meetstations maar dan wel als gemiddelden voor de gehele beschikbare periode. Zo'n vergelijking op basis van 12 maanden middeling is gegeven in figuur 2.4. Op de betreffende tijdschaal komen de metingen goed overeen. Het effect van het toepassen van data-assimilatie is dat de ijklijn 3% hoger uitkomt. De calibratie door TNO van de passieve sampler metingen is gebaseerd op de niet-geassimileerde LML-resultaten. Bij de vergelijking van passieve meetresultaten met modelberekeningen in Hoofdstuk 4 dient met dit verschil dan ook rekening gehouden te worden.



*Figuur 2.4 Vergelijking LML en passieve samplermetingen voor de acht LML-meetlocaties op basis van 12 maanden middeling. Aangegeven zijn de LML-metingen met en zonder data-assimilatie bij ontbrekende data door uitval (blauw resp. rood, zie paragraaf 2.2).*

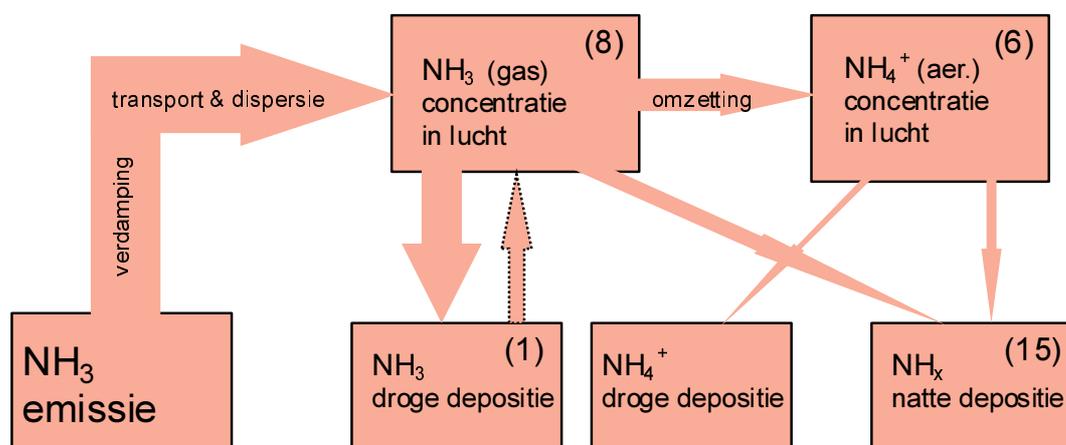
### 3. Model- en emissiegegevens

De ammoniakconcentraties op de passieve sampler lokaties zijn berekend met het OPS-model op basis van emissiegegevens van ammoniak. In dit hoofdstuk zal kort het OPS-model en de gebruikte emissiegegevens toegelicht worden (paragraaf 3.1 en 3.2). De representativiteit van de passieve sampler lokaties en de LML-stations in relatie tot de emissies wordt in paragraaf 3.3 aangegeven.

#### 3.1 Atmosferische processen en model

De belangrijkste atmosferische processen van ammoniak zijn schematisch weergegeven in figuur 3.1. Vergeleken met andere luchtverontreinigende stoffen kenmerken de emissie en verspreidingsprocessen van ammoniak zich doordat een belangrijk deel van deze processen zich afspelen aan of dichtbij de bodem. Daarnaast is de droge en natte depositie van ammoniak relatief snel en is ook de omzettingssnelheid (van ammoniak naar ammonium) hoog. Dit alles maakt dat de verblijftijd van ammoniak in de atmosfeer doorgaans kort is (enkele uren). In de modelmatige berekeningen van de verspreiding en depositie van ammoniak moeten deze processen goed meegenomen worden en met name in de onderste meters van de atmosfeer.

In Nederland wordt voor de berekening van zure depositie reeds vele jaren het Operationeel Prioritaire Stoffen (OPS) model gebruikt (Van Jaarsveld, 1990; 1995). Dit model combineert een Gaussisch pluimmodel voor lokale verspreiding met een trajectorie model voor meer grootschalige verspreiding en is daardoor in staat zeer lokale broninvloeden (< 100m) te combineren met b.v. buitenlandse bijdragen. Het algemene gedrag van dit model zoals beschrijving van meteorologische invloeden zijn getoetst aan de hand van SO<sub>2</sub> en NO<sub>x</sub> metingen van het Landelijk Meetnet Luchtverontreiniging (LML). Het is daarbij gebleken dat het model zowel de ruimtelijke verdeling van concentraties in Nederland als het verloop in de tijd (maand, seizoen, jaar) goed beschrijft (Van Jaarsveld, 1990).



Figuur 3.1. De belangrijkste atmosferische processen van ammoniak. De dikte van de pijlen weerspiegelen het relatieve belang van de processen. Deze processen zijn ook opgenomen in het OPS-model met uitzondering van de re-emissie van ammoniak zoals aangegeven met een gestippelde pijl. De getallen tussen haakjes geven het aantal meetpunten van het LML.

OPS wordt al sinds 1989 gebruikt voor verspreidingsberekeningen van ammoniak. Voor de toetsing van het model voor deze stof is minder meetmateriaal voorhanden. Asman en Van Jaarsveld (1992) hebben de toenmalige versie van het model uitgebreid vergeleken met metingen in binnen en buitenland. Recentelijk is (gedeeltelijk parallel aan het STOP onderzoek) in het kader van een analyse van het zgn. ‘ammoniakgat’ het model op een aantal punten uitgebreid en verbeterd (Van Jaarsveld et al., 2000).

De modelberekeningen zijn uitgevoerd met OPS model versie OPSEX12N. Landgebruik en ruwheidslengte zijn hierin met een resolutie van 1 km beschikbaar. In eerste instantie zijn alle berekeningen uitgevoerd met periodegemiddelde meteorologische gegevens (september 2000 t/m augustus 2001).

### 3.2 Landelijke emissiegegevens

In Asman en Van Jaarsveld (1992) werd al aangetoond dat het schaalniveau van de emissie bepalend is voor de mate waarmee metingen kunnen worden gereproduceerd. In een recente studie naar de regionale verspreiding van ammoniak werd met meer gedetailleerde emissiegegevens (2x2 km) een betere overeenstemming met lokale meetresultaten gevonden worden (Duyzer et al., 1998; Van Jaarsveld et al., 2000b).

De emissiegegevens betreffen de definitieve cijfers voor het jaar 2000. In principe zijn de emissies van de categorie landbouw beschikbaar in twee resoluties: 500 m en 5000 m. De overige Nederlandse emissies van ammoniak hebben een resolutie van 5000 m. Buitenlandse emissies hebben een grovere resolutie: gemeenteniveau (5-15 km) in België en west-Duitsland (gedeeltelijk) en 75 km voor de rest van Europa.

De nationale emissies zijn onderverdeeld in acht categorieën, te weten, emissies uit:

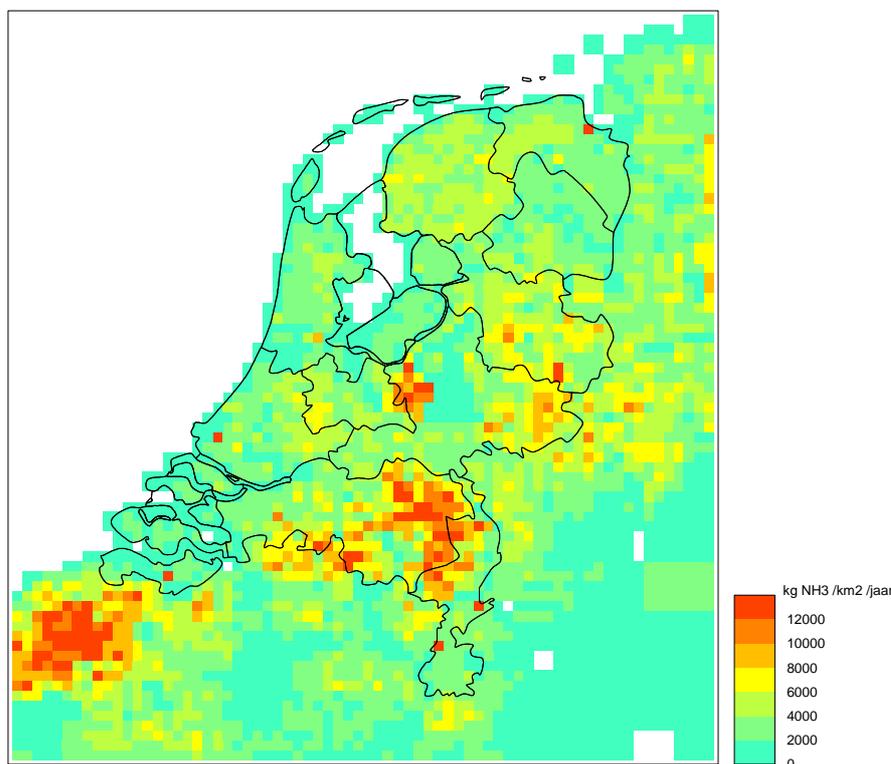
- 1) stallen hokdieren
- 2) stallen graasdieren
- 3) mestopslag buiten stal
- 4) beweiding
- 5) aanwending dierlijke mest op grasland
- 6) aanwending dierlijke mest op bouwland
- 7) aanwending kunstmest op grasland
- 8) aanwending kunstmest op bouwland.

In de modelberekeningen worden de categorieën 1-3 beschouwd als bronnen met een emissiehoogte van 5 m. De categorieën 4-8 worden als oppervlaktebronnen beschouwd.

