

Rapport nr. 723 101 047

**Ruimtelijke statistiek voor de optimalisatie van het  
Landelijk Meetnet Regenwater**

*Van metingen naar natte deposities door kriging*

A.L.M. Dekkers en E. Buijsman

februari 2001

Dit onderzoek werd verricht in opdracht en ten laste van DGM/Directie  
Klimaatveranderingen en Industrie in het kader van project 723101, Monitoring Lucht.

## Abstract

Two proposals are made in RIVM report 723101 called (in Dutch) “*Een nieuwe meetstrategie voor de metingen van de chemische samenstelling van neerslag in het Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit*” for redefining the measurement strategy of the Dutch National Air Quality Monitoring Network. One of the options concerns the use of universal kriging, a spatial statistical method for linear interpolation, to produce a monitoring network comprising approximately eight sites for measuring sulphate and nitrate. The spatial statistical models for each compound enable an objective spatial translation of the measurements at the resulting monitoring stations into deposition fields. The underlying report gives the mathematical and methodological background for this approach, describing the results of a pilot study for wet sulphate, nitrate and ammonia deposition in the Netherlands. The precipitation measurements of the Dutch National Air Quality Monitoring Network and the meteorological measurements of the Royal Dutch Meteorological Institute functioned as the basic data. Spatial behaviour was studied for each compound; spatial models were estimated for sulphate and nitrate for several years. Next, a more general spatial model was described for each of the two compounds, which will allow almost automatic prediction of the deposition fields in future. However, it will be impossible to construct these spatial statistical models if the Dutch National Air Quality Monitoring Network for precipitation is reduced from 15 to 8 locations. The spatial density of the 15 locations of the Dutch National Air Quality Monitoring Network for precipitation has already been found too small to describe the spatial correlation of ammonia. A spin-off of the pilot study is an S-PLUS tool for comparing maps containing the results of different spatial models of different configurations of the network. The comparisons can be made interactively in a few minutes. The S-PLUS tool can be seen as a small decision-support system for finding the optimal configuration of the network for sulphate and nitrate.

# Inhoud

<b>SAMENVATTING</b>	<b>4</b>
<b>1 INLEIDING</b>	<b>5</b>
<b>2 METHODOLOGISCHE OPZET</b>	<b>6</b>
2.1 Inkadering van het onderzoek	6
2.2 Kriging	7
2.3 Berekening ruimtelijke velden van natte deposities	9
2.4 Vergelijken van resultaten	9
2.5 Tool voor interactieve optimalisatie LMR	10
<b>3 RESULTATEN VAN HET ONDERZOEK</b>	<b>11</b>
3.1 Modelling van de neerslaggegevens	11
3.2 Modelling van de sulfaat gegevens	12
3.3 Modelling van de nitraat gegevens	13
3.4 Modelling van de ammonium gegevens	14
3.5 Predicties natte deposities voor sulfaat en nitraat	14
3.6 Universal kriging versus DEADM	14
<b>4 OPTIMALISATIE VAN HET LMR</b>	<b>16</b>
4.1 Automatisering kriging methode	16
4.2 Resultaten van de benaderende ruimtelijke modellen	17
4.3 Optimalisatie van het LMR	19
<b>5 CONCLUSIES</b>	<b>21</b>
<b>LITERATUUR</b>	<b>22</b>
<b>VERZENDLIJST</b>	<b>23</b>
<b>BIJLAGE A LMR GEGEVENS</b>	<b>24</b>
<b>BIJLAGE B FIGUREN</b>	<b>25</b>

## Samenvatting

Dit rapport is het achtergronddocument bij RIVM rapport nr. 723101 033 “*Een nieuwe meetstrategie voor de metingen van de chemische samenstelling van neerslag in het Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit*”. In dit rapport worden voorstellen gedaan voor een nieuwe meetstrategie voor de metingen van de chemische samenstelling van neerslag in het Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit. Het nu voorliggende rapport is een inhoudelijke verduidelijking en verdieping van één van de voorstellen in genoemd rapport en als zodanig een aanvulling erop.

Dit achtergronddocument beschrijft de resultaten van een pilotstudy, waarin onderzocht is in hoeverre ruimtelijke interpolatie technieken, met name *Universal Kriging*, toegepast kunnen worden om inzicht te verkrijgen in de ruimtelijke kwaliteit van het bestaande meetnet, de kwalitatieve gevolgen van een vermindering van het aantal meetpunten en de optimale configuratie van een uitgedund meetnet. Bij dit onderzoek vormen de meetresultaten uit het Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit en neerslaggegevens uit het KNMI meetnet het basismateriaal. De voor de afzonderlijke luchtcomponenten afgeleide Universal Kriging modellen vormen het modelleninstrumentarium om te voorzien in de informatiebehoeften voor een aantal beleidsthema's van de Milieubalans. Deze pilotstudy is beperkt tot de verzurende componenten sulfaat, nitraat en ammonium. De geoperationaliseerde doelstelling van het onderzoek is als volgt geformuleerd: definieer een meetnetconfiguratie waarvoor geldt dat met een zo gering mogelijke meetinspanning een zo goed mogelijk ruimtelijk beeld van de natte deposities voor de verzurende componenten in Nederland afgeleid kan worden.

Het onderzoek heeft geleid tot twee afzonderlijke ruimtelijke modellen: één voor sulfaat en één voor nitraat, waarbij is gebleken dat bij een terugbrengen van 15 tot 8 meetpunten deze ruimtelijke modellen in de toekomst niet meer zijn af te leiden door de te geringe dichtheid van het geoptimaliseerde meetnet. Tevens blijkt uit het onderzoek dat het huidige meetnet van 15 meetpunten een te geringe dichtheid heeft om het ruimtelijk gedrag van ammonium te kunnen beschrijven met een ruimtelijk lineair interpolatie model dat alleen op meetgegevens is gebaseerd.

Het onderzoek heeft verder geresulteerd in een eenvoudige methode om kaarten met elkaar te vergelijken. Deze methode is in een S-PLUS programma geïmplementeerd zodat het mogelijk is op basis van de twee afgeleide modellen direct de invloed op de natte deposities voor sulfaat en nitraat van een nieuwe meetnetconfiguratie van het Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit door te rekenen en op kwaliteitsverandering te analyseren.

# 1 Inleiding

Eén van de activiteiten in het Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit (LML) is het uitvoeren van monsternemingen van neerslag om de chemische samenstelling ervan te bepalen. Dit onderdeel van het LML, dat ook wel het Landelijk Meetnet Regenwater-samenstelling (LMR) wordt genoemd, bestaat sinds 1978 en is sinds 1988 opgebouwd uit 15 meetpunten. De metingen worden verricht om te voorzien in de informatiebehoeften voor een aantal beleidsthema's die behandeld worden in de Milieubalans (o.a. 'Verzuring', 'Vermesting' en 'Verspreiding'). In 1997 is een project gestart met als belangrijkste doelstellingen om te onderzoeken of de huidige meetstrategie nog tegemoet komt aan de informatiebehoeften én of een meetnet met een minder aantal meetpunten ook nog zou kunnen voldoen aan de huidige informatiebehoeften. Voor dit tweede aspect is besloten om in een pilotstudy te onderzoeken of ruimtelijk-statistische technieken, en dan met name kriging, toegepast zouden kunnen worden om inzicht te krijgen in de ruimtelijke kwaliteit van het bestaande meetnet en de gevolgen van een eventuele vermindering van het aantal meetpunten. Uit pragmatische overwegingen heeft dit onderdeel van het project zich gericht op de verzurende componenten, d.w.z. ammonium, nitraat en sulfaat.

De geoperationaliseerde doelstelling van het onderzoek was: optimalisatie van het LMR, d.w.z. met zo min mogelijk meetinspanning een zo goed mogelijk ruimtelijk beeld van de natte deposities in Nederland te verkrijgen voor de componenten sulfaat, nitraat en ammonium.

In dit rapport worden de methodologische aanpak van het onderzoek en de resultaten ervan besproken. Dit rapport kan gezien worden als een inhoudelijke verduidelijking en verdieping en is als zodanig een aanvulling op het rapport *'Een nieuwe meetstrategie voor de metingen van de chemische samenstelling van neerslag in het Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit'* (BUIJSMAN, E.; DEKKERS, A.L.M.; ABEN, J.A. EN JAARVELD, J.A. VAN, 1998).

## 2 Methodologische opzet

Alvorens met de analyse van de beschikbare gegevens te beginnen, wordt nu eerst ingegaan op de beschikbare methoden om tot een optimalisatie van een meetnet te komen. Doel hierbij is geweest zoveel mogelijk inzicht te verschaffen in de gevolgen van de optimalisatie voor de komende jaren. Daartoe wordt in 2.1 de inkadering van het onderzoek gegeven en in 2.2 de gevolgde methode besproken. Het berekenen van de natte depositievelden is in 2.3 vastgelegd en vervolgens wordt in 2.4 aangegeven hoe de kaarten van depositievelden met elkaar vergeleken worden, zodat men handgrepen heeft om de invloed van berekeningswijzen en LMR configuraties te vergelijken. In 2.5 wordt kort een tool voor interactieve optimalisatie van het LMR besproken.

### 2.1 Inkadering van het onderzoek

De beperkt beschikbare tijd voor het onderzoek heeft noodzakelijkerwijs geleid tot een keuze vooraf met betrekking tot de te onderzoeken parameter. Er is gekozen voor depositie, waarbij zo mogelijk gebruik gemaakt zou kunnen worden van de concentratie waarnemingen op het beperkt aantal meetpunten (15) van het LMR gecombineerd met de metingen van de neerslaghoeveelheden uit het uitgebreide KNMI meetnet (ruim 300 meetpunten).

Om de optimalisatie te onderbouwen zijn de volgende vragen aan de orde gekomen:

1. Op welke wijze kan men het beste op basis van neerslaghoeveelheden uit het KNMI meetnet en van volume gewogen jaargemiddelde concentraties uit het LMR komen tot predicties van natte deposities op iedere 5x5 km gridcel in Nederland ?  
Op welke wijze kan men vervolgens het beste het LMR uitdunnen en hoe ver kan men gaan om in de komende jaren op verantwoorde wijze natte depositie predicties te geven ?
2. Wat is de invloed van de uitdunning van het LMR op het landelijk beeld van de natte deposities ?
3. Kan de gevolgde methode voor het maken van de ruimtelijke velden van natte deposities ontwikkeld worden tot een automatische berekening ?

Tijdens het onderzoek zijn een aantal randvoorwaarden naar voren gekomen, waar de berekeningswijze aan diende te voldoen:

1. De methode dient methodologisch goed onderbouwd te zijn en het dient duidelijk te zijn wat de voor- en nadelen zijn van de uitdunning.
2. De methode dient eenvoudig te zijn, zodat, indien gewenst, in de komende jaren de productie op het Laboratorium voor Luchtonderzoek (LLO) kan worden uitgevoerd, terwijl er maximaal gebruik wordt gemaakt van de ruimtelijke informatie die in de gegevens opgesloten ligt.
3. De methode dient reproduceerbaar te zijn.
4. De methode dient component gericht te zijn (verbetering van huidige werkwijze).
5. De methode dient een zo hoog mogelijke ruimtelijke differentiatie te bevatten.
6. Indien mogelijk, dient er een indicatie van de betrouwbaarheid van de resultaten gegeven te worden.

Bij de berekening van de natte depositievelden wordt alleen gebruik gemaakt van de meetgegevens over neerslag en concentraties nitraat, sulfaat en ammonium in neerslag. Dit geeft aanleiding tot het gebruik van kriging.

## 2.2 Kriging

Kriging is een veel gebruikte methode voor de interpolatie van ruimtelijke gegevens om te komen tot voorspellingen op punten waar niet gemeten is. Op basis van een beperkt aantal waarnemingen, aangeduid met  $\mathbf{z}_i = \mathbf{z}(\mathbf{u}_i)$  ( $i=1, 2, \dots, n$ ), op ruimtelijke locaties  $\mathbf{u}_i$  met  $\mathbf{u}_i = (x_i, y_i)$ , wordt dus getracht het volledige oppervlak van het onbekende proces te voorspellen. Hiervoor gebruikt men de kriging voorspeller  $\mathbf{S}(\mathbf{u})$ , die geschreven kan worden als (zie o.a. DIGGLE, P.J.; TAWN, J.A. AND MOYEED, R.A., 1998)

$$\hat{\mathbf{S}}(\mathbf{u}) = \sum_{i=1}^n w_i(\mathbf{u}) \mathbf{z}(\mathbf{u}_i), \quad (1)$$

waarbij de gewichten  $w_i(\mathbf{u})$  afgeleid worden uit het geschatte gemiddelde en de geschatte covariantiestructuur van de waarnemingen. De afleiding gebeurt op basis van een model. Daarvoor wordt verondersteld dat de waarnemingen worden voortgebracht door een stationair isotroop random field proces (zie o.a. BARENDREGT, L.G. EN DEKKERS, A.L.M., 1993). Zo'n proces kan geschreven worden als

$$\mathbf{Z}_i = \mathbf{Z}(\mathbf{u}_i) = \mathbf{m}(\mathbf{u}_i) + \mathbf{S}(\mathbf{u}_i) + \mathbf{W}_i, \quad i = 1, 2, \dots, n, \quad (2)$$

waarbij  $\mathbf{m}$  een constant gemiddelde effect is,  $\mathbf{S}(\mathbf{u})$  een stationair Gaussisch proces met  $E[\mathbf{S}(\mathbf{u})] = 0$  en  $\text{cov}(\mathbf{S}(\mathbf{u}), \mathbf{S}(\mathbf{v})) = \Sigma$ , de onbekende covariantie structuur. Verder zijn  $\mathbf{W}_i$  onderling onafhankelijk en  $N(0, \tau^2)$  verdeeld (DIGGLE, P.J.; TAWN, J.A. AND MOYEED, R.A., 1998). De berekening van het onbekende oppervlak  $S$  volgt uit de literatuur en is in S-PLUS functies geïmplementeerd (zie STATISTICAL SCIENCES, 1995 en MATHSOFT, 1996). Waar het hier om gaat is het modelleren van de onbekende covariantiestructuur  $\Sigma$ , die uit  $n(n-1)/2$  onbekende parameters bestaat. Omdat er  $n$  waarnemingen beschikbaar zijn, is het dus nodig deze structuur met een model te beschrijven dat veel minder parameters bevat. Dit gebeurt via het semivariogram, dat gedefinieerd is als:

$$\begin{aligned} \gamma(\mathbf{u}, \mathbf{v}) &= \frac{1}{2} \text{var}[\mathbf{z}(\mathbf{u}) - \mathbf{m}(\mathbf{u}) - (\mathbf{z}(\mathbf{v}) - \mathbf{m}(\mathbf{v}))] \\ &= \frac{1}{2} \text{var}[\mathbf{z}(\mathbf{u}) - \mathbf{z}(\mathbf{v})] \end{aligned} \quad (3)$$

waarbij het laatste gelijk teken dan en slechts dan geldt als  $\mathbf{m}(\mathbf{u}) = \mathbf{m}(\mathbf{v})$  voor alle  $\mathbf{u}$  en  $\mathbf{v}$ . Dit geldt dus niet indien er een trend in de waarnemingen aanwezig is! Indien er een trend aanwezig is, dient men die eerst te verwijderen door een lineaire regressie uit te voeren met als verklarende parameters een polynoom in  $x$ - en  $y$ -coördinaten die de trend beschrijven, bijvoorbeeld met een tweede graads polynoom

$$\mathbf{z}(\mathbf{u}) = \mathbf{z}(x, y) = \alpha + \beta_1 x + \beta_2 y + \beta_3 x^2 + \beta_4 y^2 + \varepsilon. \quad (4)$$

Dus eerst wordt de graad van het polynoom vastgelegd en vervolgens de onbekende parameters geschat. Het is dus geen lineaire regressie in de klassieke zin, waarbij men zo goed mogelijk de relatie tussen verklarende variabelen en de te verklaren variabele wil beschrijven. Dit hoeft ook niet omdat wat er aan ruimtelijke afhankelijkheid in de residuen overblijft, wordt meegenomen in de modellering van het semivariogram. Dit

wordt hierna uitgelegd. Deze methode heet kriging met een trend model. Indien voor alle  $\mathbf{u}$ ,  $m(\mathbf{u})$  constant maar onbekend blijkt te zijn in (2), spreekt men van ordinary kriging. In het vervolg gaan we ervan uit dat  $m(\mathbf{u})=m(\mathbf{v})$  voor alle  $\mathbf{u}$  en  $\mathbf{v}$  en dat het onderliggende proces  $Z$  isotroop is, d.w.z. dat het proces  $Z$  zich in alle richtingen hetzelfde gedraagt. De crux van de geostatistiek bestaat dan uit het modelleren van de ruimtelijke afhankelijkheid die in de metingen aanwezig is ten gevolge van het feit dat waarnemingen die ruimtelijke dicht bij elkaar liggen ook meer op elkaar zullen lijken dan waarnemingen op grote afstand van elkaar. Om dit te bestuderen kijkt men naar de kwadratische verschillen tussen alle waarnemingen, een voorbeeld is te zien in Figuur 1. Omdat deze figuur weinig informatie over het ruimtelijke gedrag van het proces  $Z$  geeft, wordt de afstand verdeeld in equidistante intervallen waarover men dan het gemiddelde neemt. Dit leidt tot een empirisch semivariogram als analogon van het semivariogram zoals gedefinieerd in (3). Dit gebeurt met bijvoorbeeld de volgende schatter

$$\hat{\gamma}(h) = \frac{1}{2N_h} \sum_{i=1}^{N_h} (z(\mathbf{u}_i) - z(\mathbf{u}_{i(h)}))^2 \quad (5)$$

waar de paren  $(\mathbf{u}_i, \mathbf{u}_{i(h)})$ ,  $i = 1, 2, \dots, N_h$  bestaan uit alle waarnemingen op afstand  $h$  van elkaar. Een voorbeeld is gegeven in Figuur 2. Er zijn ook andere semivariogram schatters dan (5), zie o.a. CRESSIE, N.A.C. (1991).

Vervolgens wordt aan dit empirische variogram een theoretisch semivariogram gefit. Slechts een beperkt aantal semivariogrammen leidt tot een semi-positieve variantie-covariantie matrix  $\Sigma$ . In deze studie worden er twee gebruikt: het sferisch semivariogram:

$$\gamma(h) = \begin{cases} 0, & \text{als } h = 0 \\ \sigma_0^2 + \sigma^2 \left[ 1.5 \frac{h}{a} - 0.5 \left( \frac{h}{a} \right)^3 \right], & \text{als } 0 < h \leq a \\ \sigma_0^2 + \sigma^2, & \text{als } h \geq a \end{cases} \quad (6)$$

en het gaussisch semivariogram, dat gedefinieerd is als:

$$\gamma(h) = \begin{cases} 0, & \text{als } h = 0 \\ \sigma_0^2 + \sigma^2 \left[ 1 - \exp\left(-\frac{h^2}{a^2}\right) \right], & \text{als } h > 0 \end{cases} \quad (7)$$

In beide formules stelt  $\sigma_0^2 + \sigma^2$  de *sill* voor, -de theoretische variantie van de waarnemingen-,  $\sigma_0^2$  het *nugget effect* dat in de literatuur vaak met de meetfout wordt vergeleken, en  $a$  de *range*, d.w.z. de afstand waarbinnen de waarnemingen afhankelijk zijn. Voor het sferisch semivariogram (6) is de effectieve range  $a$  en voor het gaussisch semivariogram (7)  $a\sqrt{3}$  (zie voor theorie DEUTSCH, C.V. AND JOURNAL, A.G. (1991) en voor de vorm van de functie Figuur 3). De drie onbekende parameters kunnen op basis van het empirische semivariogram geschat worden via een gewogen niet-lineaire regressie (zie getrokken kromme in Figuur 4). Merk nogmaals op dat de semivariogrammen in (6) en (7) slechts drie parameters bevatten in plaats van de oorspronkelijke  $n(n-1)/2$  van  $\Sigma$  in de verdeling van  $S$  in (2).



Het modelleren van de eventuele trend en de ruimtelijke afhankelijkheid is de eerste fase van de kriging procedure, dit is weergegeven in Figuur 5. Het berekenen van oppervlak  $S$  via de lineaire interpolatie is de tweede fase, weergegeven in Figuur 6.

### 2.3 Berekening ruimtelijke velden van natte deposities

Voor de berekening van deze ruimtelijke velden is gebruik gemaakt van GUERTIN, K.; VILLENEUVE, J.; DESCHÊNES, S. AND JACQUES, G. (1988) *The choice of working variables in the geostatistical estimation of the spatial distribution of ion concentration from acid precipitation*. In dit artikel wordt aangetoond dat bij een constante hoeveelheid neerslag over een gebied, de predicties van de concentraties berekend kunnen worden via kriging en vervolgens kan dan de natte deposities berekend worden per gridcel. Voorwaarde is dat de ruimtelijke variabiliteit van de neerslag veel kleiner is dan die van de concentraties én dat de correlatie tussen neerslag en concentratie gering is. Aan de laatste voorwaarde is hier voldaan. De correlatiecoëfficiënt tussen de geïnterpoleerde neerslagvelden voor 1993 t/m 1995 en de geïnterpoleerde sulfaat concentraties lopen uiteen van -0.74 tot -0.35. Voor nitraat loopt de correlatiecoëfficiënt van -0.70 tot 0.29. Uit semivariogram modellen, die zijn berekend met (5), (6) en (7), blijkt dat de ruimtelijke variabiliteit van resp. de concentraties en de neerslag praktisch in dezelfde orde van grootte is zoals blijkt uit Tabel 1, Tabel 3 en Tabel 5 op resp. pagina 11, 12 en 13. Vervolgens is besloten om de volgende methode te gebruiken:

1. Bereken via kriging een ruimtelijk veld van de gewogen volume concentraties voor het 5x5 km grid over Nederland.
2. Idem voor de hoeveelheid neerslag.
3. Bereken vervolgens de totale natte depositie in mol/ha per gridcel van 5x5 km via

$$depositie_u = concentratie_u * neerslag_u / 100 \quad (8)$$

waarbij  $u$  de index van de gridcel voorstelt en  $concentratie_u$  [ $\mu\text{mol/l}$ ] en  $neerslag_u$  [mm] de kriging voorspelling op die gridcel.

### 2.4 Vergelijken van resultaten

Tenslotte dient er een aanpak gevonden te worden om verschillende kaarten met elkaar te kunnen vergelijken. Dit probleem komt op twee plaatsen in het onderzoek naar voren: Voor elk jaar wordt er per component een semivariogram model opgesteld om tot een ruimtelijk veld van de concentraties te komen. Deze semivariogrammen kunnen alleen door tussenkomst van een expert berekend worden. Door nu de *nugget* en de *range* vast te kiezen en de *sill* per jaar te benaderen via de volgende formule

$$sill = \text{variantie}(\text{gemeten concentraties}) - \text{vaste nugget}$$

kan het semivariogram ieder jaar automatisch worden berekend. De benadering voor de sill leidt tot een kleine onderschatting ervan, maar dit blijkt niet van grote invloed op de depositie velden te zijn zoals blijkt uit 4.2.

Om de invloed van deze benadering op de exacte resultaten te bestuderen, dienen de “exacte” en “benaderende” kaarten vergeleken te worden.

1. Om op een juiste manier het LMR te kunnen uitdunnen, is het van belang de invloed van het weglaten van meetpunten zichtbaar te maken. Hiervoor dienen de resultaten

op basis van het volledige, huidige meetnet vergeleken te kunnen worden met die van het uitgedunde meetnet.

Voor beide vraagstellingen is de volgende, eenvoudige aanpak gevolgd, die gebaseerd is op enkele grafische weergaven van de berekeningsresultaten en op kentallen van de verdelingen van de berekende predicities:

1. Voor het vergelijken van modellen op dezelfde set gegevens worden per gridcel de predicities van het benaderende model uitgezet tegen die van het “beste” model.
2. Voor het vergelijken van meetnetconfiguraties worden per gridcel de resultaten op basis van het uitgedunde meetnet uitgezet tegen die van het volledige meetnet.
3. Tenslotte wordt een kaart gemaakt met de verschillen op basis van het volledige model of volledige meetnet tegen die van het benaderende model resp. uitgedunde meetnet.

Op deze wijze kan met de figuren volgens punt 1. en punt 2. zeer snel gezien worden voor welke waarden (hoog/laag) van de predicities er veranderingen optreden ten gevolge van de benadering. Indien de oorspronkelijke hoge voorspellingen via de benadering en/of uitdunning veel lager uitvallen kan dit als ongewenst worden beschouwd, omdat juist de hoge waarnemingen reële problemen aanduiden. Met de figuren uit punt 3. kan vervolgens gezien worden waar in Nederland de veranderingen optreden. Bij de uitdunning kan dit dan een indicatie zijn dat er in dat gebied een station is weggelaten dat misschien toch belangrijk is. Tenslotte worden ook nog de kentallen van de verdelingen van de resultaten van beide methoden gegeven, samen met een figuur waarin de empirische verdelingsfuncties van de verschillende resultaten staan weergegeven.

## **2.5 Tool voor interactieve optimalisatie LMR**

Voor het uitdunnen is een interactieve S-PLUS applicatie ontworpen, waarbij men door stations in het “nieuwe LMR” te selecteren de invloed van de weggelaten stations te zien krijgt. Men selecteert de stations door in een grafisch scherm op de kaart van Nederland de gewenste stations in het “nieuwe LMR” aan te klikken. Vervolgens worden de benodigde berekeningen automatisch uitgevoerd en wordt een kaart geproduceerd met het verschil van de resultaten volgens het “volledige LMR” minus die van het “nieuwe LMR”. Tevens worden beide resultaten ter vergelijking tegen elkaar uitgezet per gridcel.

### 3 Resultaten van het onderzoek

Voor dit onderzoek is gebruik gemaakt van de gegevens uit twee meetnetten namelijk het KNMI meetnet met ruim 300 stations over geheel Nederland (zie Figuur 7 linker zijde) en gegevens uit het LMR. Het betreft gegevens over de jaren 1993, 1994 en 1995. Al deze jaren zullen gebruikt worden voor de modellering van de depositievelden om een zo robuust mogelijk aanpak te produceren, die in de toekomst toepasbaar blijft ook bij een uitgedund LMR. De gegevens van het KNMI betreffen de totale hoeveelheid neerslag per station per jaar. De data van het LMR bestaan uit volume gewogen jaargemiddelde concentraties van resp. sulfaat, nitraat en ammonium in neerslag. In Tabel A.1 staat de ligging van de LMR stations beschreven. De meetresultaten van het LMR staan in Tabel A.2.

Allereerst wordt voor elk jaar de ruimtelijke afhankelijkheid gemodelleerd van de neerslag gegevens, en vervolgens gebeurt hetzelfde voor resp. sulfaat, nitraat en ammonium. Voor deze grootheden wordt dan, indien mogelijk, via lineaire interpolatie ruimtelijke velden gegenereerd en tenslotte worden de natte depositievelden berekend en besproken.

#### 3.1 Modellering van de neerslaggegevens

Bij de bestudering van de neerslaggegevens over Nederland over de verschillende jaren (linker kolom Figuur 7) lijkt er een trend aanwezig te zijn. Dit wordt bevestigd door het empirisch semivariogram in de linker figuur van Figuur 8, waarin een blijvende stijging te zien is. Dit betekent dat zelfs waarnemingen die ver van elkaar liggen onderling afhankelijk zijn. De trends blijken goed te beschrijven met een tweede graads polynoom zoals weergegeven in formule (4). Dit trendoppervlak is gekozen omdat uit de ruimtelijke figuren van de originele data blijkt dat voor sommige jaren de waarnemingen in Midden-Nederland beduidend hoger zijn dan in Zuid- en Noord-Nederland. Het schatten van de parameters van het sferische model (formule (6)) is relatief erg eenvoudig vanwege de grote hoeveelheid meetpunten (zie de aantallen in de rechter figuur van Figuur 8). Dit betekent dat de gewogen niet-lineaire regressie voor schattingen van de parameters van het sferische semivariogram goed convergeert. De resultaten van de parameterschattingen zijn weergegeven in Tabel 1 en voor 1993 in de rechter figuur van Figuur 8.

Tabel 1: De parameter schattingen voor het sferische model (formule (6)) voor de residuen van het trendvlak dat gemodelleerd is volgens formule (4).

Jaar	Nugget	Sill	Range [km]	Variantie waarnemingen
1993	1440	3870	60.6	5030
1994	1880	3540	55.7	5260
1995	1340	1700	50.5	2903

Variantie waarnemingen dient overeen te komen met de som van nugget en sill.

Uit Tabel 1 blijkt dat de range over de jaren in dezelfde orde van grootte blijft. Het nugget effect varieert enigszins en de sill van 1995 is beduidend lager dan die van de overige jaren. Dit is te verklaren uit het feit dat de neerslag waarschijnlijk systematisch lager zal zijn dan in de andere jaren en dus is de spreiding ook minder. Dit wordt bevestigd door Tabel 2 waarin de kentallen van de verdeling van de totale hoeveelheid

neerslag over Nederland voor de drie jaren weergegeven zijn in de rijen aangeduid met “waarnemingen”.

De rijen aangeduid met “predicties” geven de kentallen van de verdeling van de predicties over Nederland. Deze zijn grafisch uitgezet in de rechter kolom van Figuur 7. De duidelijke ruimtelijke differentiatie geeft aan dat zowel de trendmodellering als de kriging de waarnemingen volgen. Merk op dat de schaal in de figuren verschillend is. Uit Tabel 2 volgt dat de verdelingen van de ruim 300 waarnemingen en de 1668 predicties goed overeenkomen.

*Tabel 2: De kentallen van de verdeling van de neerslagtotalen over Nederland in [mm] (rij aangeduid met waarnemingen) en van de universal kriging voorspellingen volgens Tabel 1, aangegeven met predicties.*

Jaar	min.	1e quart.	mediaan	gemiddelde	3e quart.	max.	Nobs
1993 waarnemingen	733	851	916	922	982	1232	312
1993 predicties	767	857	910	922	981	1125	
1994 waarnemingen	701	893	964	957	1029	1230	324
1994 predicties	733	900	968	955	1016	1127	
1995 waarnemingen	628	738	786	789	833	996	325
1995 predicties	676	745	782	788	825	932	

Betekenis van sommige kolomnamen: 1e quart. = eerste kwartiel, d.w.z. die waarde waar 25% van de waarnemingen beneden ligt en 75% erboven, 3e quart. = derde kwartiel, die waarde waar 75% van de waarnemingen beneden ligt en 25% erboven en Nobs = Number of observations = Aantal waarnemingen.

### 3.2 Modellering van de sulfaat gegevens

De modellering van de sulfaat gegevens verloopt op dezelfde wijze als boven. In de linker kolom van Figuur 10 staan de 15 jaargemiddelde sulfaat concentraties per station ruimtelijk uitgezet. Voor 1993 blijkt dat Leiduin een station is met een duidelijke uitschieter. Voor de verdere analyse is dit station weggelaten. Na 1993 is station Leiduin vervangen door een station in het nabijgelegen de Zilk. Ook in deze figuur blijkt een noord-zuid trend aanwezig te zijn die met een eerste graad polynoom benaderd kan worden, dus met regressiemodel  $z = \alpha + \beta_1 x + \beta_2 y + \varepsilon$ .

Het schatten van de parameters van een semivariogram blijkt vanwege het geringe aantal waarnemingen niet eenvoudig te zijn (zie Figuur 9). Door het lage aantal puntenparen bestaat ook het empirisch semivariogram uit zeer weinig punten. Daarbij komt dat elk punt een gemiddelde is van maar zeer weinig puntenparen, aangegeven met de getallen in Figuur 9. In theorie wordt een minimum van 30 aangehouden en daaraan is niet voldaan. De getrokken kromme geeft het gaussisch semivariogram aan.