Een voorbeeld van de ammoniakemissies door de landbouw staat weergegeven in figuur 3.2. Duidelijk waarneembaar zijn de gebieden met hoge emissies grotendeels tengevolge van de intensieve veehouderij in Brabant, Limburg, Gelderse Vallei, Achterhoek en Overijssel. Ook de landbouwemissies in West-Vlaanderen en in minder mate in Nordrhein-Westfalen zijn goed zichtbaar.

De bijdrage van ammoniakemissies uit overige bronnen aan de concentratie wordt apart berekend en bij de concentratie tengevolge van de landbouwemissies van binnen en buitenland opgeteld. Deze overige ammoniakbronnen zijn bijvoorbeeld industrie en verkeer, en bedragen tezamen ca. 13 kton (vs. ca. 150 kton uit de landbouw).

In de berekeningen zijn de emissies van 2000 gebruikt. De meetperiode besloeg echter een groot deel van 2001. Ook de voorlopige emissiedata voor 2001 waren beschikbaar. Er is gekozen voor de 2000 data omdat deze definitief zijn. De data voor 2001 kan voor wat betreft de lokale emissie rond een aantal passieve sampler lokaties aanzienlijk afwijken. Dit is niet verdisconteerd in de berekeningen in hoofdstuk 4.



Figuur 3.2. Ruimtelijk patroon van de landbouwemissies van ammoniak voor Nederland en omgeving.

### 3.3 Representativiteit meetpunten met betrekking tot de emissies

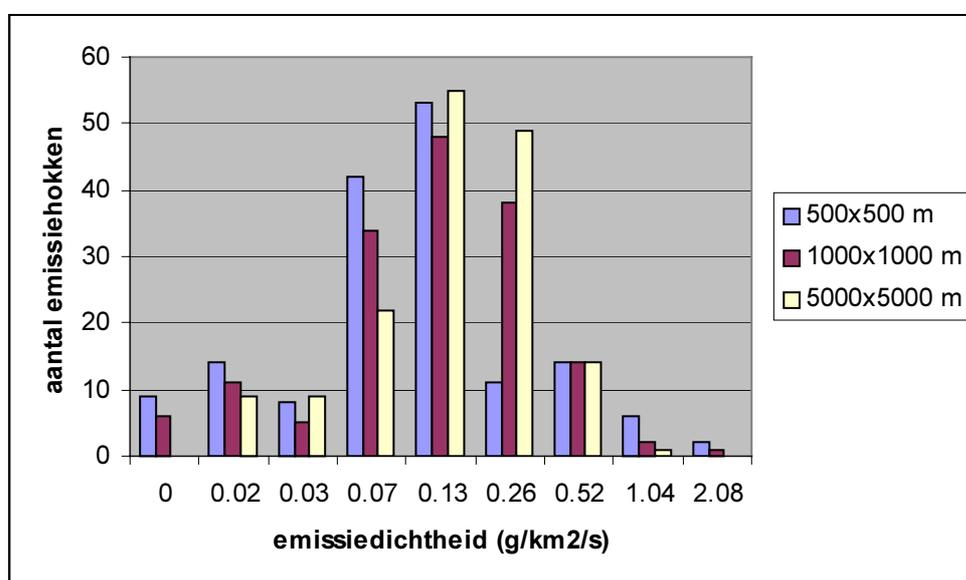
De gemiddelde emissiedichtheid rondom de 159 passieve sampler meetpunten en de LML lokaties staan in Tabel 1.

Tabel 1. Emissiedichtheid om de meetpunten. Gemiddeld voor alle 159 passieve sampler lokaties en de 8 LML lokaties ( $g\ km^{-2}\ s^{-1}$ ). Aangegeven zijn de dichtheden in een gebied van 500 bij 500 m, 1000 bij 1000 m en 5000 bij 5000 m.

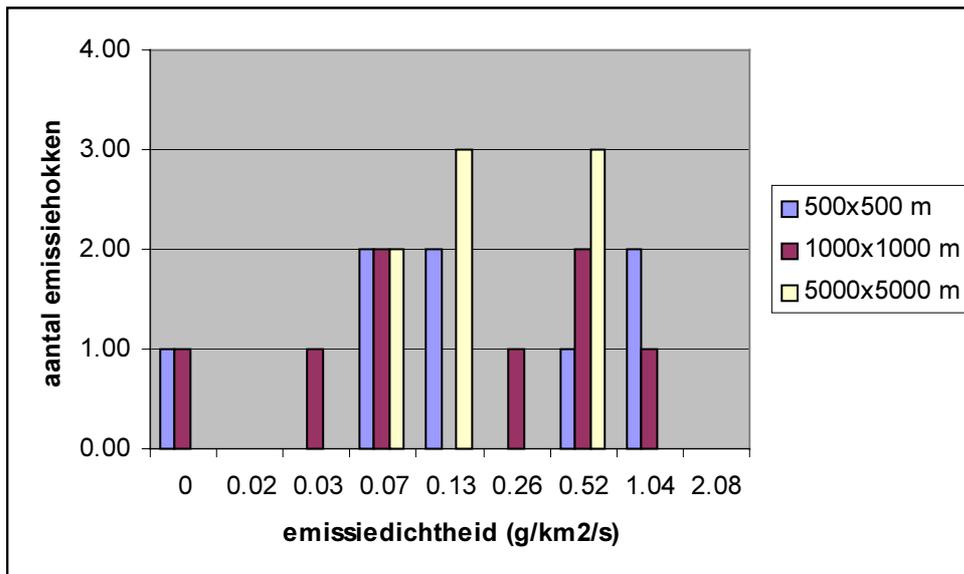
| Gebied rondom meetpunt | 159 lokaties | 8 LML lokaties |
|------------------------|--------------|----------------|
| 500 x 500m             | 0.13         | 0.26           |
| 1000 x 1000m           | 0.13         | 0.23           |
| 5000 x 5000m           | 0.13         | 0.17           |

De emissiedichtheid rondom de 159 sampler meetpunten is constant voor het gebied van 500 tot 5000 m om het meetpunt. De emissiedichtheid ligt in de buurt van het landelijk gemiddelde. De passieve samplers zijn dus zodanig gesitueerd dat ze als geheel een representatief beeld geven van de invloed van de ammoniakemissies in Nederland. De spreiding in de emissiedichtheid rond de meetpunten is aanzienlijk (figuur 3.3). Duidelijk is dat de spreiding in de emissiedichtheid bij de meer lokale omgeving (500x500 m vakken) groter is dan bij de emissiedichtheden bij grotere gebiedsmiddeling (1000 en 5000 m vakken).

De LML-stations daarentegen liggen gemiddeld meer in een gebied met aanzienlijk hogere emissies zeker voor wat betreft hun directe omgeving (Tabel 1 en figuur 3.4). Dit kan zowel betekenen dat de lokatie dicht bij één grote bron ligt als dat in totaal het gebied een hogere emissie heeft. Uit de verdeling in figuur 3.4 is ook af te leiden dat er relatief meer LML-stations zijn die hogere emissies hebben dan in de set van 159 passieve samplers.



Figuur 3.3. Histogram van de emissiedichtheden rond de 159 passieve meetpunten op drie schalen van 500, 1000 en 5000 m.



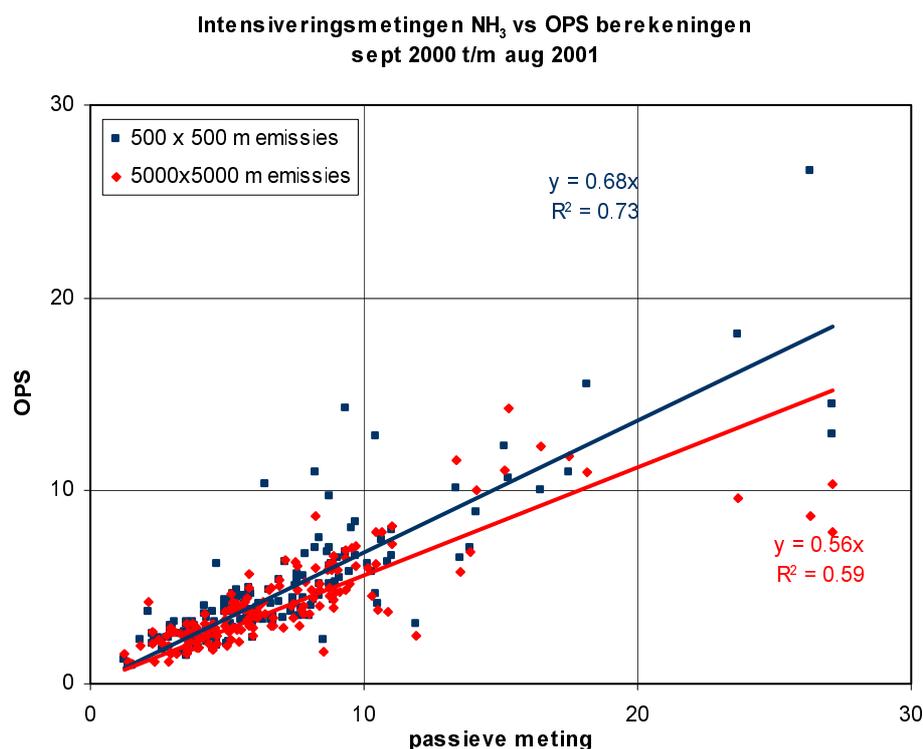
*Figuur 3.4. Idem als Figuur 3.3 maar nu voor acht LML-stations.*

## 4. Vergelijking tussen gemeten en berekende concentraties

In dit hoofdstuk wordt de vergelijking tussen de ammoniakconcentraties gemeten met de passieve samplers en de berekende concentraties met het OPS-model beschreven. Eerst wordt het effect van de ruimtelijke resolutie van de emissiegegevens op de modelberekeningen onderzocht. Vervolgens de vergelijking tussen gemeten en berekende concentraties voor zowel alle passieve samplerlokaties als voor de passieve samplers bij de LML-stations. Daarna zal nog specifiek aandacht aan het ruimtelijke patroon van de gemeten en berekende concentratie over Nederland gegeven worden.

### 4.1 Het effect van de ruimtelijke resolutie van de emissiegegevens

In Figuur 4.1 is uitgezet hoe de modelresultaten zich verhouden tot de metingen van de 159 stations. Er zijn berekeningen uitgevoerd op basis van emissies met een 5000x5000 m resolutie en emissies met een 500x500 m resolutie.



*Figuur 4.1 Vergelijking tussen de met OPS berekende jaargemiddelde ammoniakconcentraties en de gemeten concentratie met passieve samplers op 159 lokaties. Aangegeven zijn de berekeningen op basis van emissiegegevens op 5000 en 500 m resolutie (rood en blauw).*

Uit Figuur 4.1 blijkt dat de hogere emissieresolutie leidt tot hogere berekende concentraties, vooral voor de lokaties met de hoogste concentraties. Aangezien deze punten de lineaire regressie sterk beïnvloeden verbetert de verklaarde variantie; van 59% bij 5000 m

emissieresolutie naar 73% bij 500 m resolutie. Dit emissieresolutie-effect blijkt bij alle volgende vergelijkingen ook aanwezig te zijn. Wanneer hoge concentraties vooral worden veroorzaakt door lokale bronnen dan is het te verwachten dat de berekeningen waarbij de lokale emissie gedetailleerder in kaart wordt gebracht ook zullen leiden tot hogere lokale concentraties. Het omgekeerde effect, een daling in de concentratie gaande van 5000 m naar 500 m emissieresolutie, vindt ook plaats, maar deze punten beïnvloeden de regressie minder (zie bijvoorbeeld passieve sampler concentraties rond  $15 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ).

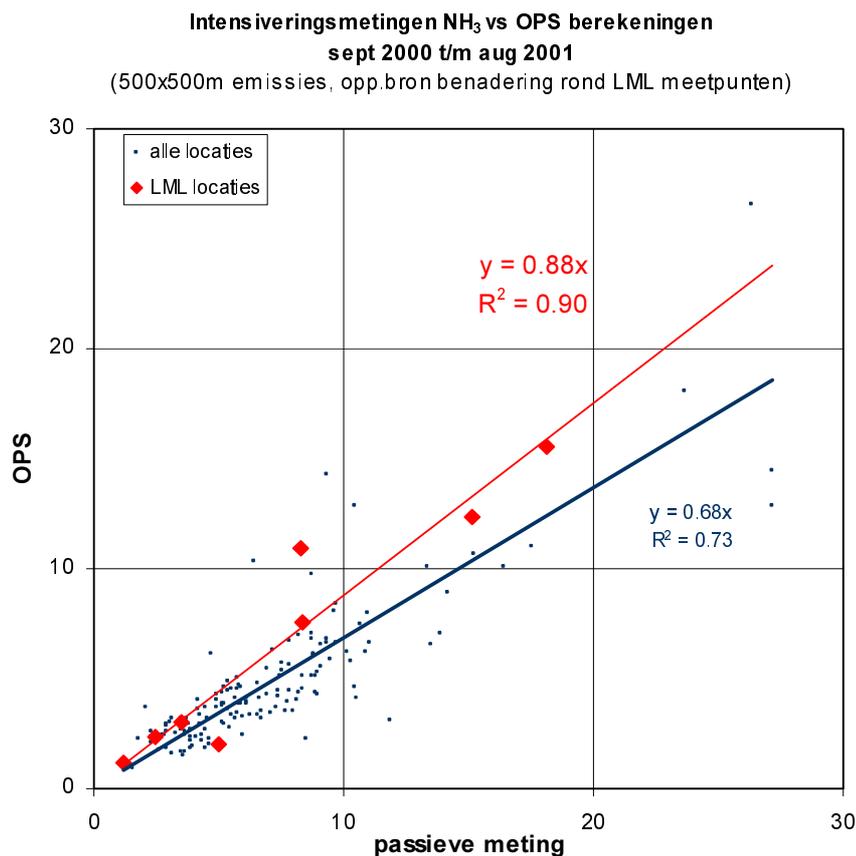
## 4.2 Vergelijking van de met OPS berekende concentraties en de LML- en de intensiveringsmetingen

In Figuur 4.2 is de vergelijking weergegeven tussen de gemeten en berekende concentraties voor de complete set intensiveringsmetingen. Tevens is daarin dezelfde vergelijking aangegeven specifiek voor de passieve samplers op 8 LML-lokaties. Deze vormen dus een subset van alle passieve samplers. In het algemeen kan gezegd worden dat het ruimtelijk beeld van de gemeten concentraties over Nederland goed door het OPS-model wordt weergegeven. Met het OPS-model wordt 90% van de variantie in de metingen op de LML lokaties verklaard. Voor de 159 intensiveringsmetingen is dat 73%. Incidenteel kunnen de modelberekeningen echter een factor 2-3 afwijken van de passieve samplermetingen. Dit kan verklaard worden uit het feit dat binnen een 500x500 m vak de ammoniakemissie nog aanzienlijk kan variëren met als resultaat dat lokaal de gemeten concentratie aanzienlijk kan afwijken van de berekende concentratie gemiddeld voor het 500x500 m vak. Dat de ammoniakconcentratie een grote variatie vertoont is onder andere met de provinciale passieve samplermetingen door TNO duidelijk zichtbaar gemaakt (zie ook Velders et al., 2002).

Duidelijk is te zien dat de berekeningen een onderschatting zijn van de metingen; de richtingscoëfficiënt van beide regressielijnen is kleiner dan één. Opvallend is dat de richtingscoëfficiënt van de regressie voor alle intensiveringsmetingen lager is dan die op de 8 LML-lokaties (0.68 vs. 0.88). Men zou ook kunnen zeggen dat de set van 8 lokaties op basis van deze vergelijking niet representatief is voor de 159 lokaties.

De grootste afwijking wordt gevonden voor station Eibergen (722). Dit station blijkt geleidelijk aan te zijn omgeven door opgroeiende bomen en struiken waardoor lokale depositie-effecten de gemeten concentraties negatief beïnvloeden. De meetlokatie is derhalve niet geschikt meer.

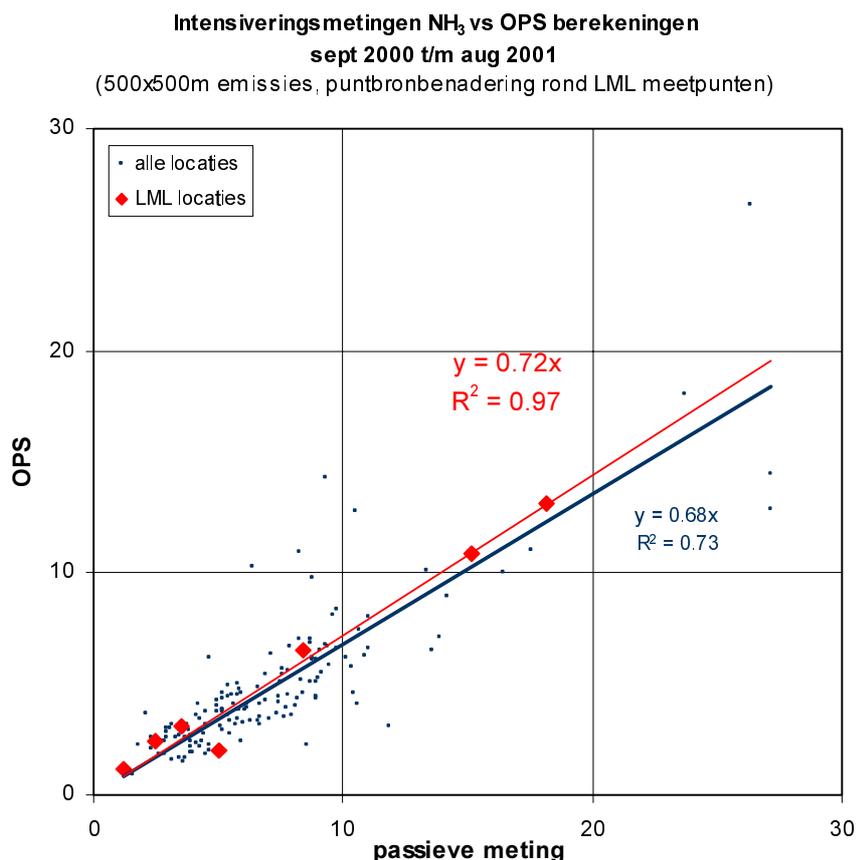
Zoals uit paragraaf 3.3 blijkt is de ammoniakemissiedichtheid in de 500x500 m vakken waarin de 8 LML-meetlokaties liggen hoger dan die van de 159 meetlokaties. Hoewel hier rekening mee wordt gehouden bij de modelberekeningen geeft het toch een indicatie dat er gemiddeld dichtbij de LML-lokaties meer lokale bronnen aanwezig zijn dan bij de 159 lokaties. Visuele inspectie bij de meetstations Vredepeel, Wekerom en Zegveld leert dat er inderdaad stallen zodanig gepositioneerd zijn t.o.v. het meetstation dat de bijdrage ervan wordt overschat wanneer de emissie ervan over een vlak van 500x500 m wordt 'uitgesmeerd'.