*Tabel 3: Gegevens over de ruimtelijke modellering van sulfaat. Voor 1993 is station Leiduin weggelaten als zijnde een uitschieter.*

Gegevens LMR		Empirisch variogram		Vaste nugget	Geschatte parameters gaussisch model	
jaar	variantie	lag [km]	maxdist [km]		sill	range [km]
1993	6.0	15	150	0	5.3	36.3
1994	6.6	15	150	0	6.5	39.4
1995	6.3	15	150	0	6.5	32.9

De parameter schattingen voor de verschillende jaren zijn weergegeven in Tabel 3, waarbij het nugget effect vast is gekozen vanwege het geringe aantal waarnemingen. Uit deze tabel blijkt dat de geschatte range voor de verschillende jaren vrijwel constant blijft. Dit wordt gebruikt bij het automatiseren van de methode.

De resultaten van de tweede fase, het lineair interpoleren van de waarnemingen, staan grafisch weergegeven in de rechter kolom van Figuur 10 en in Tabel 4. Uit de tabel blijkt dat de verdelingen van de predicties zeer nauw de verdeling van de oorspronkelijke waarnemingen volgen. Dit geldt in mindere mate voor 1993 omdat de hoogste waarneming in de tabel Leiduin betreft. De geïnterpoleerde sulfaat gegevens blijken veel minder ruimtelijk gedifferentieerd te zijn dan de neerslaggegevens, vergelijk hiervoor de rechterkolom in Figuur 7 met die van Figuur 10. Dit is niet verwonderlijk gezien het lage aantal meetpunten voor sulfaat in Nederland in vergelijking met het dichte KNMI meetnet.

Merk op dat bij uitdunning van het LMR het ten ene male onmogelijk is in de toekomst om nog een semivariogram te modelleren. De huidige hoeveelheid gegevens is al van minimale omvang!

Tabel 4: De kentallen van de verdeling van de gemiddelde sulfaat concentraties en van de universal kriging predicties volgens de overeenkomstige modellen in Tabel 3.

Jaar		min.	1e quart.	mediaan	gemiddelde	3e quart.	max.	Nobs
1993	waarnemingen	23.6	29.1	31.2	31.7	33.3	46.9	15
	waar. excl. Leiduin	23.6	29.0	31.0	30.6	32.6	36.4	14
	predicties	23.5	27.5	30.3	30.0	32.1	36.5	
1994	waarnemingen	20.9	24.3	27.4	27.5	30.2	35.6	15
	predicties	20.9	23.4	26.5	26.9	30.5	35.8	
1995	waarnemingen	21.8	25.6	28.4	29.2	31.4	41.3	15
	predicties	18.2	23.1	27.9	28.2	31.2	41.7	

### 3.3 Modelling van de nitraat gegevens

Voor de modellering van de nitraat gegevens is dezelfde aanpak gevolgd. Er blijken geen uitschieters in de waarnemingen aanwezig te zijn. Wel wordt weer een lineair trendvlak via lineaire regressie gefit en op de residuen vervolgens het semivariogram gemodelleerd.

Tabel 5: Gegevens over de ruimtelijke modellering van nitraat.

Gegevens LMR		Empirisch variogram		Vaste nugget	Geschatte parameters gaussisch model	
residuen van trend		lag	maxdist		sill	range
jaar	variantie	[km]	[km]		[km]	
1993	5.5	25	165	0	4.4	40.3
geen trend						
1994	4.1	15	150	0	4.5	29.6
1995	5.6	15	150	0	5.6	55.0

Uit Tabel 5 blijkt dat de range over de jaren nogal verschillend is. Dit kan voortkomen uit het feit dat er nog maar weinig meetlocaties beschikbaar zijn. Het kan ook zijn dat het ruimtelijk proces in de loop der jaren aan verandering onderhevig is, zoals blijkt uit de rechter kolom van Figuur 11. Ondanks het feit dat de gebruikte schaal niet gelijk is voor de verschillende jaren, lijkt er een duidelijke verschuiving op te treden van Noordoost

Nederland naar Zuidoost Nederland voor wat betreft de hoge nitraat concentraties. Tabel 6 toont aan dat de verdeling van de predicties goed overeenkomen met die van de waarnemingen.

Tabel 6: *De kentallen van de verdeling van de gemiddelde nitraat concentraties en van de universal kriging predicties.*

Jaar		min.	1e quart.	mediaan	gemiddelde	3e quart.	max.	Nobs
1993	waarnemingen zonder trendvlak	31.4	35.0	37.2	36.6	37.9	40.5	14
	predicties	31.3	35.8	37.0	36.7	37.7	40.5	
1994	waarnemingen	28.8	31.7	33.9	33.7	35.8	38.0	14
	predicties	28.7	32.8	34.9	34.3	35.9	38.5	
1995	waarnemingen	35.1	36.9	38.9	39.3	41.3	45.3	14
	predicties	34.7	36.4	38.6	38.9	40.7	45.9	

### 3.4 Modelling van de ammonium gegevens

Voor de modellering van de ammonium gegevens is getracht dezelfde methode te gebruiken. Helaas bleek dit niet mogelijk te zijn omdat het ruimtelijk gedrag van ammonium blijkbaar op een veel kleinere schaal plaatsvindt dan dat van sulfaat en nitraat. Dit is tevens nagegaan via een simulatiestudie, waarbij voor de locaties waarop ammonium gemeten is, gegevens zijn gegenereerd volgens opgegeven ruimtelijke modellen met verschillende ranges. De empirische semivariogrammen geschat op basis van deze simulaties gaven hetzelfde beeld te zien als bij de oorspronkelijke metingen. Dit betekent dat de huidige dichtheid van het meetnet niet voldoende is voor een ruimtelijke modellering zoals beschreven in Figuur 5. Misschien dat de metingen uit een ruimtelijk dichter meetnet dan het LMR, zoals aanwezig in Limburg, uitkomst kunnen bieden.

### 3.5 Predicties natte deposities voor sulfaat en nitraat

Om nu te komen tot de velden voor de natte deposities voor zowel sulfaat en nitraat worden de kaarten van neerslag en resp. sulfaat en nitraat per jaar samengevoegd volgens formule (8).

De resultaten voor sulfaat en nitraat staan in Figuur 12. Per component is dezelfde schaal gebruikt. Wanneer men deze kaarten vergelijkt met de afzonderlijke kaarten voor neerslag en resp. sulfaat en nitraat is waar te nemen dat zowel de component als de neerslag bijdragen tot het ruimtelijke beeld van de natte deposities. Daarbij wordt de grote ruimtelijke differentiatie met name bepaald door de neerslag vooral voor sulfaat, omdat de sulfaat concentraties een veel gelijkmatiger beeld vertonen dan nitraat.

### 3.6 Universal kriging versus DEADM

In de huidige praktijk wordt bij het LLO voor de berekening van de deposities gebruik gemaakt van het model DEADM (RIVM, 1998). In dit model wordt de *natte* depositie per 5x5 km gridcel berekend uit de depositie op de (15) LMR stations via lineaire interpolatie met een interpolatiestraal van 40 km voor alle componenten (BLEEKER, A., 1997).

De nu ontwikkelde methode benadert in principe de berekeningswijze van de natte deposities die tot nu werd gevolgd met DEADM. Het grote verschil zijn de verschillende

ranges die per component en per jaar worden gevonden. De term range (van het semivariogram) komt overeen met de interpolatiestraal die in DEADM wordt gebruikt. In het huidig onderzoek worden verschillende ranges per component gevonden, die variëren door de jaren. In DEADM wordt één en dezelfde interpolatiestraal gebruikt voor alle stoffen en alle jaren. Voor ammonium is aangetoond dat het huidige meetnet een te geringe ruimtelijke dichtheid heeft om een ruimtelijke analyse te verrichten. Daarnaast blijken de meeste modellen ook een trend te bevatten. Deze zijn niet in DEADM meegenomen.

Dit alles leidt tot de conclusie dat de ruimtelijke lineaire interpolatie in gebruik bij DEADM verbetering behoeft. Een bijkomend, maar zeer belangrijk voordeel van de kriging methode is het feit dat bij het interpoleren ook de krigingvariantie wordt berekend. Deze variantie geeft een indicatie van de nauwkeurigheid van de interpolatiewaarde. De krigingvariantie is het kleinst in de naaste omgeving van meetpunten en loopt op naarmate de afstand tot de meetpunten groeit. Dus een uitgedund meetnet zal per definitie hogere krigingvarianties geven in de nabijheid van weggelaten meetlocaties.

## 4 Optimalisatie van het LMR

Om tot optimalisatie van het Landelijk Meetnet Regenwater over te kunnen gaan, is het noodzakelijk om in kaart te brengen wat de gevolgen van de optimalisatie zijn voor de huidige werkwijze. Immers, de kwaliteit van de huidige depositie kaarten hangt nauw samen met zowel de configuratie van het meetnet, als de meetstrategie en de modellen om vanuit de gegevens tot de kaarten te komen. Het is daarom absoluut onvoldoende om op pragmatische wijze tot een uitdunning van het meetnet over te gaan en aan deze afweging voorbij te gaan.

In het tot nu toe verrichte onderzoek is veel expertise van ruimtelijke statistiek nodig. Anders gezegd: de methode is niet automatisch uit te voeren. Wil de kriging methode echter in productie genomen kunnen worden, dan is de eis dat e.e.a. automatisch berekend kan worden, gerechtvaardigd. In 4.1 wordt ingegaan op de mogelijkheden tot automatisering. Vervolgens worden in 4.2 de gevolgen van deze automatisering doorgerekend t.o.v. de op maat gemaakte modellen. Tenslotte wordt in 4.3 gekeken naar mogelijkheden van uitdunning. Dit laatste wordt rechtstreeks gekoppeld aan de op maat gemaakte modellen, zodat voor elk jaar en elke component duidelijk wordt wat de gevolgen van de uitdunning zijn.

### 4.1 Automatisering kriging methode

Wil de hier toegepaste kriging methode als standaard model in de depositie berekeningen worden opgenomen, dan is het noodzakelijk dat de berekeningen geautomatiseerd worden. Dit houdt in dat de eerste fase van de berekeningen (het modelleren van de ruimtelijke afhankelijkheid in de gegevens via het semivariogram) op een andere wijze dient te gebeuren (zie Figuur 5). De vraag is hoe dit mogelijk is en wat dit voor invloed heeft op de predicties van de gemiddelde concentraties cq. de natte deposities.

Bij het schatten van de parameters van het gaussisch model is de nugget vast genomen, gelijk aan nul. Dit houdt in dat er nog twee parameters over blijven om te bepalen: de range en de sill. Uit de definitie van het semivariogram volgt dat sill+nugget praktisch overeenkomen met de variantie in de waarnemingen. Uit Tabel 3 en Tabel 5 volgt dat de sill varieert over de jaren. De varianties in de waarnemingen voor sulfaat voor de jaren 1993 t/m 1995 resp.: 6.0, 6.6 en 6.3 en voor nitraat 5.5, 4.1 en 5.6. Dit blijkt redelijk overeen te komen met betreffende waarden in Tabel 3 voor sulfaat en Tabel 5 voor nitraat.

Voor de range is de volgende oplossing gevonden. Ervan uitgaande dat het ten enenmale onmogelijk is om bij uitdunning van het meetnet fase 1 van de kriging procedure uit te voeren, is het alleszins redelijk om op basis van de huidige metingen een *vaste* range te bepalen voor de beide componenten. Het ligt dan voor de hand om de gemiddelde range over de drie jaren te nemen per component. Dit houdt in dat de range voor sulfaat gelijk gesteld wordt aan 36.2 km. Voor nitraat ligt de situatie complexer omdat voor 1993 ordinary kriging is gebruikt, dus geen trendvlak is gemodelleerd, en voor de andere twee jaren wel. Vanwege tijdsoverwegingen is gekozen om het model voor 1994 als basismodel te nemen dus nugget = 0 en range = 29.6 [km]. In Tabel 7 is het overzicht van beide modellen gegeven. Deze modellen liggen hiermee voor de toekomst vast. Aan het automatisch berekenen van het semivariogram voor de neerslag is nog geen aandacht besteed, omdat dit door de grote hoeveelheid waarnemingen niet tot onverwachte problemen zal leiden.



Tabel 7: Beschrijving van de benaderende, ruimtelijke modellen voor resp. sulfaat en nitraat, waarbij alleen nog de sill geschat dient te worden (1 parameter model).

Component	Trendmodel	Semivariogram	Nugget	Sill	Range [km]
Sulfaat	1e graads polynoom	gaussisch	0	variantie waarnemingen	36.2
Nitraat	1e graads polynoom	gaussisch	0	variantie waarnemingen	29.6

In STERK, G AND STEIN, A. (1997) wordt op een andere wijze gebruik gemaakt van de informatie die er over meerdere jaren beschikbaar is. Bij een eventuele implementatie van de huidige aanpak, dient het niet te moeilijk te zijn deze nieuwe methode te onderzoeken op bruikbaarheid voor zowel de automatisering als het modelleren van een semivariogram bij weglating van een aantal stations.

Het automatiseren van de tweede fase bevat geen moeilijkheden, omdat het hier een kwestie is van het opgeven van de modellen en de parameters, alsmede van de waarnemingen en het uitvoergrid (zie Figuur 6). In feite komt fase 2 overeen met de ruimtelijke interpolatie stap die in DEADM wordt uitgevoerd, alleen wordt hier een model voor de ruimtelijke afhankelijkheid gebruikt dat gebaseerd is op de meetgegevens door het schatten van de modelparameters.

Op dit moment zijn enkele onderdelen naar tevredenheid geïmplementeerd. Het volledig automatiseren van de berekeningen voor zowel neerslag als sulfaat en nitraat is slechts een kwestie van tijd.

## 4.2 Resultaten van de benaderende ruimtelijke modellen

Wat is de invloed van de benaderende modellen op de predicties voor geheel Nederland? Deze vraag wordt beantwoord door nog twee type berekeningen uit te voeren:

1. Bereken met de benaderende modellen voor sulfaat en nitraat (Tabel 7) de jaargemiddelde concentraties per gridcel uit en vervolgens met formule (8) de natte deposities.
2. Bereken m.b.v. de ruimtelijke modellen voor de KNMI gegevens (Tabel 1) op de LMR stations de totale hoeveelheid neerslag voor ieder jaar en dan met formule (8) de totale hoeveelheid natte depositie op de stations.

Dit levert met de eerdere natte depositieberekeningen een drietal verzamelingen van natte deposities op per jaar per component, die overeen dienen te komen als ze enigszins representatief zijn voor het onderliggende onbekende proces. Deze resultaten worden op de volgende wijzen met elkaar vergeleken:

1. Zet per gridcel de predictie uit verkregen met het benaderende model tegen de predictie van het "beste" model, het op maat gesneden model volgens hoofdstuk 3. Dit levert een beeld op van de range waar de afwijkingen tussen de beide ruimtelijke modellen plaatsvinden. Zo is het niet wenselijk dat de hogere predicties ineens veel lager uitvallen, maar is het misschien wel acceptabel dat ze wat hoger uitvallen, of dat lagere predicties hoger uitvallen.
2. Zet het verschil van de natte deposities volgens het beste model minus die van het benaderende model ruimtelijk uit. Hiermee wordt de grootte van de afwijkingen zichtbaar en in welke gebieden ze voornamelijk liggen. Rood betekent in deze figuren dat de predicties van het beste model hoger uitvallen dan die van het

benaderende model. Hierbij dient men wel duidelijk de schaal van de afwijkingen in het oog te houden!

3. Vergelijk de drie verzamelingen van predicties via de empirische verdelingsfunctie, die loopt van 0 tot 1. Het idee hierachter is dat elke verzameling van predicties of waarnemingen representatief zou moeten zijn voor het onbekende onderliggende proces. Als dat zo is, zouden de empirische verdelingsfuncties (alleen gebaseerd op de predicties of waarnemingen zelf) overeen dienen te komen.

De resultaten voor sulfaat zijn overtuigend. Uit de linker kolom van Figuur 13 blijkt dat de verschillen per gridcel tussen de predicties voor de natte sulfaat depositie volgens het benaderende model (y-as) en de predicties volgens het best passende model (x-as) met drie parameters nagenoeg verwaarloosbaar zijn. Dit is ook te zien in de rechter kolom, waar de kleurschakering wel van donkergroen naar donkerrood loopt, maar het betreft nog geen procent van de waarden van de predicties zelf. Dit komt omdat de ranges voor de drie jaren zeer dicht bij elkaar liggen (Tabel 3) en het is duidelijk zichtbaar via de kentallen van de verdeling van de predicties in Tabel 8. Deze tabel staat samengevat in de linker kolom van Figuur 14. In deze figuur zijn drie empirische kansverdelingen weergegeven. De kansverdeling loopt van 0 tot 1 (y-as) en op de x-as staan de waarden in oplopende volgorde weergegeven. De punten geven de empirische kansverdeling van de 14 of 15 natte sulfaat deposities weer op de betreffende LMR stations. De zwarte, getrokken kromme geeft de kansverdeling weer van de 1664 sulfaat predicties volgens het 3 parameter semivariogram, zoals gemodelleerd in hoofdstuk 3, Tabel 3. De blauwe kromme geeft de empirische kansverdeling van de resultaten van het benaderende model. Deze figuren tonen aan dat de modellen elkaar amper ontlopen. Voor 1994 is er zelfs geen verschil tussen de twee ruimtelijke modellen waar te nemen, omdat de range en de sill haast identiek zijn.

Tabel 8: Kentallen van de verdelingen van de natte sulfaat deposities voor Nederland voor de jaren 1993 t/m 1995.

Jaar	LMR stat./ Model	min.	1e quart.	mediaan	gemiddelde	3e quart.	max.
1993	LMR stat.	227.9	263.5	283.3	281.9	298.6	327.3
	beste	213.4	254.2	274.3	275.8	295.3	357.5
	benadering	213.4	254.2	274.3	275.8	295.3	357.5
1994	LMR stat.	213.8	236.5	270.7	258.1	275.9	297.8
	beste	194.1	228.9	257.0	255.2	279.4	324.6
	benadering	192.0	229.5	257.7	255.2	278.9	322.7
1995	LMR stat.	179.2	198.4	218.7	225.9	241.7	290.3
	beste	156.0	193.7	213.2	219.5	239.5	325.7
	benadering	156.5	193.6	213.0	219.5	239.5	325.3

Per jaar staan weergegeven: de verdeling van de natte deposities op de LMR stations, de predicties volgens het beste model (met 3 parameters, volgens Tabel 3) en de predicties volgens het benaderende model (met 1 parameter, volgens Tabel 7).

Voor nitraat is als benaderend model het model voor 1994 gekozen. Dit model bevat een trend terwijl het beste model voor 1993 dit niet bevatte. De range voor 1995 is veel groter dan die van 1994. Kortom, er mag verwacht worden dat de verschillen tussen het benaderende model met één te schatten parameter en het beste model met drie te schatten parameters groot zijn. Inderdaad zijn de verschillen groter dan de verschillen voor sulfaat, zie Figuur 15. Ook de empirische verdelingen (rechter kolom Figuur 14) liggen wat verder uit elkaar, zeker voor wat betreft de natte deposities op de LMR stations en de predicties. Opvallend is dat de resultaten van de twee modellen toch niet erg ver uiteen lopen volgens Tabel 9 en Figuur 15.

Tabel 9: *Kentallen van de verdelingen van de natte nitraat deposities voor Nederland voor de jaren 1993 t/m 1995.*

Jaar	LMR stat. / Model	min.	1e quart.	mediaan	gemiddelde	3e quart.	max.
1993	LMR stat.	271.5	311.3	329.2	338.1	377.7	397.8
	beste	262.3	309.8	332.4	339.0	368.2	430.0
	benadering	260.9	310.6	332.3	341.0	377.3	437.2
1994	LMR stat.	239.8	279.6	351.7	321.2	357.0	387.1
	beste	230.7	294.7	344.7	328.0	357.4	397.8
	benadering	230.7	294.7	344.7	328.0	357.4	397.8
1995	LMR stat.	274.4	292.4	308.4	303.9	313.4	337.4
	beste	258.5	294.2	308.4	305.7	317.4	364.9
	benadering	262.3	293.6	309.5	307.1	319.2	365.5

Per jaar staan weergegeven: de verdeling van de natte deposities op de LMR stations, de predicties volgens het beste model (met 3 parameters, volgens Tabel 5) en de predicties volgens het benaderende model (met 1 parameter, volgens Tabel 7).

De conclusie is dan ook dat de benaderende modellen goed te gebruiken zijn bij het automatisch betrekken van natte depositievelden voor zowel sulfaat als nitraat.

### 4.3 Optimalisatie van het LMR

Voor de optimalisatie van het LMR is een interactief computerprogramma in S-PLUS (STATISTICAL SCIENCES, 1995) gemaakt, waarin de benaderende modellen gebruikt worden. Met deze interactieve tool kan men die stations aanwijzen die men behouden wil in een uitgedund meetnet en vervolgens worden de predicties voor het opgegeven jaar op basis van het uitgedunde LMR dan vergeleken met die van het huidige LMR. Op deze wijze krijgt men een objectieve indruk van hetgeen er gaat gebeuren bij uitdunning. Nu worden de resultaten gepresenteerd voor de twee opties weergegeven in Tabel 10. In deze presentatie gaat het om de eenvoud waarmee de optimalisatie en de gevolgen in kaart gebracht kunnen worden. De eerste optie is ontwikkeld via het bestuderen van cross-validatie resultaten, waarmee de invloed van elk station op de natte depositie voorspellingen onderzocht is. Optie 2 is bedacht met het idee dat de meetpunten als ondersteuning van een verspreidingsmodel zouden moeten dienen. Onderzoek of deze optie de juiste is voor een specifiek verspreidingsmodel is niet verricht. Maar in dit onderzoek is het met het ontwikkelde ruimtelijke interpolatiemodel erg eenvoudig de gevolgen van deze optie voor de universal kriging modellen zichtbaar te maken voor beide componenten.

Tabel 10: *De twee opties voor een uitgedund LMR.*

	Optie 1	Optie 2
1	Beek	Beek
2	Braakman	De Bilt
3	De Bilt	De Zilk
4	De Zilk	Gilze Rijen
5	Eibergen	Kollumerwaard
6	Gilze Rijen	
7	Kollumerwaard	
8	Witteveen	

De resultaten voor sulfaat staan grafisch uitgezet in

Figuur 16 en Figuur 17 en de empirische verdelingsfuncties staan samengevat in Tabel 11. In de figuren valt meteen op dat de verschillen tussen de predicties per gridcel nu veel groter zijn dan de verschillen tussen het beste model en het benaderende model.

*Tabel 11: Resultaten van de predicties voor natte sulfaat deposities per jaar op basis van resp. het volledige, huidige LMR (rij aangeduid met LMR), het LMR volgens optie 1 en volgens optie 2. Per optie staat het aantal stations waarop de vergelijking gebaseerd is weergegeven.*

Jaar	LMR stat./ Model	Aantal stations	min.	1e quart.	mediaan	gemiddelde	3e quart.	max.
1993	LMR	14	213.4	254.2	274.3	275.8	295.3	357.5
	optie 1	7	218.3	253.3	267.9	271.2	286.6	333.5
	optie 2	4	214.4	254.5	272.0	279.0	301.1	374.0
1994	LMR	15	192.0	229.5	257.7	255.2	278.9	322.7
	optie 1	8	194.9	230.1	250.9	251.7	272.1	310.7
	optie 2	5	208.0	234.9	255.6	255.8	275.7	309.0
1995	LMR	15	156.5	193.6	213.0	219.5	239.5	325.3
	optie 1	8	159.3	195.1	209.8	213.3	227.3	315.7
	optie 2	5	160.9	206.9	221.5	223.0	237.8	322.2

Verder valt voor alle jaren en voor beide opties op dat het ontbreken van station Vredepeel, met relatief hoge waarnemingen, leidt tot lagere predicties in een straal van ruim 50 km rondom Vredepeel. In mindere mate geldt dit ook voor Rotterdam, al speelt hier waarschijnlijk ook het ontbreken van Leiduin / De Zilk voor sommige jaren mee. Wanneer men de resultaten van optie 1 vergelijkt met de resultaten van optie 2 dan blijkt voor alle jaren dat optie 1 een veel evenwichtiger beeld t.o.v. de huidige situatie geeft dan optie 2. Dit is niet verwonderlijk omdat bij optie 2 voor 1993 van oost naar west geëxtrapoleerd wordt ten westen van Gilze-Rijen en voor de jaren 1994 en 1995 wordt er naar het zuiden en westen geëxtrapoleerd vanuit resp De Zilk en Gilze-Rijen. Daarnaast is voor 1993 de spreiding om de 1-op-1 lijn wel erg groot.

Nitraat geeft eenzelfde beeld te zien in Figuur 18, Figuur 19 en Tabel 12. Welliswaar valt optie 2 voor nitraat voor de jaren 1993 en 1994 beter uit dan voor sulfaat maar voor 1995 zijn de afwijkingen daarentegen weer veel groter. Ook nu geldt weer dat de resultaten van optie 1 een evenwichtiger beeld t.o.v. het huidige meetnet laten zien dan die van optie 2.

*Tabel 12: Resultaten van de predicties voor natte nitraat deposities per jaar op basis van resp. het volledige, huidige LMR (rij aangeduid met LMR), het LMR volgens optie 1 en volgens optie 2. Per optie staat het aantal stations waarop de vergelijking gebaseerd is weergegeven.*

Jaar	LMR stat./ Model	Aantal stations	min.	1e quart.	mediaan	gemiddelde	3e quart.	max.
1993	LMR	14	260.9	310.6	332.3	341.0	377.3	437.2
	optie 1	7	260.1	304.6	328.5	337.9	376.7	437.3
	optie 2	4	266.7	319.1	341.2	345.7	375.7	419.5
1994	LMR	14	230.7	294.7	344.7	328.0	357.4	397.8
	optie 1	7	231.1	297.2	340.6	327.7	357.0	402.6
	optie 2	4	229.7	310.4	346.6	335.9	362.2	409.0
1995	LMR	15	262.3	293.6	309.5	307.1	319.2	365.5
	optie 1	8	261.1	289.8	303.5	302.6	315.0	361.9
	optie 2	5	273.1	297.8	307.4	308.2	318.5	358.9

## 5 Conclusies

Het verrichte onderzoek levert op bijna alle vragen zoals geformuleerd in 2.1 een duidelijk antwoord.

Universal kriging is voor sulfaat en nitraat een goede methode om op basis van het huidige LMR en KNMI meetnet te komen tot natte depositievelden voor het 5x5 km grid in Nederland. Voor ammonium is het niet mogelijk om op basis van het huidige LMR een ruimtelijke analyse uit te voeren. Misschien dat dit wel kan met metingen uit een verdicht provinciaal meetnet zoals in Limburg.

Het LMR zou met een acceptabel verlies aan informatie voor wat betreft het niveau van sulfaat en nitraat deposities uitgedund kunnen worden volgens optie 1. Hierbij dient duidelijk gesteld te worden dat het in de toekomst dan niet meer mogelijk is om de nu ontwikkelde ruimtelijke modellen via het schatten van semivariogrammen opnieuw uit te voeren. De ruimtelijke resolutie van het uitgedunde LMR is dan te gering om de interpolatiestralen te schatten.

Door de geschatte, ruimtelijke modellen voor sulfaat en nitraat te benaderen, is de gevolgde werkwijze op acceptabele wijze te automatiseren en operationeel te maken. Binnen de gestelde randvoorwaarden is grotendeels voldaan aan de doelstellingen van het onderzoek. Vanwege de factor tijd is geen onderzoek gedaan naar het verlies aan betrouwbaarheid t.g.v. de optimalisatie en tevens heeft een vergelijking met resultaten van DEADM niet plaatsgevonden. De verschillende ruimtelijke modelleringsresultaten voor sulfaat, nitraat en ammonium geven aan dat de vaste interpolatiestraal zoals gehanteerd binnen DEADM verbetering behoeft.

Voor de optimalisatie van het LMR zal er wat betreft ammonium een afstemming met het OPS model dienen plaats te vinden om op te vermijden dat er na optimalisatie onbruikbare metingen zijn verricht (cf. HEUBERGER, P.S.C.; ABEN, J.M.M. EN DEKKERS, A.L.M., 1995).

## Literatuur

- BARENDREGT, L.G. EN DEKKERS, A.L.M.  
*Praktische inleiding tot Kriging, een methode voor ruimtelijke statistische analyse*  
Bilthoven, RIVM-rapport 714 802 001, 1993.
- BLEEKER, A.  
*Persoonlijke communicatie m.b.t. broncode DEADM*  
Bilthoven, RIVM, 1997.
- BUIJSMAN, E.; DEKKERS, A.L.M.; ABEN, J.A. EN JAARVELD, J.A. VAN.  
*Een nieuwe meetstrategie voor de metingen van de chemische samenstelling van neerslag in het Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit*  
Bilthoven, RIVM-rapport 723 101 033, 1998.
- CRESSIE, N.A.C.  
*Statistics for Spatial Data*  
John Wiley and Sons, Inc. 1993
- DEUTSCH, C.V. AND JOURNAL, A.G.  
*GSLIB, Geostatistical Software Library and User's Guide*  
Oxford, 1992.
- DIGGLE, P.J.; TAWN, J.A. AND MOYEED, R.A.  
*Model-based geostatistics*  
Appl.Statist., Vol. 47-3, pp. 299-350, 1998.
- GUERTIN, K.; VILLENEUVE, J.; DESCHÊNES, S. AND JACQUES, G.  
*The choice of working variables in the geostatistical estimation of the spatial distribution of ion concentration from acid precipitation*  
Atmospheric Environment, Vol. 22-12, pp. 2787-2801, 1988.
- HEUBERGER, P.S.C.; ABEN, J.M.M. EN DEKKERS, A.L.M.  
*Evaluatie van de berekeningen van de atmosferische ammoniak-concentraties in Nederland: aanpassing van modelparameters en emissies op basis van meetgegevens*  
Bilthoven, RIVM-rapport 723 301 002, 1995.
- MATHSOFT  
*S+SpatialStats User's Manual* Vers. 1.0  
Seattle, Mathsoft Inc, 1996
- BLEEKER, A.; BLOEMEN, H.J.TH.; HARTOG, P.R. DEN; JANSSEN, L.H.J.M.; PUL, W.A.J. VAN; RENTINCK, E.C.M.; SWAAN, P.; VELDEERS, G.J.M.; VELZE, K. VAN EN HARTOG, P.R. DEN (EDS)  
*Luchtkwaliteit: jaaroverzicht 1996*  
Bilthoven, RIVM-rapport 722 101 029, 1998
- STATISTICAL SCIENCES  
*S-PLUS Guide to Statistical and Mathematical Analysis* Version 3.3  
Seattle, StatSci a division of Mathsoft Inc. 1995.
- STERK, G AND STEIN, A.  
*Mapping Wind-Blown Mass Transport by Modelling Variability in Space and Time*  
Soil Sci. Soc. Am. J. (61) 232-239, 1997.

## Verzendlijst

1	Directie Klimaatverandering en Industrie
2	Plv. Directeur-Generaal Milieubeheer, dr.ir. B.C.J. Zoeteman
3	Dr. W.A.H. Asman, NERI, Risø, Denemarken
4	Dr. A.P.M. Baede, Hoofd Klimaatonderzoek, KNMI
5	Ir. H. Herremans, Directie Klimaatverandering en Industrie
6	Ir. E. Jansen, Provincie Flevoland, Lelystad
7	H. Kruyt, Provincie Zuid-Holland, Den Haag
8	Dr. E. Roekens, Vlaamse Milieumaatschappij, Antwerpen, België
9	Prof. Dr. ir. A. Stein, Wageningen Universiteit
10	Dr. ir. G.B.M. Heuvelink, Universiteit van Amsterdam
11	Dr. E.J. Pebesma, Universiteit Utrecht
12	Depot van Nederlandse publikaties en Nederlandse bibliografie
13	Directie Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu
14	Drs. A.H. Bakema
15	Ir. H.S.M.A. Diederens
16	Ir. W. van Duijvenbooden
17	Prof. Ir. N.D. van Egmond
18	Ing. B.G. van Elzakker
19	Drs. A. van der Giessen
20	Drs. H.A.R.M. van den Heiligenberg
21	Dr. S.H. Heisterkamp
22	Dr. P.S.C. Heuberger
23	Dr. J.A. Hoekstra
24	Dr. L.H.J.M. Janssen
25	Dr.ir. P.H.M. Janssen
26	Ir.F. Langeweg
27	Dr.ir. D. van Lith
28	Dr. A. van der Meulen
29	Ir. W.J.A. Mol
30	Dr. N.J.D. Nagelkerke
31	Dr. A. Tiktak
32	Dr. G.J.M. Velders
33	Dr. ir. H. Visser
34	Bibliotheek LLO
35-36	Auteurs
37	SBD/Voorlichting & Public Relations
38	Bureau Rapportenregistratie
39	Bibliotheek RIVM
40-59	Bureau Rapportenbeheer
60-75	Reserve exemplaren

## Bijlage A LMR gegevens

Tabel A.1 : Gegevens over de configuratie van het Landelijk Meetnet Regenwater (LMR). Plaatsaanduiding (X,Y) in [m] in Amersfoortse coördinaten volgens de Rijksdriehoekmeting.