*Figuur 4.2 Berekende ammoniakconcentraties vergeleken met de complete set intensiveringsmetingen en metingen op de 8 LML-meetlocaties.*

Een methode waarbij het effect van lokale stallen beter wordt gemodelleerd door deze als puntbronnen te beschouwen is gegeven in Bijlage 1. Het resultaat ervan voor de huidige vergelijking is gegeven in Figuur 4.3. De puntenwolk van de resterende 7 LML-lokaties ligt nu centraler binnen de puntenwolk van alle lokaties en de regressielijnen verschillen slechts enkele procenten van elkaar. De gemeten ammoniakconcentratie wordt in beide vergelijkingen door het model onderschat met ongeveer 30%.

Dit resultaat geeft aan dat ‘schalingsfactoren’ die in het verleden zijn bepaald op basis van de 8 LML-lokaties gevoelig zijn voor de resolutie van de emissiebestanden maar ook dat de huidige 500x500 m resolutie nog onvoldoende is om een goede vergelijking met sommige bestaande meetstations mogelijk te maken. Deze schalingsfactoren, die de verhouding tussen de gemeten en berekende ammoniakconcentratie weergeven, worden gebruikt om de berekende droge depositie van ammoniak te ‘schalen’ naar de metingen (MB2002).



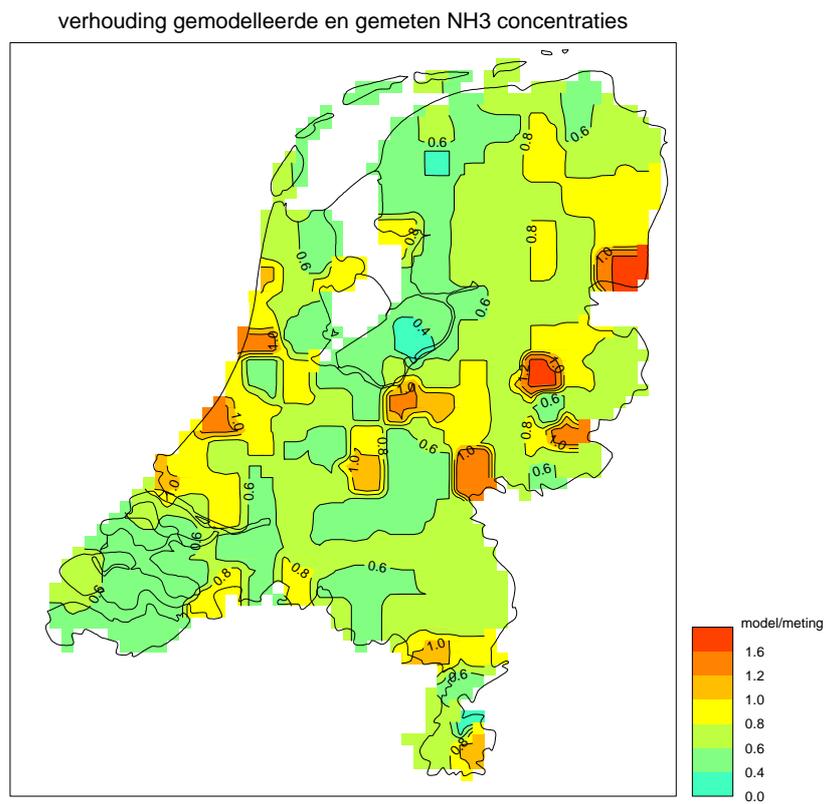
*Figuur 4.3 Als figuur 4.2, maar modelberekeningen nu met puntbronbenadering rondom de LML-meetpunten.*

### 4.3 Ruimtelijke verschillen tussen de met OPS berekende concentraties en de intensiveringsmetingen

Om te zien of de verschillen tussen de modelberekeningen en de metingen uit figuur 4.3 een ruimtelijk aspect hebben is in figuur 4.4 een kaart gegeven met de verhouding tussen de modelberekeningen en metingen. De verhouding is daarbij op zodanige wijze ruimtelijk geïnterpoleerd dat de verschillen voor individuele meetlocaties zichtbaar blijven.

Het algemene beeld dat uit figuur 4.4 naar voren komt is dat in het westen, oosten en zuid-oosten van het land de concentratie van NH<sub>3</sub> het minst wordt onderschat, dat is, rond de gemiddelde verhouding van 0.7 en hoger. De grootste onderschatting vindt plaats rondom het IJsselmeer en het zuid-westen, dat is, een verhouding tussen berekende en gemeten concentraties van 0.6 of lager. Overschatting van NH<sub>3</sub> concentraties vindt zeer lokaal plaats. Er zijn bijvoorbeeld geen twee naastliggende stations waar overschatting plaatsvindt.

Wanneer men in figuur 4.4 de meetlocaties van het LML zou positioneren dan zou blijken dat met name Wieringerwerf afwijkt van het 'gemiddelde' (gemeten concentraties veel hoger dan berekend) en Eibergen (gemeten concentraties lager dan berekend). Bij Eibergen is dit veroorzaakt door de lokale stationsomstandigheden (zie 4.2). Bij Wieringerwerf is niet duidelijk wat de reden hiervoor is.



*Figuur 4.4. Ruimtelijk patroon van de verhouding van de berekende en de gemeten NH<sub>3</sub> concentraties.*

## 5. Discussie

De 159 sampler lokaties zijn in principe zo uitgezocht dat ze de regionale ammoniakconcentratie weergeven. Dit wordt ook bevestigd door het feit dat de emissiedichtheid rondom de meetpunten gemiddeld genomen overeenkomt met het landelijkgemiddelde. Het is echter gebleken dat voor vier passieve sampler lokaties de concentratie aanzienlijk hoger lag dan de stations er omheen (Velders et al., 2002; zie figuur 4.3, vier punten met passieve sampler concentratie tussen 20-30  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ). Op deze punten bleek een duidelijke beïnvloeding van nabije stallen (binnen 100 m). Velders e.a. verwijderden deze data als uitbijters voor bepaling van het landelijk gemiddelde (en in de interpolatie om te komen tot een landelijke beeld van de ammoniakconcentratie in figuur 2.2). Het landelijk gemiddelde ging daarmee van 7.1  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  naar 6.6  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . In de regressie met de berekende concentraties komen deze lokaties niet als sterke afwijkingen van de regressielijn naar voren. De lokale beïnvloeding wordt dus door het model goed gesimuleerd. Met andere woorden in (lokale) gebieden met een hoge emissiedichtheid worden met het OPS-model geen afwijkende resultaten gevonden als voor de minder belaste gebieden.

De (her)analyse van de lokale omstandigheden rond de LML-meetpunten leidt tot een betere overeenkomst tussen gemeten en berekende concentraties (figuur 4.3). Een dergelijke analyse is niet uitgevoerd voor de 159 meetlokaties. Voor individuele punten zou dit een aanzienlijke verandering van de concentratie van zowel naar boven als naar beneden kunnen betekenen. Gemiddeld over alle punten is de verwachting dat dit tegen elkaar wegvalt en de regressie(lijn) uit figuur 4.3 nauwelijks zal veranderen.

In de studie door Van Jaarsveld et al., (2000) is al eerder opgemerkt dat voor het LML-station Wieringerwerf lagere concentraties berekend worden. De vraag was toen of dit een lokale afwijking dan wel een afwijking voor een groter gebied was (Kop van Noord-Holland). Uit de intensiveringsmetingen blijkt dat het hier om een lokaal effect gaat. Oorzaak moet gezocht worden in een onderschatting van de emissies in het nabije gebied rond het meetstation. Dit moet verder uitgezocht worden.

In de analyse van de lokale omstandigheden rond de LML-meetpunten is tevens opgevallen dat bij het station Huijbergen bij noordelijke windrichtingen praktisch geen ammoniak gemeten wordt. Het station staat in noordelijke richting relatief dicht tegen een bos aan en zou door (lokale) depositie-effecten uit die windrichting beïnvloed kunnen zijn. Ook dit zal verder uitgezocht moeten worden.

Zoals opgemerkt in hoofdstuk 2 dient rekening gehouden te worden met een ijklijn voor de passieve samplers die 3% hoger ligt. Dit heeft nauwelijks gevolgen voor de resultaten en de conclusies uit hoofdstuk 4. De onderschatting door het model van de concentraties van alle passieve samplers gaat daarmee wel van 32% naar 34%.

## 6. Conclusies en aanbevelingen

Gedurende één jaar (september 2000-september 2001) is in Nederland op 159 lokaties met passieve samplers de maandelijkse concentratie van ammoniak bepaald. Voornaamste doelen waren om a) te onderzoeken hoe goed de representativiteit van de LML-stations is, b) een ruimtelijk dekkend beeld van de ammoniakconcentratie over Nederland te verkrijgen en c) te onderzoeken hoe goed dit beeld berekend kan worden met het OPS-model op basis van emissiegegevens.

Hieronder worden de belangrijkste conclusies en aanbevelingen gegeven met betrekking tot de gehele set data (paragraaf 6.1) en specifiek voor het LML (paragraaf 6.2). De conclusies zijn gebaseerd op de concentratieberekeningen met emissiegegevens op 500x500 m.

In paragraaf 6.3 wordt een aanbeveling voor nieuwe LML-meetlokaties gegeven.

### 6.1 Algemeen

Het ruimtelijk beeld van de gemeten ammoniakconcentraties over Nederland wordt goed beschreven door de OPS-modelberekeningen op basis van de emissiegegevens.

De OPS-modelberekeningen op basis van de emissiegegevens onderschatten de gemeten concentraties met ongeveer 30%. Dit is in lijn met wat gevonden wordt in andere jaren op basis van de metingen op de LML-stations. (De onderschatting kan veroorzaakt worden enerzijds door een onderschatting van de emissies en anderzijds door het gebruik van onjuiste modelparameters met name voor de droge depositie van ammoniak. Op beide oorzaken is onderzoek nodig en deels gaande).

Dit betekent dat uitspraken in de Milieubalansen over de afwijking tussen berekende en gemeten ammoniakconcentraties in Nederland op basis van de LML-stations een goede weergave van de situatie voor Nederland is.

De verschillen tussen modelberekeningen en metingen van de ammoniakconcentratie vertonen een grillig ruimtelijk patroon over Nederland. Een verband met ruimtelijk variërende factoren zoals emissies en landbedekking kan (nog) niet gelegd worden.

Een analyse naar de individuele verschillen tussen de modelberekeningen en metingen op de passieve sampler meetpunten in relatie tot de verschillende emissiecategorieën zou uitgevoerd moeten worden om na te gaan of er mogelijke systematische fouten in de emissies zitten.

Berekeningen op basis van 500x500 m emissies geven een betere overeenstemming met de metingen dan berekeningen op basis van 5000x5000 m resolutie. Met name de hogere concentraties worden beter gesimuleerd.

Een relatief groot deel van de LML-stations (drie) ligt in gebieden met een hoge emissiedichtheid (vier maal het landelijk gemiddelde). Bij de passieve sampler lokaties is dit aantal relatief veel kleiner (21). De passieve samplers zijn zodanig gesitueerd dat ze representatief zijn met betrekking tot de ruimtelijke verdeling van de ammoniakemissies in Nederland.

Calibratie van de passieve meetmethode verdient nog aandacht. Het is van belang om rekening te houden met uitval in de referentiemetingen (op de LML-stations). Op dit moment is de gemiddelde afwijking met de referentiemeetmethode nog ongeveer +3%.

## 6.2 LML-specifiek

Om een goede vergelijking tussen de gemeten en berekende concentratie voor het relatief beperkte aantal lokaties (acht) van het LML te kunnen maken dienen de lokale omstandigheden gedetailleerd bekend te zijn. Dit geldt zowel voor de lokale meetomstandigheden als voor de lokaties en de grootte van de emissies. Zelfs de huidige resolutie van de emissiebestanden van 500x500 m is onvoldoende om een goede vergelijking met sommige bestaande meetstations te maken.

Bovenstaande conclusie geldt ook voor de zogenaamde 'schalingsfactoren', zoals gebruikt in de Milieubalansen om de berekende droge depositie van ammoniak te schalen. (Schalingsfactor is de verhouding tussen de gemeten en berekende concentratie).

Na heranalyse van de lokale omstandigheden rond de LML-stations blijkt dat de stations een analoog beeld geven van de vergelijking tussen gemeten en berekende concentraties aan dat van de 159 passieve sampler set.

In principe voldoet het meetnet aan de eis van representativiteit voor de ammoniakconcentratie over Nederland. Wel moet regelmatig de directe omgeving geïnspecteerd worden voor zeer lokale verstoringen.

De ammoniakconcentraties van het LML-meetstation Wieringerwerf zijn systematisch hoger dan concentraties in omliggende gebieden. Deze verhoging kan niet verklaard worden uit thans bekende lokale ammoniakemissies. Lokale inspectie bij optredende hoge concentraties zou aanwijzingen kunnen leveren.

De meetlokatie Eibergen is niet geschikt meer voor het uitvoeren van ammoniakmetingen vanwege versturende invloeden van de omliggende begroeiing.

Bij de interpretatie van de meetlokatie Huijbergen moet rekening gehouden worden dat vanuit de noordelijke windrichting een duidelijke invloed van bosgebied merkbaar is.

## 6.3 Nieuwe LML-meetlokaties

Met behulp van de metingen op de passieve sampler lokaties kunnen nieuwe LML-meetlokaties aangewezen worden. Van 159 lokaties is nu immers bekend wat ongeveer de concentratieniveaus zijn en de lokale omgevings- en emissieomstandigheden. De nieuwe meetlokaties zouden aan de volgende criteria moeten voldoen (tentatief in volgorde van prioriteit):

- 1) LML-meetpunten moeten een goede geografische spreiding over Nederland hebben om een goed ruimtelijk beeld van de ammoniakconcentratie te geven: d.w.z. ook het ammoniakconcentratiepatroon (figuur 2.2).
- 2) Meting moet uitgevoerd worden in de gebieden waar de ammoniakproblematiek relatief groot is en waar in principe maatregelen het hardst doorwerken en dus 'gemonitord' moeten kunnen worden.
- 3) Meting moet ruimtelijk een niet te lokaal beeld geven, d.w.z. niet teveel door lokale bronnen beïnvloed worden.
- 4) De bereikbaarheid van de meetlocatie moet goed zijn.

De eerste drie criteria zijn inhoudelijk, de laatste is meer praktisch van aard. De uiteindelijke plaatsing zal een compromis tussen deze criteria zijn.

Als we de eerste twee criteria combineren komen met name Overijssel, Friesland en midden Brabant naar voren; dat wil zeggen, de gebieden waar de emissies aanzienlijk hoger zijn dan het landelijk gemiddelde en waar op dit moment geen metingen uitgevoerd worden. Te denken valt dan aan lokaties in zuid-oost Friesland (b.v. e17-19 in figuur 2.1), Overijssel (bv. e2, f2, g6, g7) en midden Brabant (b.v. c11, c12, c17). Als we de geografische spreiding iets meer zouden laten meewegen dan zou een lokatie in zuid-oost Friesland te prevaleren zijn boven een in Overijssel.

## Literatuur

- Asman, W.A.H. en Jaarsveld, J.A. van (1992) A variable resolution statistical transport model applied for  $\text{NH}_x$  in Europe. *Atmospheric Environment* 26A, 445-464
- Duyzer, J.H., J.H. Weststrate, J.W. Erisman, A. Bleeker en J.A. van Jaarsveld (1998) Karakterisering van regionale concentratievelden van ammoniak 2<sup>o</sup> fase: overzicht. TNO-rapport R-98/004.
- Duyzer, J.H. en J.H. Weststrate (2002) Kartering van het concentratieveld van ammoniak over Nederland. TNO-rapport R 2002/074.
- Hofschreuder, P., Vonk, A.W. en Heeres, P. (1999) Tracer gas experimenten in de Flevopolder; Vergelijking van gemeten concentraties met gesimuleerde concentraties met een Gauss model, het ASZ model en een K-type model. Rapport nr. R 835. Wageningen Universiteit, Wageningen.
- Monteny, G.J., Hol, J.G.M., Wever, A.C. en Scholtens, R.(1999) Ammoniakemissie op gebiedsniveau binnen het stikstofonderzoeksprogramma (STOP). IMAG-rapport 99-16, IMAG Wageningen.
- Oudendag, D.A. (1999) Validatie Mest- en Ammoniakmodel; vergelijking van de berekende ammoniakemissies bij stal- en aanwenden met metingen. LEI Den Haag, Interne notitie 99.33, 38 pg.
- Römer, F.G., te Winkel, B.H. en Scholten, R.D.A. (1999)  $\text{NO}_x$  –meting en -modellering in het kader van het stikstofonderzoeksprogramma STOP, KEMA rapportnr. 564972-KPS/MEC 99-3044.
- STOP (1999) Stikstofonderzoekprogramma. Ed.: J.W. Erisman en L. van der Eerden. ECN-rapport C-99-094, RIVM rapport 725601002.
- Thijssen, Th. R., J.H. Duyzer, H.L.M. Verhagen, G.P. Wyers, A. Wayers en J.J.Möls (1998) Measurement of ambient ammonia with diffusion tube samplers. *Atmospheric Environment* Vol. 32, pp. 333-337.
- Van Jaarsveld, J.A. (1990) An operational atmospheric transport model for priority substances; specification and instructions for use. RIVM rapport 222501002, RIVM, Bilthoven
- Van Jaarsveld, J.A. (1995) Modelling the long-term atmospheric behaviour of pollutants on various spatial scales. Proefschrift Universiteit Utrecht. RIVM rapport 722501005.
- Van Jaarsveld, J.A., Bleeker, A. en Hoogervorst, N.J.P. (2000) Evaluatie ammoniakredukties met behulp van metingen en modelberekeningen. RIVM rapport 722108025, RIVM, Bilthoven.
- Van Jaarsveld, J.A., A. Bleeker, J.W. Erisman, G.J. Monteny, J. Duyzer en D. Oudendag. (2000b) Ammoniak emissie-concentratie-depositie relaties op lokale schaal. RIVM rapport 725601001.
- Velders, G.J.M., A. van der Meulen, J.A. van Jaarsveld, W.A.J. van Pul en A.L.M. Dekkers (2002) Ruimtelijke verdeling van ammoniakconcentraties in Nederland gemeten met passieve samplers. RIVM rapport 722601006.