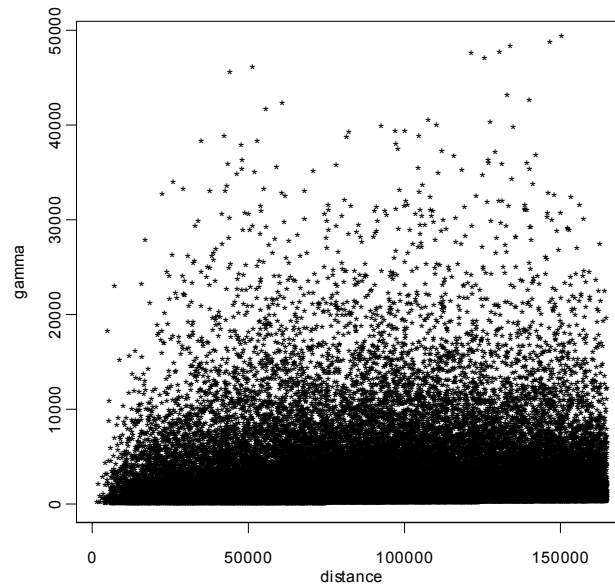
Stationsnummer	Stationsnaam	X	Y
131	Vredepeel	187300	394700
134	Beek	182400	325100
231	Gilze-Rijen	123500	397500
235	Huijbergen	83600	383300
318	Braakman	40800	368500
434	Rotterdam	90125	440915
444	De Zilk	95210	479090
538	Wieringerwerf	132300	535200
540	Leiduin	101200	484400
628	De Bilt	140600	456900
631	Biddinghuizen	170800	495700
722	Eibergen	238500	456600
724	Wageningen	172900	442700
732	Speulderveld	177730	476030
928	Witteveen	241400	536900
934	Kollumerwaard	214300	594400

Tabel A.2: Meetgegevens van het LMR: volume gewogen jaargemiddelde concentraties in  $\mu\text{mol/l}$ .

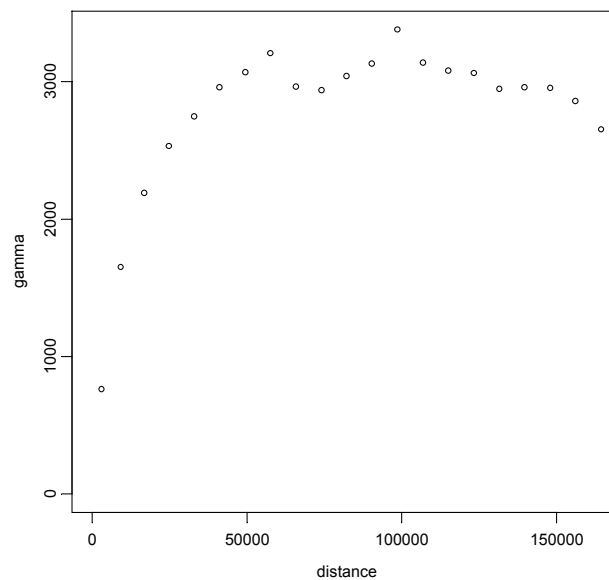
Station	ammonium			sulfaat			nitraat		
	1993	1994	1995	1993	1994	1995	1993	1994	1995
131	119	106	129	34	36	41	37	35	45
134	69	78	93	30	29	38	34	32	45
231	87	77	85	36	31	31	38	32	38
235	63	60	71	34	31	33	37	30	37
318	71	70	83	31	32	32	31	29	35
434	51	57	61	33	30	31	35	31	39
444	NA	47	52	NA	23	27	NA	NA	41
538	63	59	68	28	24	24	37	36	38
540	83	NA	NA	47	NA	NA	NA	NA	NA
628	67	69	75	29	27	28	35	37	40
631	68	63	68	29	24	25	38	35	39
722	102	99	111	32	29	28	39	38	41
724	89	82	92	32	27	30	35	35	41
732	90	73	62	31	25	28	38	33	NA
928	62	60	64	24	21	22	36	33	36
934	66	68	64	28	25	23	41	37	36



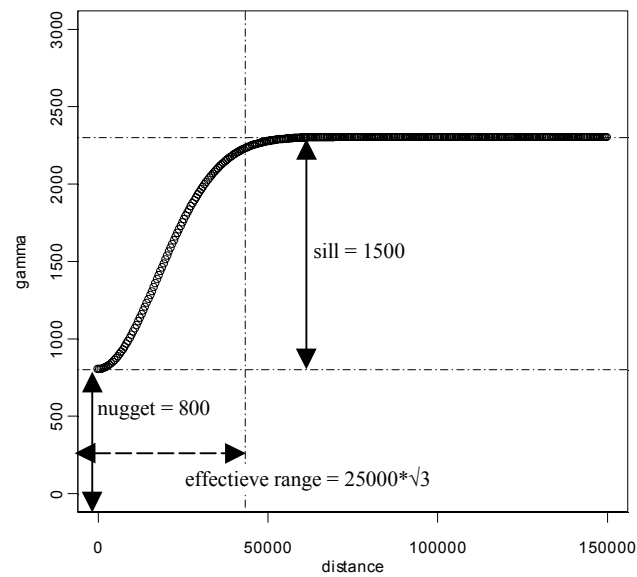
## Bijlage B Figuren



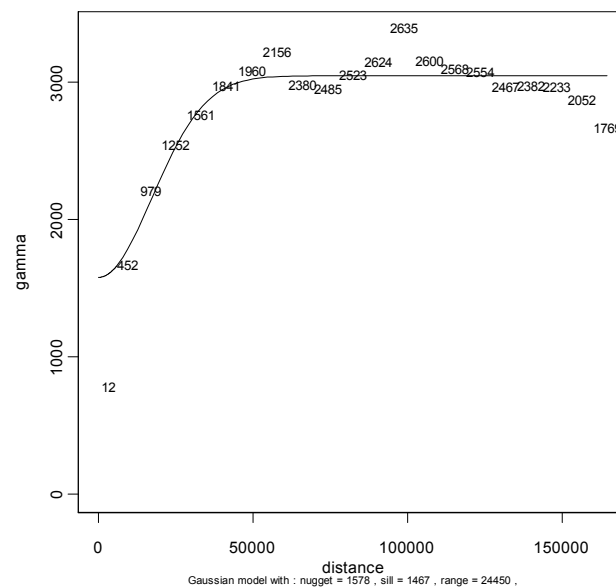
*Figuur 1:* Wolk van alle kwadratische verschillen van de puntwaarnemingen. Omdat hieruit geen informatie over de ruimtelijke afhankelijkheid te halen valt, wordt de x-as opgesplitst in equidistante intervallen, waarover de kwadratische verschillen gemiddeld worden.



*Figuur 2 :* Het semivariogram volgens formule (5), waarbij het gemiddelde per afstandsinterval is genomen. Er tekent zich in dit geval een duidelijk beeld van de ruimtelijke afhankelijkheid af.

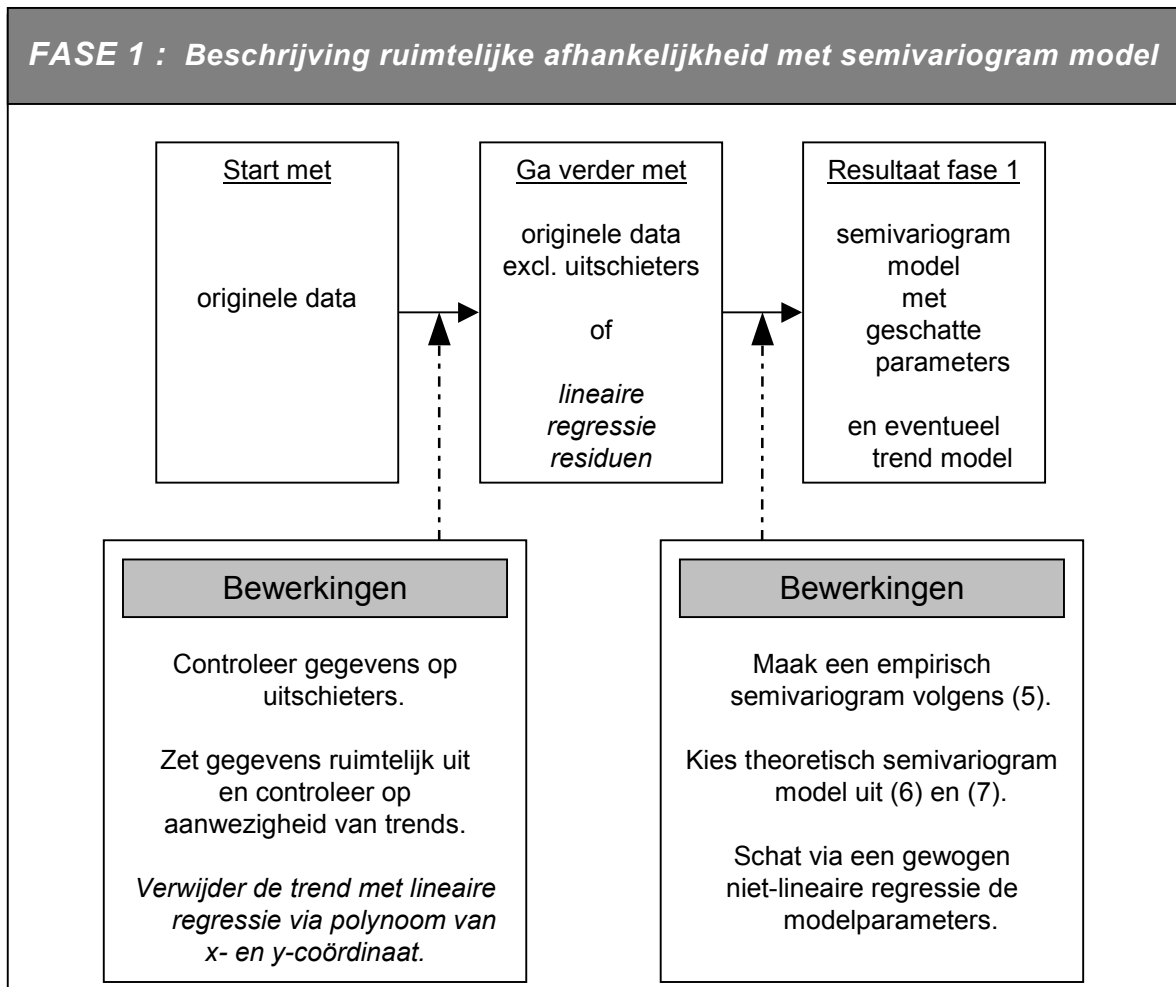


Figuur 3: Theoretisch gaussisch semivariogram met nugget = 800, range = 25000 (d.w.z. effectieve range = 43301) en sill = 1500.

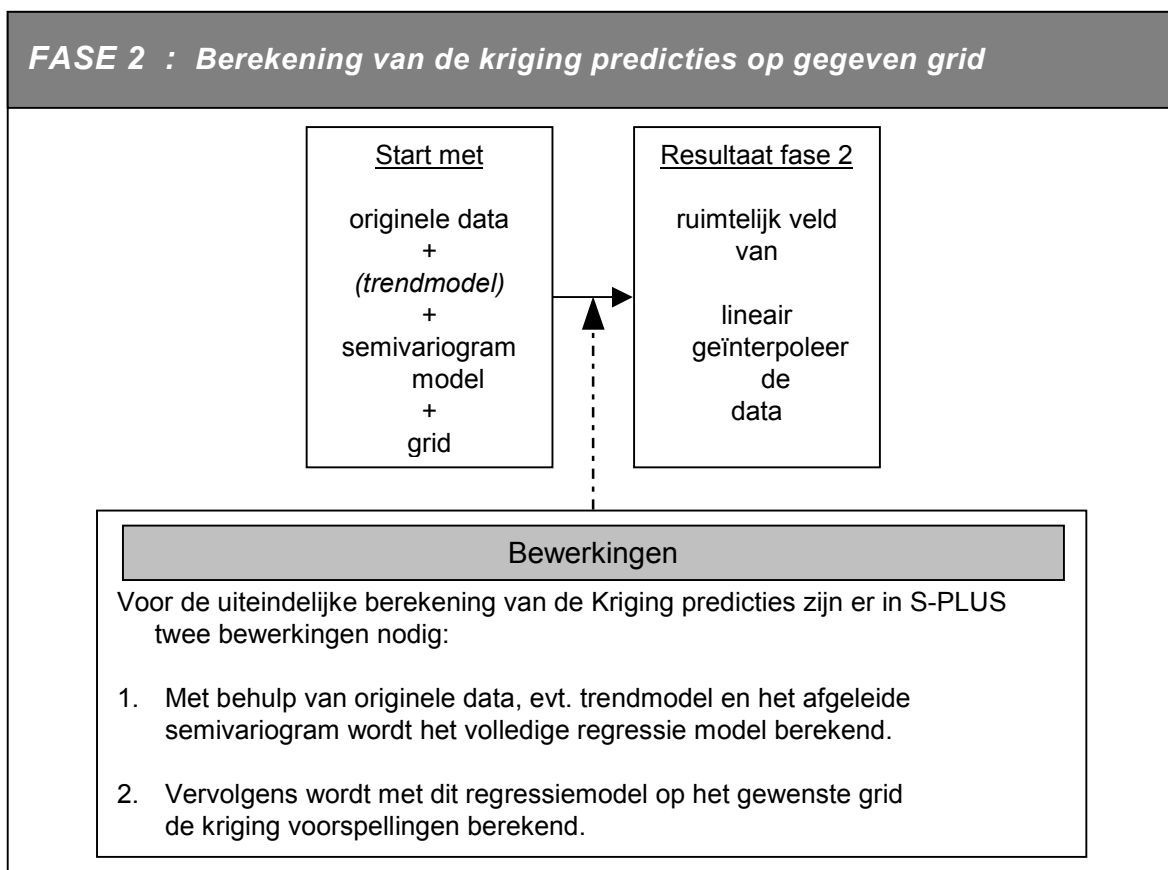


Figuur 4: Gaussisch semivariogram met geschatte parameters voor empirisch semivariogram uit Figuur 2.