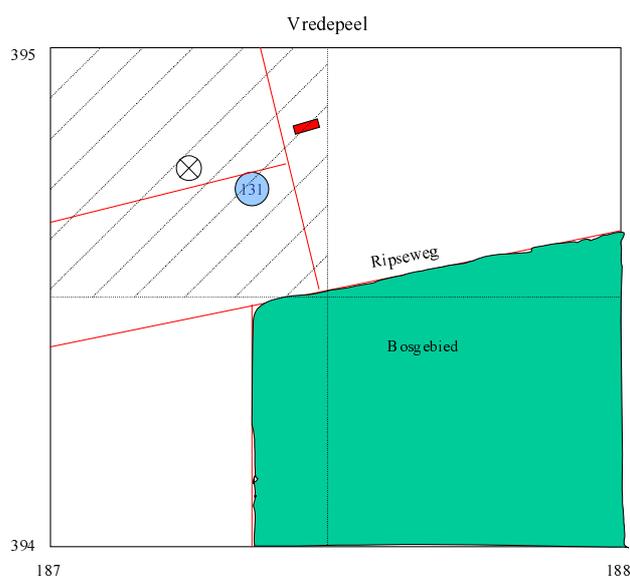
## Bijlage 1 Invloed van de detaillering van emissies op de berekende ammoniakconcentraties

### Inleiding

Om de invloed van de detaillering van emissies op de berekende concentraties te illustreren is een aantal proeven uitgevoerd. Aanleiding is de stelling dat een goede vergelijking van modelresultaten met metingen alleen mogelijk is als de modelresultaten op dezelfde wijze worden beïnvloed door lokale omstandigheden als de metingen. Hierbij wordt de lokale bronnenconfiguratie als zeer belangrijk beschouwd.

### Gegevens

Gebruikt zijn bestanden van stalemissies voor het jaar 2000 met een resolutie van 500x500 m en een onderverdeling in (stalemissies van) hok- en graasdieren. Deze bestanden zijn geproduceerd door RIVM/LAE op basis van gegevens geleverd door het LEI in het kader van de MB2002. Het beschouwde gebied is gelegen rondom het LML-meetstation Vredepeel. Dit station is gekozen omdat daar meestal de hoogste NH<sub>3</sub> concentraties worden gemeten en wellicht ook de invloed van lokale NH<sub>3</sub> bronnen groot is.



*Figuur 1 Ligging van meetpunt Vredepeel (131) in het 1000 x 1000 m en 500 x 500 m vlak (gearceerd). De stallocatie is in rood weergegeven.*

### Methode

Ammoniakconcentraties zijn berekend voor het meetpunt Vredepeel op basis van emissies met toenemende resolutie. Als referentie is gekozen de methode waarbij de hoogste emissieresolutie is gecombineerd met een verdeling van lokale emissies over stallocaties voor het 500x500 m vlak waarin het meetpunt ligt. De betreffende stallocaties zijn daarbij afgeleid uit de 1999 topografische kaart in combinatie met lokale waarnemingen. De berekeningen zijn uitgevoerd met versie 12N van het OPS-model.

## Resultaten

Tabel 1. Berekende NH<sub>3</sub> concentraties t.g.v. stalemissies in een gebied van 5000 x 5000 m.

|   | Emissiegebied | Emissie-resolutie | Aantal emissievlakken    | Berekende bijdrage aan meetpunt Vredepeel (µg/m <sup>3</sup> ) |      |
|---|---------------|-------------------|--------------------------|--|------|
|   |               |                   |                          | 1999   | 2000 |
| A | 5000 x 5000 m | 5000 m            | 1                        | 5.11   | 5.00 |
| B | 5000 x 5000 m | 1000 m            | 25                       | 4.13   | 4.10 |
| C | 5000 x 5000 m | 500 m             | 100                      | 7.69   | 8.02 |
| D | 5000 x 5000 m | 500 m             | 99 + lokale puntbron(en) | 5.78   | 4.34 |

Uit tabel 1 blijkt dat de invloed van de emissieresolutie voor dit meetpunt groot is. De hoogste resolutie leidt tot de hoogste berekende concentratie maar dit is geen wetmatigheid gezien het feit dat de 1000 m resolutie tot lagere concentraties leidt dan de 5000 m resolutie. Gezien het verschil tussen de laatste twee gevallen met de hoogste resolutie is het duidelijk dat de bijdrage van stallen in het lokale 500x500 m vlak erg belangrijk is. Dit is in tabel 2 t/m 4 verder uitgewerkt voor respectievelijk de meetpunten Vredepeel, Wekerom en Zegveld. Voor alle drie stations is een berekening gedaan op basis van de stalemissies in het lokale 500x500 m vlak. Daarna is de berekening herhaald maar nu met dezelfde emissiehoeveelheid toegekend aan een of meer stallokaties. De betreffende lokaties zijn deels gebaseerd op verkenning ter plaatse en deels op informatie uit stafkaarten.

Tabel 2. Bijdrage lokale stalemissie in gebied van 500x500 m aan concentraties op meetpunt Vredepeel. Gerekend is met een emissie van 0.23 g/s

|  | NH <sub>3</sub> concentratiebijdrage op meetpunt (ug/m <sup>3</sup> ) |      |      |      |      |      |      |                   |
|--|---|------|------|------|------|------|------|-------------------|
|  | 1995  | 1996 | 1997 | 1998 | 1999 | 2000 | 2001 | 1/9/2000-1/9/2001 |
| Lokale stalemissie als oppervlaktebron         | 7.01  | 6.94 | 6.97 | 6.51 | 6.34 | 6.84 | 5.94 | 5.62              |
| Lokale stalemissie als gelocaliseerde puntbron | 4.72  | 4.69 | 5.28 | 2.77 | 4.43 | 3.16 | 4.48 | 3.57              |
| Vershil  | 2.29  | 2.25 | 1.69 | 3.74 | 1.91 | 3.68 | 1.46 | 2.05              |

Tabel 3. Bijdrage lokale stalemissie in gebied van 500x500 m aan concentraties op meetpunt Wekerom. Gerekend is met een emissie van 0.0875 g/s

|  | NH <sub>3</sub> concentratiebijdrage op meetpunt (µg/m <sup>3</sup> ) |       |       |       |       |       |       |                   |
|--|---|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------------------|
|  | 1995  | 1996  | 1997  | 1998  | 1999  | 2000  | 2001  | 1/9/2000-1/9/2001 |
| Lokale stalemissie als oppervlaktebron         | 2.14  | 2.01  | 2.03  | 2.11  | 2.03  | 2.22  | 2.10  | 1.88              |
| Lokale stalemissie als gelocaliseerde puntbron | 0.806   | 0.808 | 0.688 | 0.610 | 0.645 | 0.767 | 0.709 | 0.553             |
| Vershil  | 1.334   | 1.202 | 1.342 | 1.500 | 1.385 | 1.453 | 1.391 | 1.327             |

Tabel 4. Bijdrage lokale stalemissie in gebied van 500x500m aan concentraties op meetpunt Zegveld. Gerekend is met een emissie van 0.0869g/s

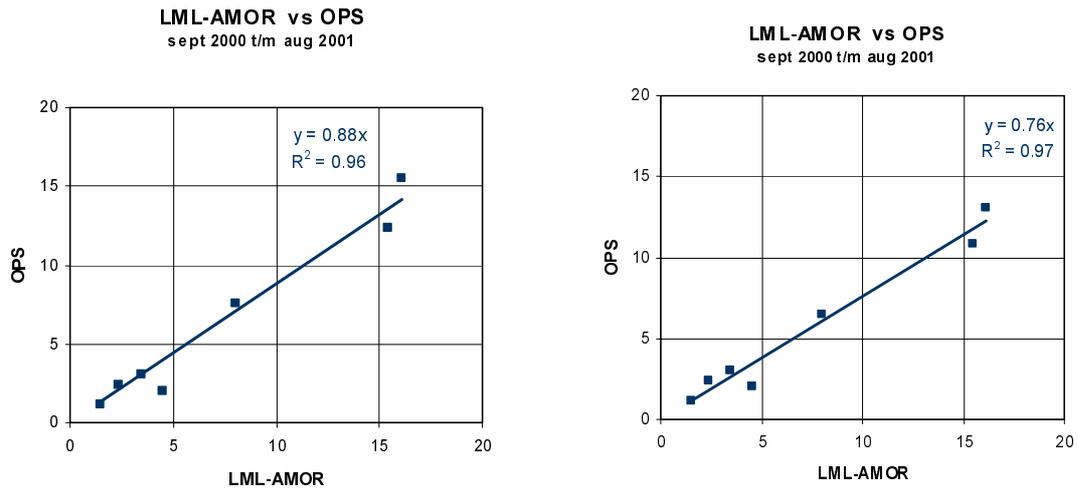
|  | NH <sub>3</sub> concentratiebijdrage op meetpunt (µg/m <sup>3</sup> ) |      |      |      |      |      |      |                   |
|--|---|------|------|------|------|------|------|-------------------|
|  | 1995  | 1996 | 1997 | 1998 | 1999 | 2000 | 2001 | 1/9/2000-1/9/2001 |
| Lokale stalemissie als oppervlaktebron         | 1.99  | 2.01 | 2.02 | 1.89 | 1.90 | 2.02 | 2.03 | 1.87              |
| Lokale stalemissie als gelocaliseerde puntbron | 1.67  | 1.68 | 1.39 | 0.93 | 1.07 | 1.00 | 1.22 | 0.88              |
| Vershil  | 0.32  | 0.33 | 0.63 | 0.96 | 0.83 | 1.02 | 0.81 | 0.99              |

Voor het meetpunt Vredepeel (tabel 2) kan worden geconcludeerd dat:

1. De lokale invloed van de 500x500 m oppervlakte bron is zeer hoog vergeleken bij de invloed van alle soortgelijke emissies in het 5000x5000 m vlak (vergelijk Tabel 2 met 1 voor het jaar 2000: 6.84 versus 8.02). Dit illustreert duidelijk het lokale karakter van NH<sub>3</sub> concentraties.
2. De variatie van jaar tot jaar is bij de puntbron veel groter dan bij de oppervlakte bron (bij gelijkblijvende emissies). Dit komt doordat de invloed van veranderende windrichtingfrequenties bij de puntbronbenadering veel groter is dan bij een diffuse oppervlaktebron. Vooral het verschil tussen 1997 en 1998 bij het meetpunt Vredepeel is opmerkelijk.