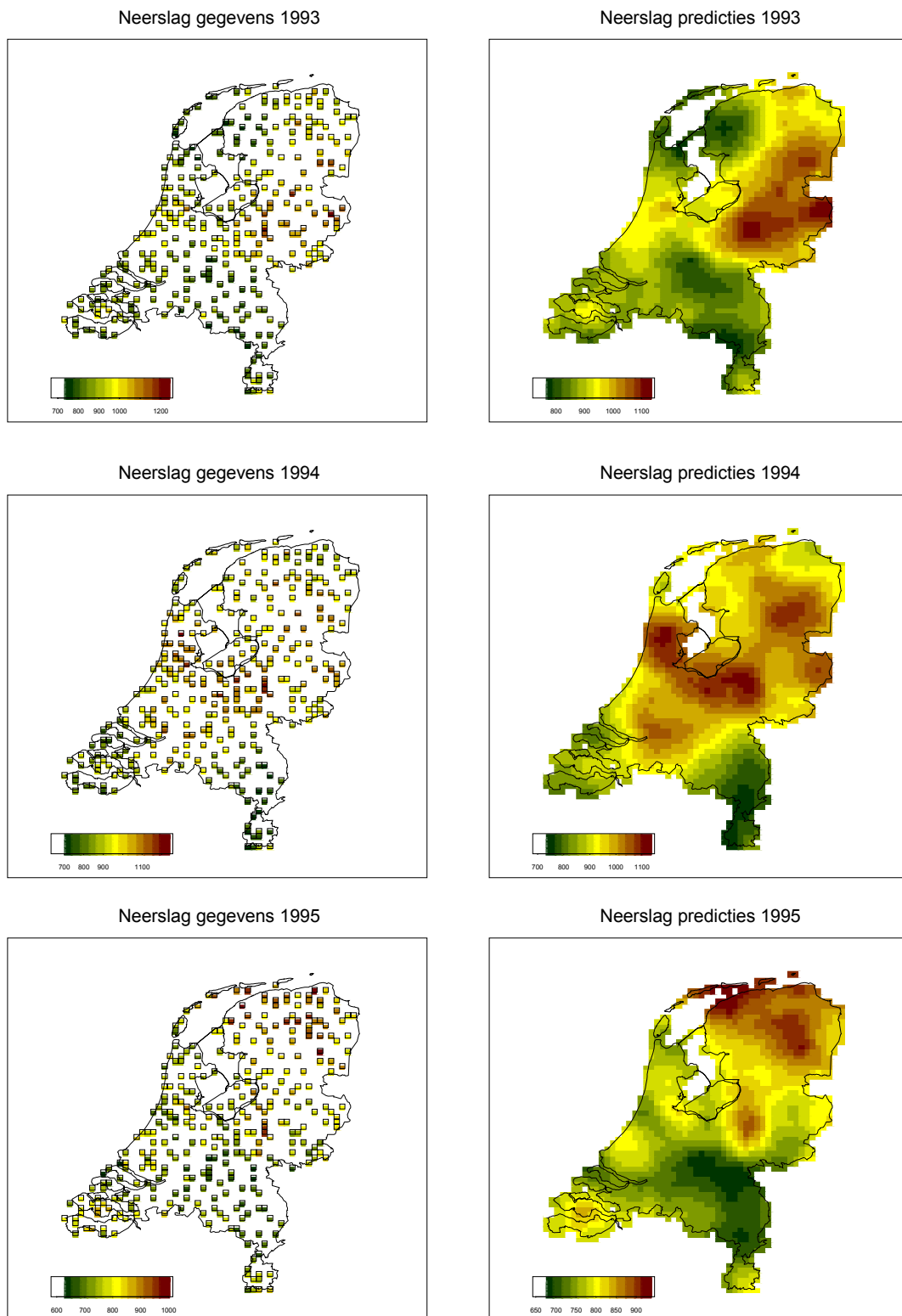
De aantallen in de figuur geven het aantal waarnemingen per interval aan en gezamenlijk vormen ze het empirisch semivariogram. Men streeft ernaar dat het aantal puntenparen per interval minimaal 30 is. De getrokken kromme is het theoretische semivariogram met geschatte parameters: nugget=1578, sill= 1467 en range= 24450.



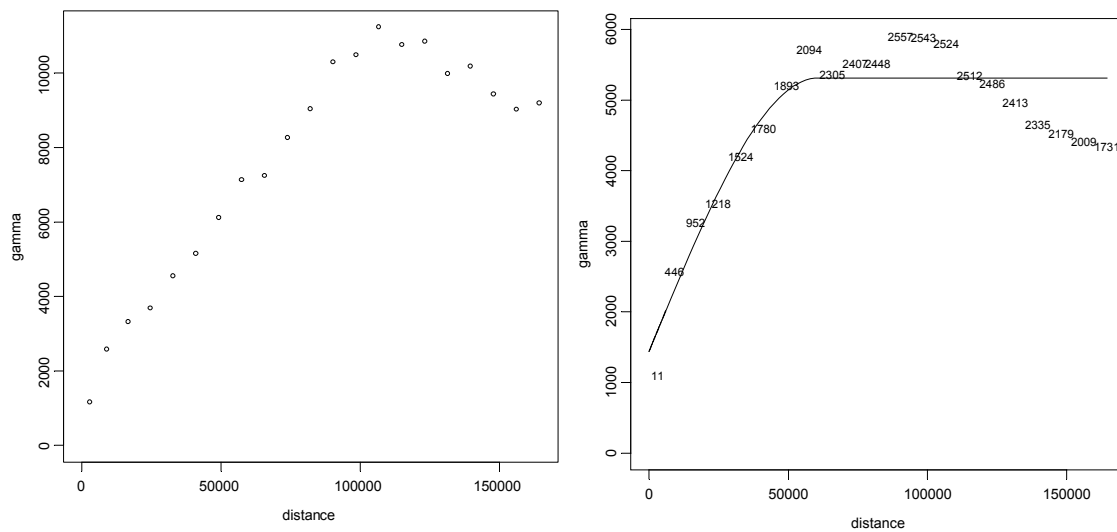
*Figuur 5: Schema van de eerste fase in de universal kriging methode. Deze fase omvat de zogenaamde geostatistiek.*



*Figuur 6: Schema van het tweede deel van de universal kriging methode. Dit tweede deel omvat het lineaire interpolatie gedeelte waarin de modelleringsresultaten uit de eerste fase worden gebruikt.*

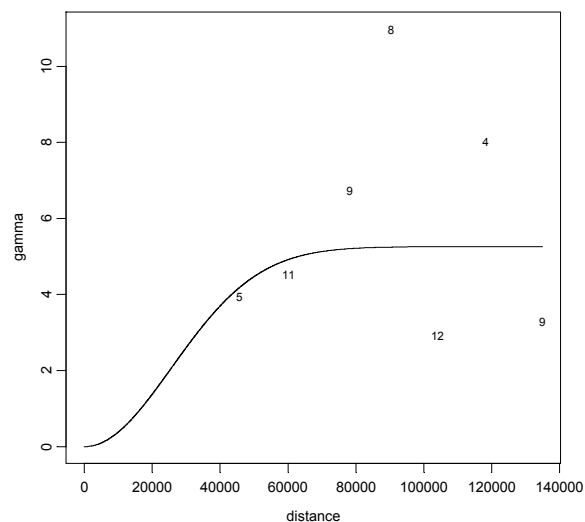


*Figuur 7: Neerslag gegevens in mm voor de jaren 1993 t/m 1995. Links staan de oorspronkelijke jaartotalen en rechts de universal kriging predicties [kwadratisch trendvlak (4) en een sferisch model volgens Tabel 3].*

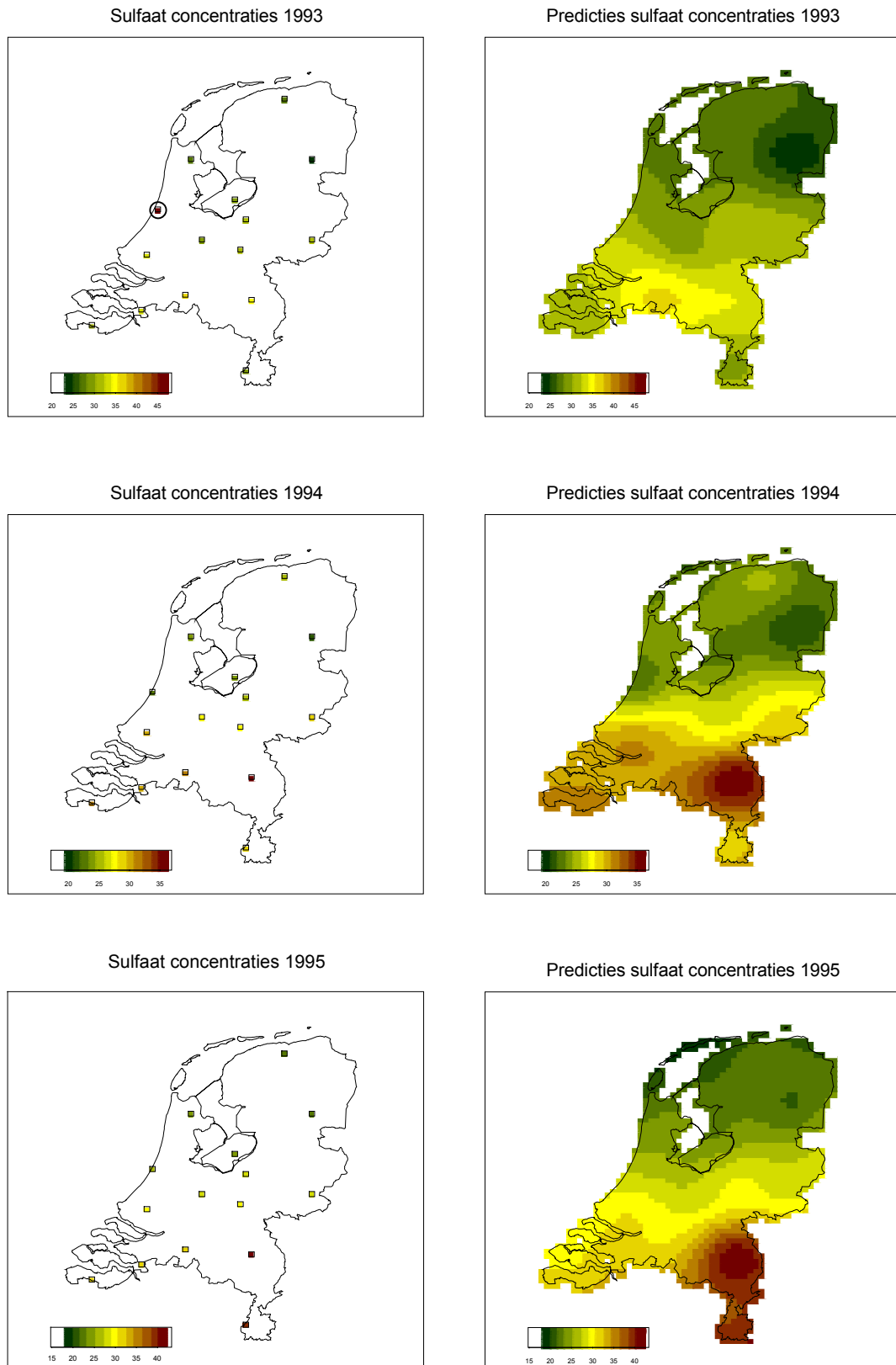


*Figuur 8 : Links: empirisch semivariogram van de oorspronkelijke waarnemingen van de totale hoeveelheid neerslag in 1993 over Nederland.*

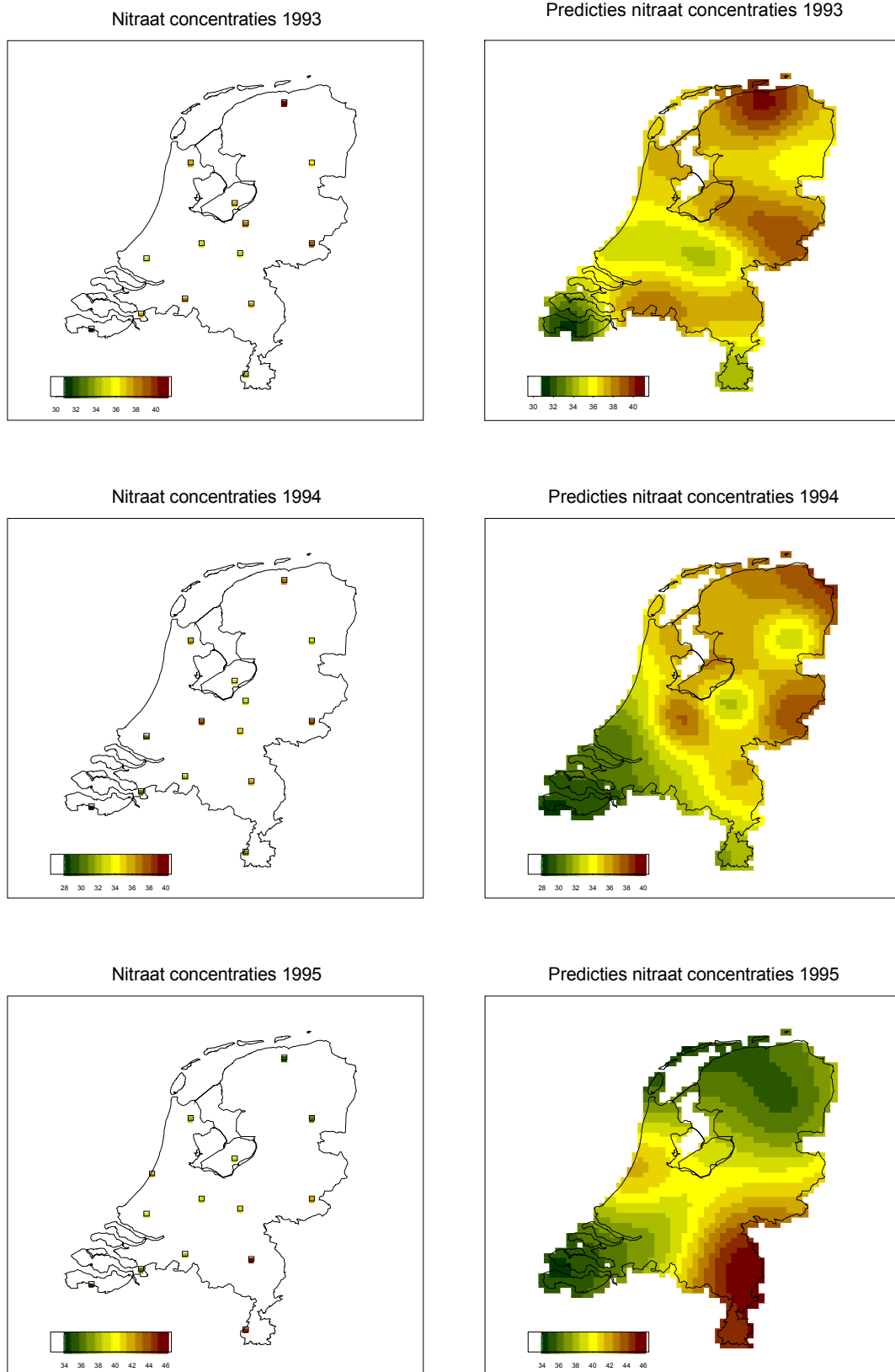
*Rechts: empirische semivariogram van de residuen na trend verwijdering volgens (4) met geschat sferisch semivariogram. De aantallen in de figuur geven het aantal waarnemingen per interval aan en gezamenlijk vormen ze het empirisch semivariogram. Men streeft ernaar dat het aantal puntenparen per interval minimaal 30 is. Hieraan is vanwege het grote aantal waarnemingen ruimschoots voldaan. De getrokken kromme is het geschatte semivariogram.*



*Figuur 9 : Empirisch semivariogram gebaseerd op de residuen van de trendmodellering volgens (4) voor sulfaatconcentraties in 1993, aangeduid met de getallen. Het geschatte semivariogram wordt weergegeven door de getrokken kromme.*