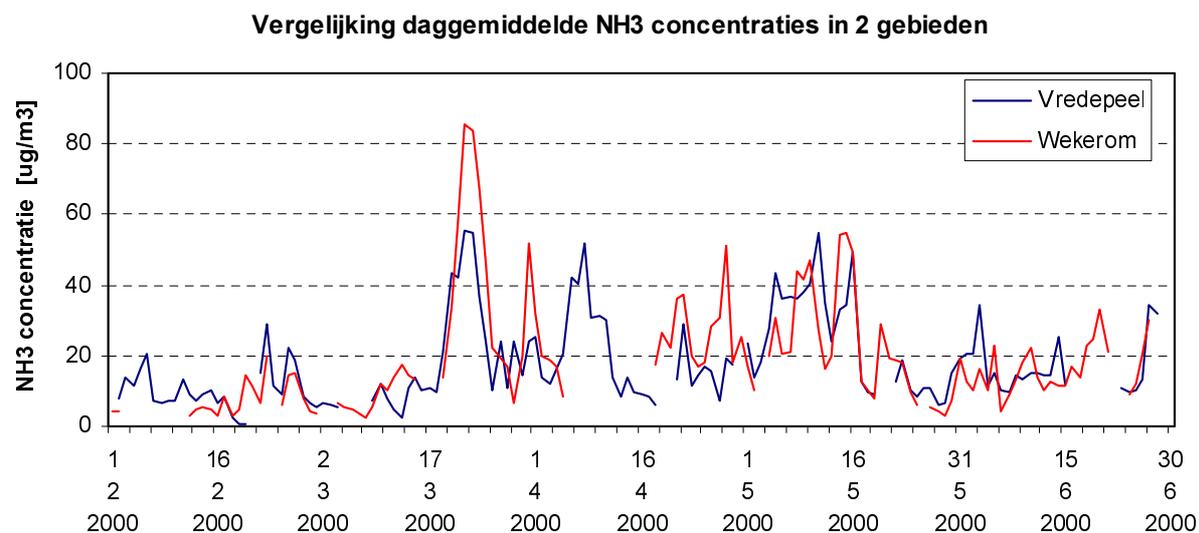
De verschillen tussen de puntbron- en de oppervlaktebronbenadering kunnen bij de vergelijking van modelberekeningen met de metingen als correcties op de modelberekeningen voor de respectievelijke meetstations worden toegepast. Omdat de getallen in de tabellen 2-4 zijn gebaseerd op nominale emissies voor het betreffende 500x500 m vlak, wordt het berekende verschil nog gecorrigeerd voor de werkelijke emissies in dat jaar. De aldus toegepaste methode doet de vergelijking model en metingen voor alle afzonderlijke jaren verbeteren ( $R^2 = 0.90$ ). Ook wordt de verhouding gemiddeld modelresultaat en gemiddeld meetresultaat over de jaren heen constanter.

In de vergelijking modelresultaten en passieve metingen zien we dat de resultaten voor de LML-metelokaties en de totale set van 159 meetpunten nagenoeg gelijk worden.



*Figuur 2* Vergelijking modelberekening met metingen van het LML voor (links) en na (rechts) correctie voor lokale stalinvoeden.





Figuur 1. Vergelijking van daggemiddelde NH<sub>3</sub> concentraties voor 2 gebieden

Over het algemeen correleren de stations met hoge lokale belasting (131,738) onderling goed met elkaar en stations met lage lokale belasting onderling ook goed (235, 444, 928).

De methode die wordt toegepast om de ontbrekende waarneming te assimileren is de volgende:

Allereerst wordt eenmalig voor elk station  $v(i, j)$  bepaald.  $v(i, j)$  is de verhouding tussen de lange termijn gemiddelde NH<sub>3</sub> concentratie van station  $i$  en station  $j$ . Wanneer voor een bepaalde dag de waarneming op station  $j$  ontbreekt dan wordt de vervangende concentratie  $C(j)$  berekend uit (het gemiddelde van) de concentraties op de overige stations  $C(i)$ , waarbij deze concentraties worden vermenigvuldigd met de gemiddelde concentratieverhouding  $v(i, j)$  en een weegfactor  $wf(i, j)$  welke gelijk is aan  $R^2$  uit Tabel 1. In formulevorm:

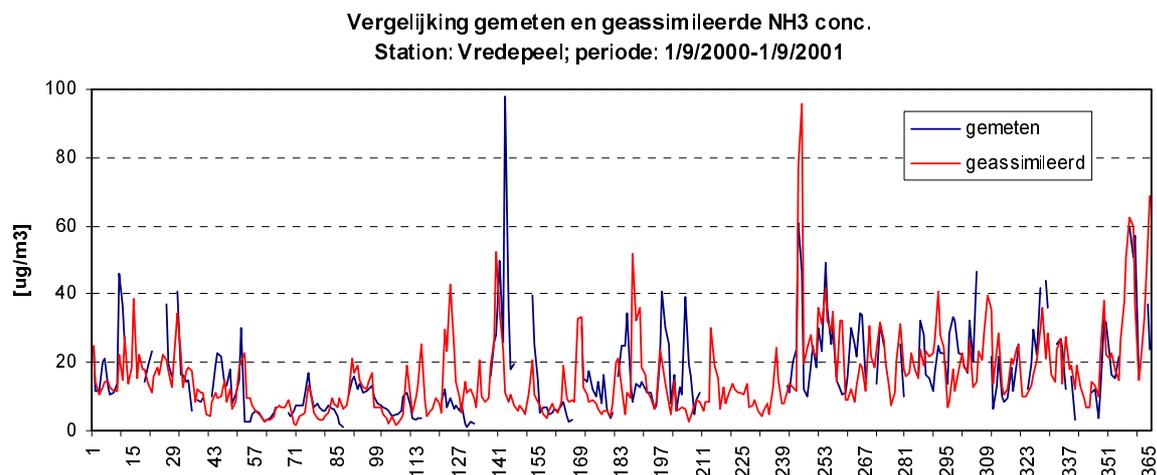
$$C(j) = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n C(i) v(i, j) wf(i, j)$$

Hierbij is  $n$  het aantal stations met een geldige meetwaarde voor de betreffende dag. Het voordeel van deze benadering dat het station dat qua gedrag het meest lijkt op het ontbrekende station ook het meest bepalend is voor de geassimileerde meetwaarde. Door alle meetstations in de procedure te betrekken is er bijna altijd wel een geassimileerde waarde te bepalen.

## Resultaten

De performance van deze methode kan bepaald worden door voor een bepaalde periode alle dagwaarden te assimileren en deze te vergelijken met de gemeten waarde. Voor de 8 stations ligt de correlatie coëfficiënt ( $R^2$ ) tussen 0.34 en 0.48 (bepaald t.o.v. een lineaire regressielijn  $y = ax + b$ ). In Figuur 3 is een vergelijking gegeven van enerzijds de gemeten daggemiddelden voor het station Vredepeel en anderzijds de waarde die verkregen wordt als de concentratie volledig wordt afgeleid uit de overige waarnemingen. De concentraties van stations met

lagere concentraties blijken minder goed te assimileren dan die van stations met hogere concentraties. Een verbetering zou zijn wanneer de gemiddelde concentratieverhoudingen per windrichtingsector zouden worden gehanteerd. Stations als De Zilk (444) en Huijbergen (235) vertonen een typische windrichtingafhankelijkheid. Voor de Zilk wordt dit veroorzaakt door de nabijgelegen Noordzee waardoor de concentratie nagenoeg nul is bij westelijke winden.



Figuur 2 Vergelijking van gemeten NH<sub>3</sub> concentraties met waarden geassimileerd uit waarnemingen op overige LML meetstations.

Tabel 2. Aantal valide daggemiddelde NH<sub>3</sub> concentraties in de periode sep 2000 – sep 2001 per LML meetstation

| jaar | maand | 131 | 235 | 444 | 538 | 633 | 722 | 738 | 929 |
|------|-------|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|
| 2000 | 9     | 19  | 25  | 28  | 27  | 27  | 30  | 27  | 23  |
| 2000 | 10    | 28  | 27  | 29  | 30  | 26  | 30  | 23  | 17  |
| 2000 | 11    | 26  | 18  | 22  | 22  | 28  | 19  | 26  | 23  |
| 2000 | 12    | 25  | 17  | 18  | 9   | 27  | 21  | 18  | 23  |
| 2001 | 1     | 21  | 26  | 11  | 23  | 22  | 29  | 9   | 30  |
| 2001 | 2     | 25  | 20  | 19  | 19  | 16  | 21  | 15  | 23  |
| 2001 | 3     | 29  | 22  | 13  | 20  | 19  | 18  | 24  | 25  |
| 2001 | 4     | 3   | 21  | 10  | 27  | 0   | 18  | 21  | 23  |
| 2001 | 5     | 28  | 24  | 13  | 26  | 9   | 20  | 17  | 28  |
| 2001 | 6     | 21  | 25  | 25  | 23  | 27  | 25  | 25  | 18  |
| 2001 | 7     | 22  | 19  | 10  | 25  | 26  | 15  | 21  | 15  |
| 2001 | 8     | 20  | 26  | 11  | 25  | 20  | 22  | 17  | 17  |
| 2001 | 9     | 12  | 29  | 28  | 26  | 24  | 24  | 21  | 26  |

Tabel 3.  $NH_3$  concentraties per LML meetstation na assimilatie van ontbrekende waarnemingen

| jaar | maand | 131  | 235 | 444 | 538 | 633  | 722  | 738  | 929 |
|------|-------|------|-----|-----|-----|------|------|------|-----|
| 2000 | 9     | 21.2 | 1.8 | 2.3 | 8.3 | 9.5  | 6.2  | 17.0 | 3.3 |
| 2000 | 10    | 10.7 | 1.6 | 1.4 | 4.4 | 4.9  | 5.5  | 9.0  | 3.1 |
| 2000 | 11    | 7.7  | 1.7 | 0.9 | 1.8 | 2.6  | 7.0  | 4.9  | 2.5 |
| 2000 | 12    | 7.9  | 1.3 | 1.5 | 2.4 | 3.7  | 8.5  | 7.3  | 2.7 |
| 2001 | 1     | 17.4 | 1.6 | 1.2 | 3.0 | 6.6  | 12.5 | 14.1 | 3.6 |
| 2001 | 2     | 10.7 | 1.6 | 0.6 | 1.5 | 5.5  | 6.9  | 10.9 | 2.8 |
| 2001 | 3     | 16.0 | 2.4 | 1.4 | 3.2 | 8.2  | 8.4  | 12.0 | 3.8 |
| 2001 | 4     | 12.5 | 1.8 | 1.0 | 3.0 | 6.8  | 7.1  | 10.5 | 3.3 |
| 2001 | 5     | 24.1 | 4.9 | 2.7 | 9.9 | 15.4 | 10.8 | 23.7 | 3.6 |
| 2001 | 6     | 20.0 | 3.0 | 1.0 | 3.3 | 11.4 | 9.9  | 22.5 | 3.1 |
| 2001 | 7     | 22.3 | 3.2 | 1.9 | 6.2 | 10.4 | 10.1 | 21.6 | 3.9 |
| 2001 | 8     | 22.1 | 3.3 | 2.1 | 7.2 | 10.5 | 12.4 | 32.5 | 5.6 |
| 2001 | 9     | 11.4 | 0.9 | 0.7 | 3.4 | 4.2  | 4.4  | 11.8 | 2.1 |

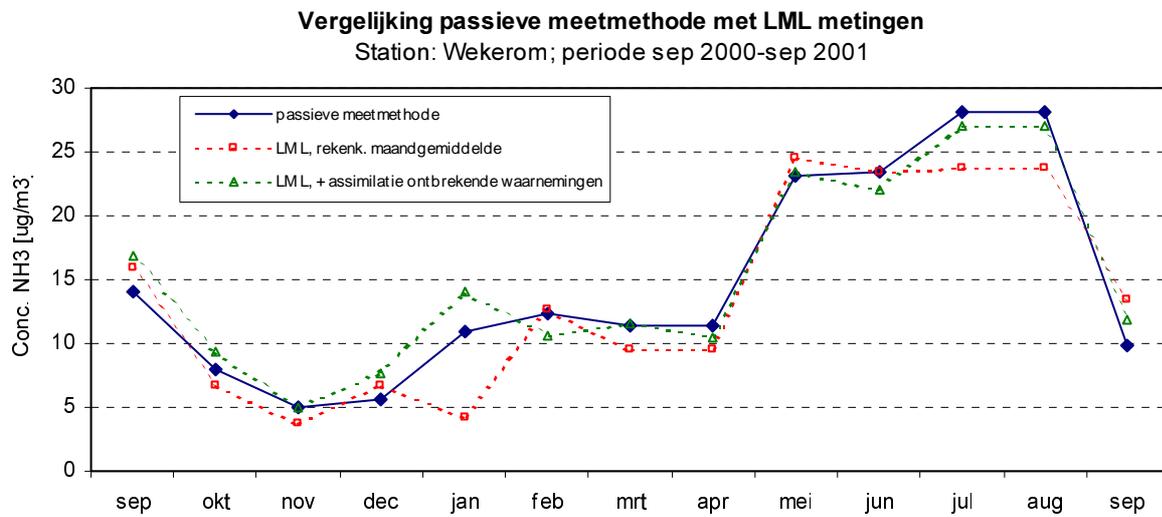
Tabel 4. Verhouding van het rekenkundig gemiddelde van de waarnemingen en het gemiddelde van de concentratie na assimilatie van ontbrekende waarnemingen

| jaar | maand | 131  | 235  | 444  | 538  | 633  | 722  | 738  | 929  |
|------|-------|------|------|------|------|------|------|------|------|
| 2000 | 9     | 1.03 | 0.94 | 1.00 | 1.08 | 1.00 | 1.00 | 0.94 | 0.94 |
| 2000 | 10    | 1.04 | 1.06 | 1.00 | 1.05 | 0.90 | 0.96 | 0.74 | 1.16 |
| 2000 | 11    | 0.97 | 1.12 | 1.11 | 0.83 | 0.88 | 1.30 | 0.78 | 1.08 |
| 2000 | 12    | 1.03 | 0.92 | 1.40 | 1.17 | 0.81 | 1.22 | 0.92 | 1.00 |
| 2001 | 1     | 1.21 | 0.94 | 0.92 | 0.90 | 0.92 | 1.04 | 0.30 | 0.94 |
| 2001 | 2     | 0.88 | 1.00 | 0.83 | 0.80 | 1.11 | 1.06 | 1.17 | 0.93 |
| 2001 | 3     | 1.04 | 0.83 | 0.93 | 0.94 | 1.10 | 1.08 | 0.80 | 1.13 |
| 2001 | 4     | 1.18 | 0.89 | 0.70 | 1.07 | #    | 0.97 | 0.91 | 1.12 |
| 2001 | 5     | 1.04 | 1.14 | 0.78 | 1.10 | 0.69 | 1.09 | 1.04 | 1.03 |
| 2001 | 6     | 1.11 | 1.00 | 0.80 | 0.94 | 1.03 | 1.01 | 1.04 | 1.00 |
| 2001 | 7     | 1.00 | 0.97 | 0.68 | 1.02 | 0.96 | 1.18 | 1.04 | 1.18 |
| 2001 | 8     | 1.08 | 1.06 | 0.76 | 1.01 | 1.18 | 0.82 | 1.39 | 1.38 |
| 2001 | 9     | 1.31 | 1.00 | 1.00 | 1.09 | 0.93 | 0.91 | 1.14 | 1.05 |

# geen valide waarnemingen

In Tabel 2 t/m 4 zijn de resultaten per station en per maand voor de periode dat de metingen met de passieve samplers hebben plaats gevonden. Tabel 2 geeft een overzicht van het aantal valide dagwaarden (gedefinieerd als dagen met minimaal 12 beschikbare uurwaarden). Met name in april is de uitval hoog. Ten opzichte van het rekenkundig gemiddelde van de meetwaarden in deze maand is het verschil met de geassimileerde waarden aanzienlijk. De verhouding tussen beide varieert in deze maand tussen 0.70 (De Zilk) en 1.18 (Vredepeel). Over de gehele periode en alle stations is het bereik van deze verhouding 0.30 (Wekerom, januari 2001) tot 1.40 (De Zilk, december 2000). In Figuur 3 is te zien dat de resultaten van de methode met assimilatie van ontbrekende waarnemingen in het algemeen beter overeenstemmen met de resultaten van de passieve meetmethode dan de methode zonder

assimilatie. Zie hierbij ook Figuur 2.2 in paragraaf 2 waarbij dezelfde vergelijking is gedaan op basis van het gemiddelde van alle stations.



*Figuur 3. Vergelijking van de passieve meetmethode met LML resultaten voor het station Wekerom.*

## Bijlage 3 Verzendlijst

1. M. Alessi, DGM
2. K. Sanders, DGM
3. J. Sliggers, DGM
4. S. Smeulders, DGM
5. G. de Vries, DGM
6. E. Mulleneers, LNV
7. L. Tan, LNV
8. J. Karres, LNV
9. E. Steenland, LNV-Regio Oost
10. S. van der Lubbe, LNV-Regio Noord
11. R. Smeenge, Prov. Gelderland
12. W. de Boer, Prov. Friesland
13. R. Bos, Prov. Friesland
14. C. Venderbos, Prov. Noord-Brabant
15. J. van Lent, Prov. Noord-Brabant
16. G. Louwers, Prov. Limburg
17. K. Folkertsma, Prov. Drenthe
18. A. van der Ende, Gem. Ede
19. W. de Vries, Alterra
20. J. Weststrate, TNO
21. J. Duyzer, TNO
22. S. Mesu, EC-LNV
23. G-J. Monteny, IMAG
24. M. Smits, IMAG
25. B. Holtslag, WUR
26. A. Jacobs, WUR
27. P. Hofschreuder, WUR
28. A. Tietema, UVA
29. R. van Diggelen, RUG
30. H. Leneman, LEI-DLO
31. L. van Staalduinen, LEI-DLO
32. J. Steenvoorden, Alterra
33. H. Spiertz, WUR
34. Depot Nederlandse Publikaties en Nederlandse Bibliografie
35. K. van Egmond,
36. K. van de Hoek
37. R. van den Berg
38. H. Westhoek
39. T. van der Meulen
40. G. Velders
41. E. Buisman
42. D. van Lith
43. H. Diederren
44. R. Albers
45. J. Aben
46. J. Beck
47. T. van der Meulen
48. G. Velders
- 49-55. Auteurs
56. SBC/Communicatie
- 57 Bureau Rapportenregistratie
- 58 Bibliotheek RIVM

59-79 Bureau Rapportenbeheer

79-100 Reserve exemplaren