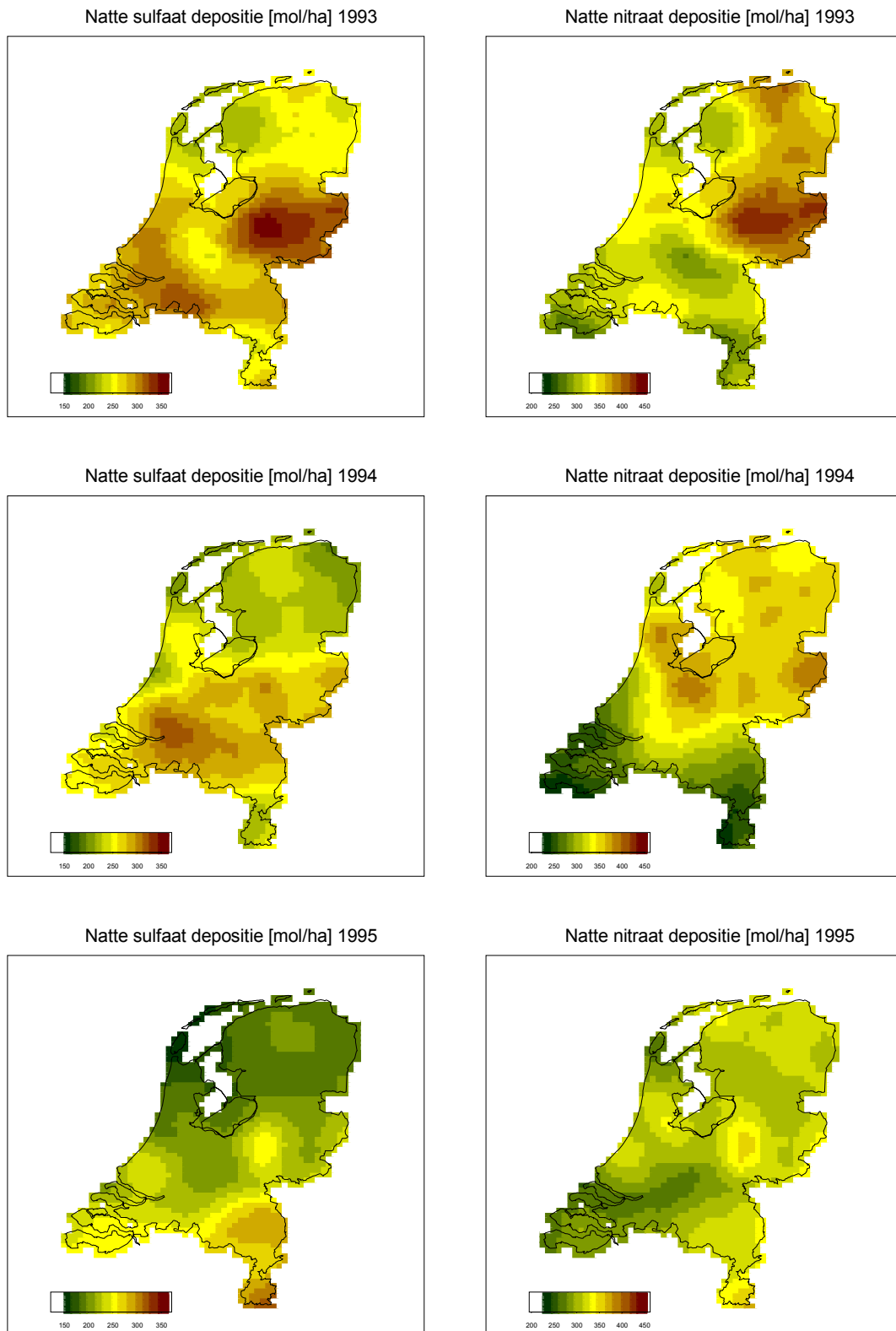


*Figuur 10: Links staan de jaargemiddelde sulfaat concentraties [ $\mu\text{mol/l}$ ] voor 15 stations van het LMR en rechts de universal kriging predicties [lineair trendvlak en gaussisch model volgens Tabel 5]. Het omcirkelde station (1993) is Leiduin, dat buiten de berekeningen is gehouden.*

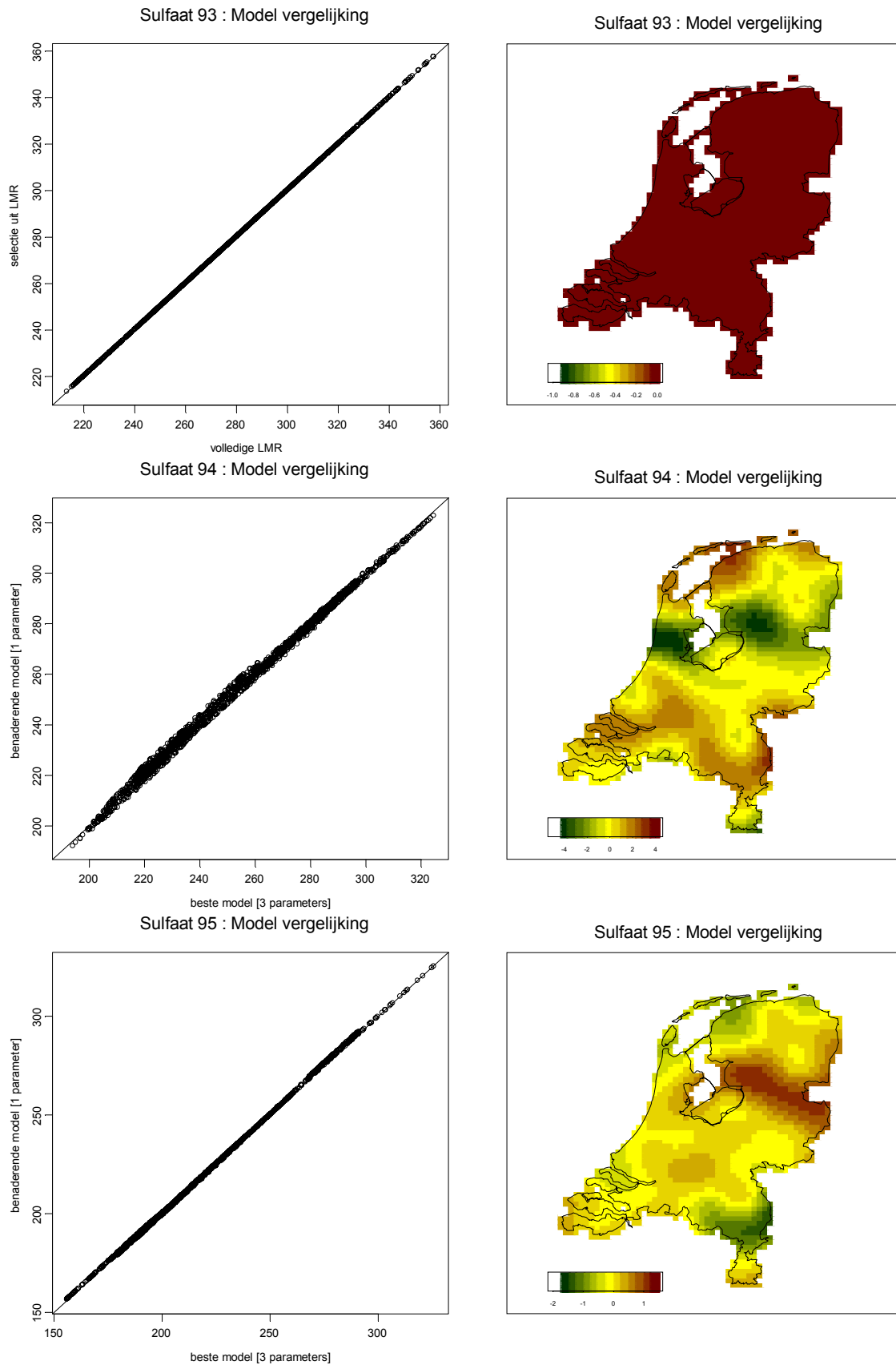


*Figuur 11: Links staan de jaargemiddelde nitraat concentraties [ $\mu\text{mol/l}$ ] voor 14 stations van het LMR en rechts de universal kriging predicties [lineair trendvlak en gaussisch model volgens Tabel 5].*

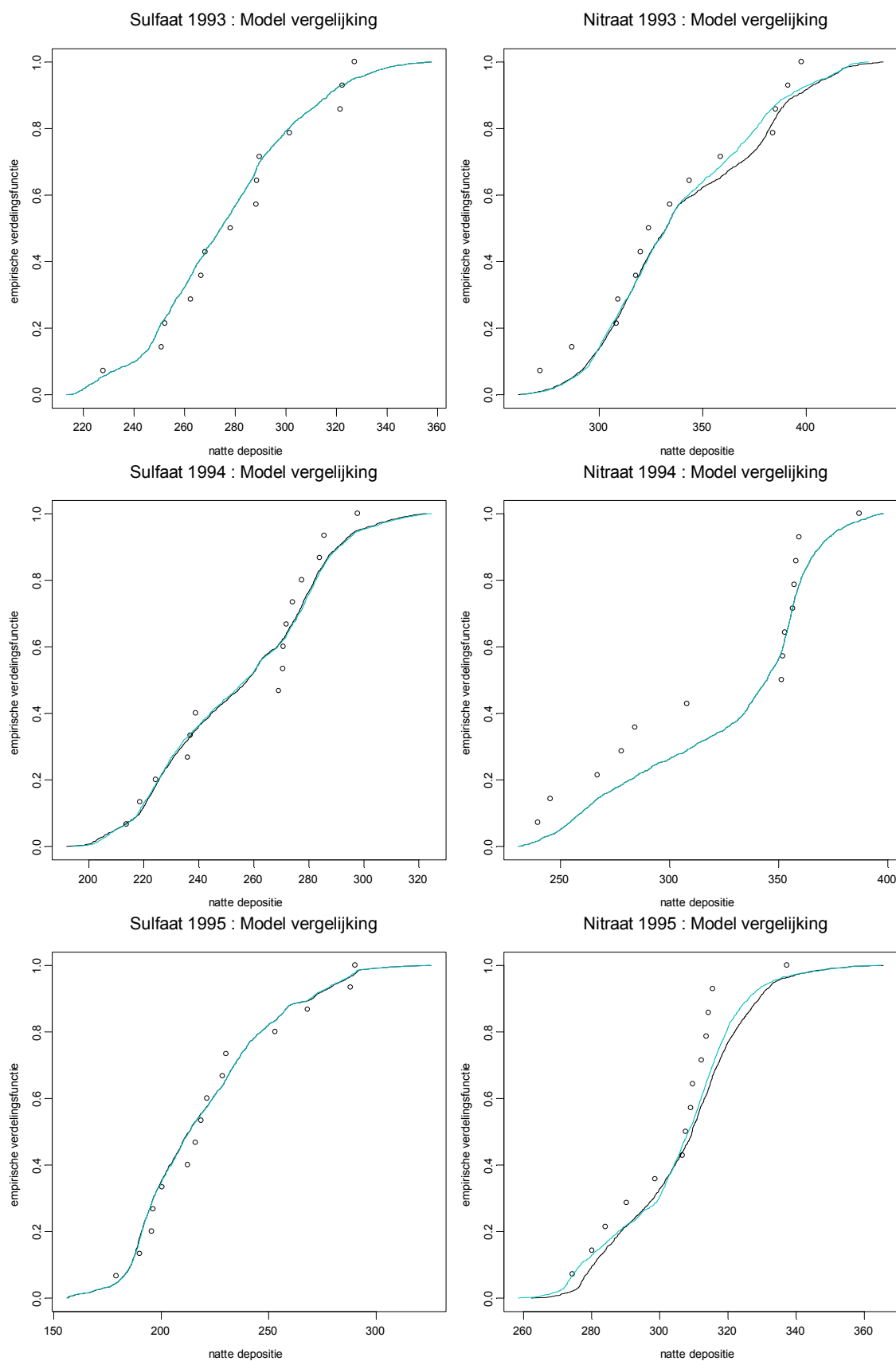




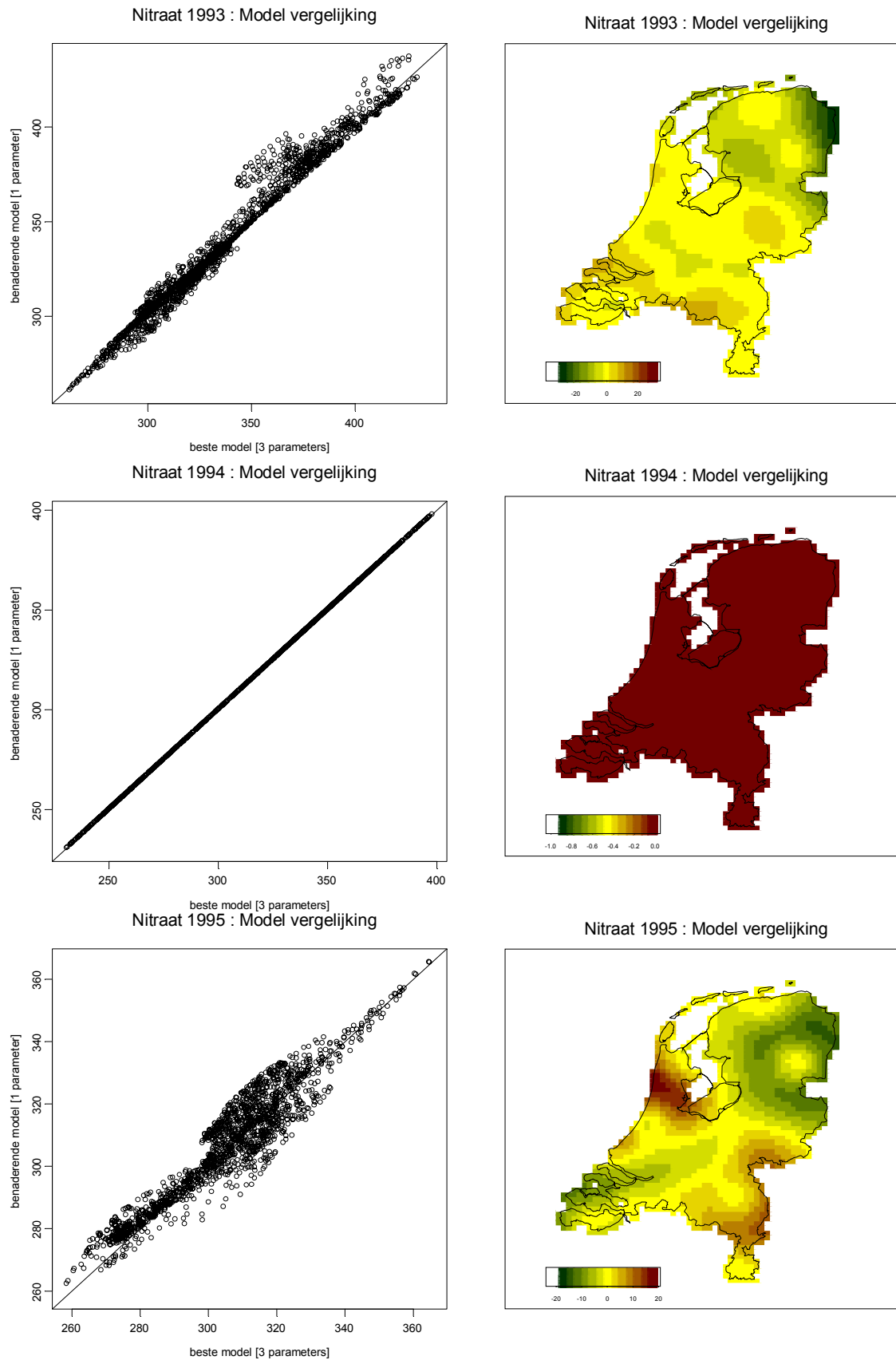
*Figuur 12: Resultaten van de natte deposities van sulfaat (linker kolom) en nitraat (rechter kolom) in mol/ha. Per component is dezelfde schaal gebruikt.*



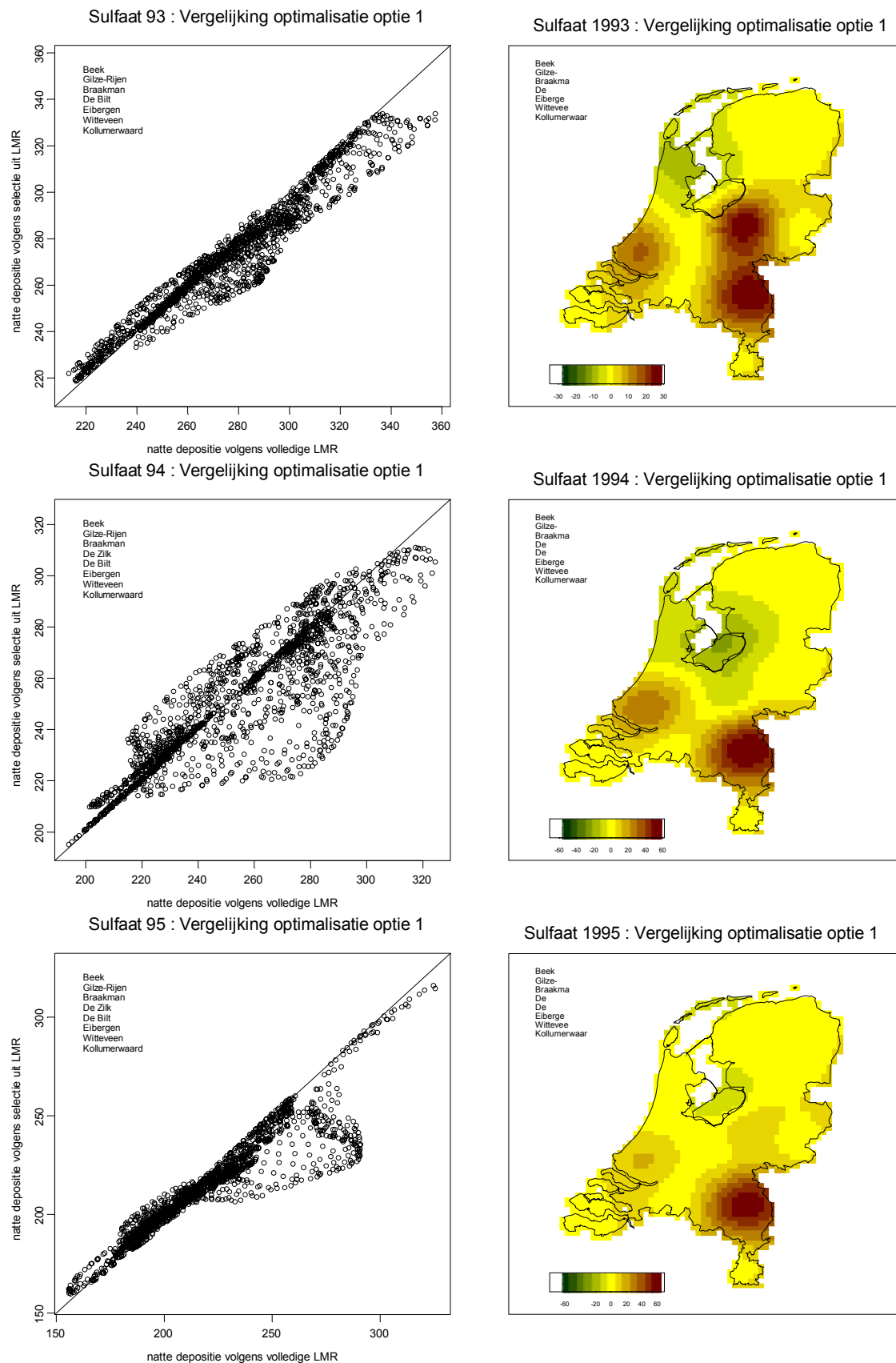
*Figuur 13 : In de linker kolom staat per gridcel de predictie voor natte sulfaat depositie [mol/ha] volgens het benaderende model uitgezet tegen de predictie volgens het beste model. Rechts staan de afwijkingen ruimtelijke weergegeven (predicties beste model minus predicties benaderende model).*



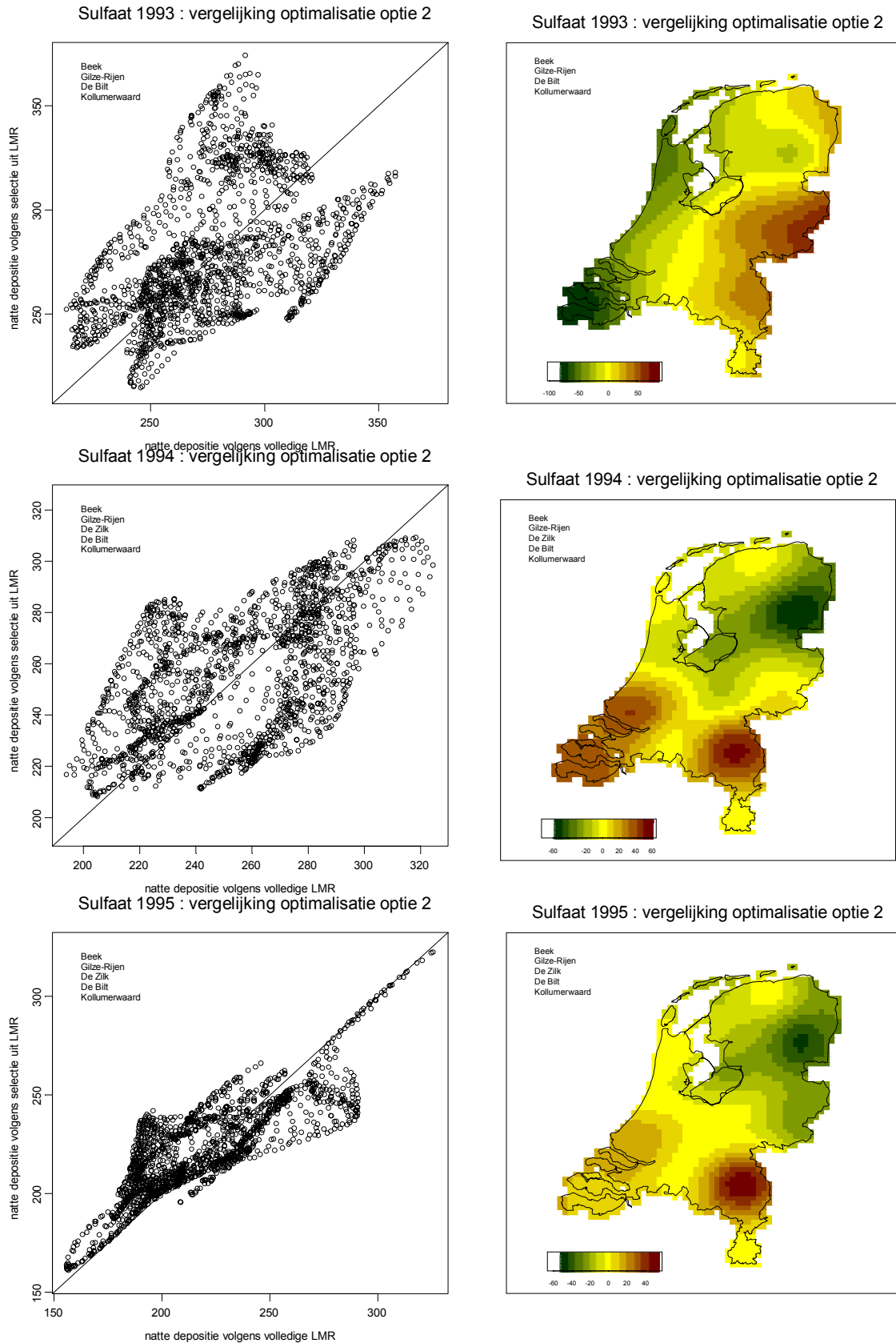
*Figuur 14 : De empirische verdelingsfuncties van resp.de natte deposities [mol/ha] op de LMR stations (de punten) en de predicties voor de natte deposities volgens het beste model (zwarte kromme) en het benaderende model (blauwe kromme).*



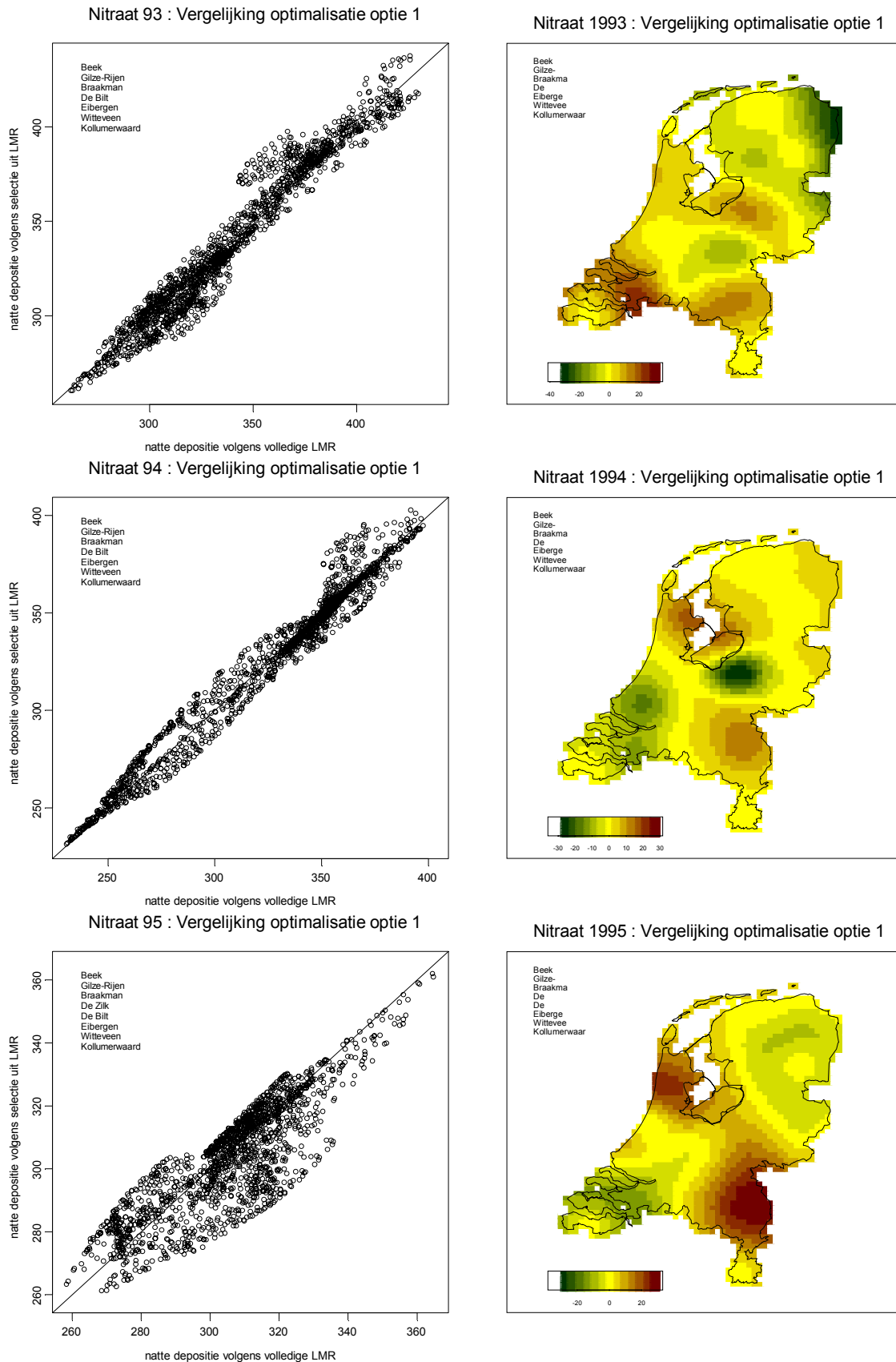
Figuur 15 : In de linker kolom staat per gridcel de predictie voor natte nitraat depositie [mol/ha] volgens het benaderende model uitgezet tegen de predictie volgens het beste model. Rechts staan de afwijkingen ruimtelijke weergegeven (predicties beste model minus predicties benaderende model).



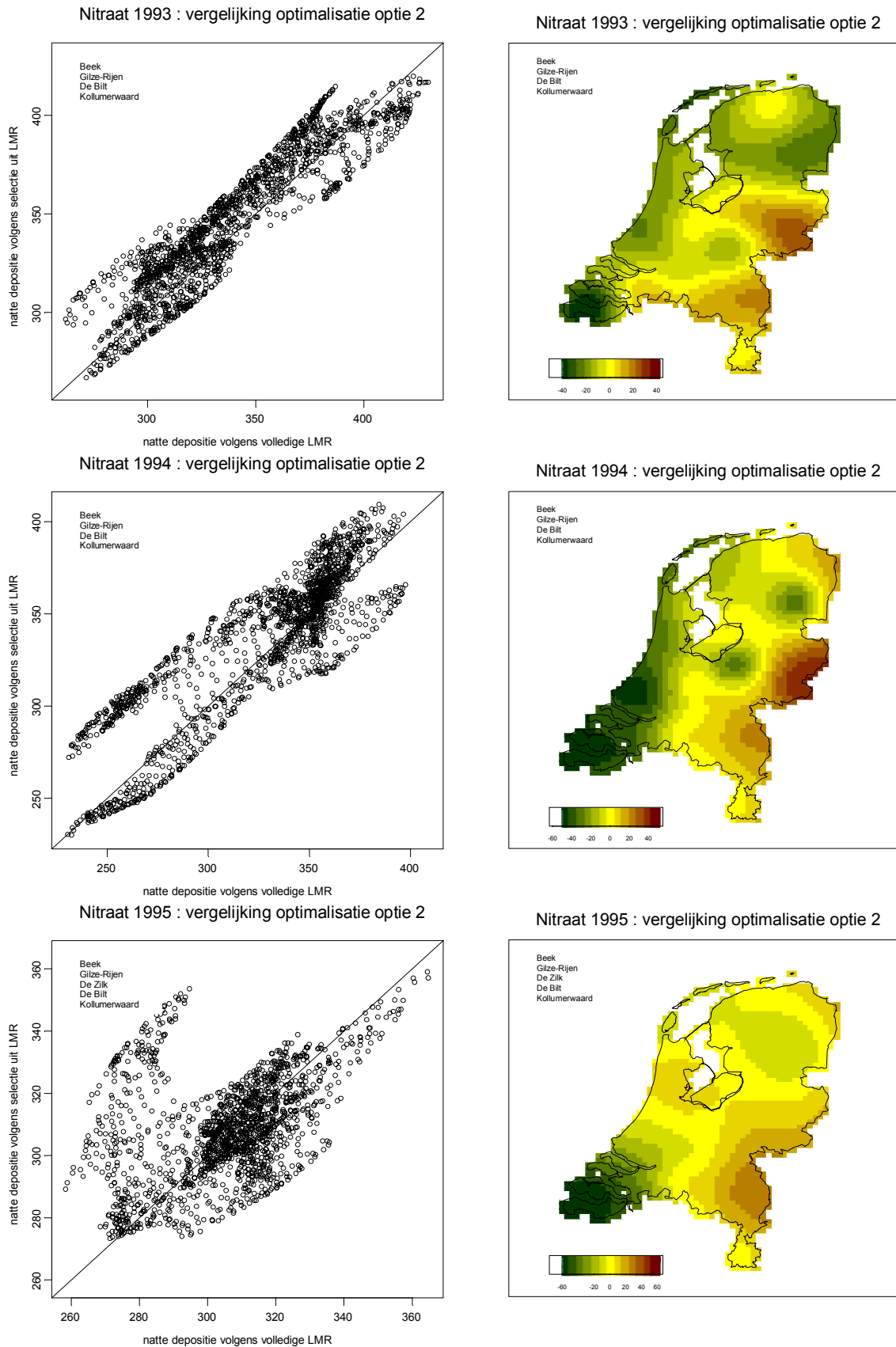
*Figuur 16 : In de linker kolom staan de natte sulfaat deposities [mol/ha] volgens het uitgedunde LMR (optie 1) uitgezet tegen de predicties volgens het volledige LMR. Rechts staan de afwijkingen ruimtelijke weergegeven (predicties volledig LMR minus predicties uitgedund LMR, optie 1).*



*Figuur 17 : In de linker kolom staan de natte sulfaat deposities [mol/ha] volgens het uitgedunde LMR (optie 2) uitgezet tegen de predicties volgens het volledige LMR. Rechts staan de afwijkingen ruimtelijke weergegeven (predicties volledig LMR minus predicties uitgedund LMR, optie 2).*



*Figuur 18: In de linker kolom staan de natte nitraat deposities [mol/ha] volgens het uitgedunde LMR (optie 1) uitgezet tegen de predicties volgens het volledige LMR. Rechts staan de afwijkingen ruimtelijke weergegeven (predicties volledig LMR minus predicties uitgedund LMR, optie 1).*



Figuur 19 : In de linker kolom staan de natte nitraat deposities [mol/ha] volgens het uitgedunde LMR (optie 2) uitgezet tegen de predicties volgens het volledige LMR. Rechts staan de afwijkingen ruimtelijke weergegeven (predicties volledig LMR minus predicties uitgedund LMR, optie 2).