

Monitoring van luchtkwaliteit in een veehouderrijke omgeving in de provincie Limburg : inzicht in verschillen en overeenkomsten tussen componenten

RAPPORTAGE VAN METINGEN OP MEERDERE LOKATIES

I.M. Wouters
I.J. van Schothorst
P. Scherpenisse
J. Spithoven
G. Hoek
D. Heederik

Utrecht, 2019

VOORWOORD

Afgelopen jaren zijn in meerdere rapportages onderzoeksresultaten gepubliceerd van “Veehouderij en Gezondheid Omwonenden (VGO)” onderzoeksprojecten. Deze projectrapportages beschrijven onderzoek dat is uitgevoerd naar via de lucht vanuit intensieve veehouderijen verspreide micro-organismen, fijnstof (PM₁₀) en endotoxinen en mogelijke gezondheidseffecten onder omwonenden. Er zijn verbanden gevonden tussen de aanwezigheid van veehouderijbedrijven en luchtwegklachten en longfunctieveranderingen. Verondersteld werd dat onder meer stof-, endotoxine- en ammoniakemissies gezondheidsrisico's voor omwonenden kunnen verklaren. Voor ammoniak geldt dat emissie vanuit de veehouderij leidt tot vorming van secundair fijnstof. Er bestaat door afbouw van het ammoniak netwerk en de sterke focus op monitoring in natuurgebieden in het kader van de stikstofregelgeving weinig inzicht in de ammoniak concentraties in leefgebied. Verder bestaat ook weinig inzicht in endotoxineniveaus in woongebieden rond veehouderijen.

De provincie Limburg had toegang tot apparatuur van ISSEP in België (*Institut Scientifique de Service Public*) om op twee meetlocaties gedetailleerd de stofblootstelling in kaart te brengen met hoog-resolutiemeetapparatuur. Met deze apparatuur kan een onderscheid worden gemaakt naar de fracties die vooral primair en secundair fijnstof bevatten, hoewel het niet direct mogelijk is componenten van primair en secundair fijnstof te onderscheiden. Al in 2017 hebben vertegenwoordigers van de provincie Limburg het IRAS van de Universiteit Utrecht benaderd met de vraag of men betrokken wilde zijn bij opzet en uitvoering van de ISSEP metingen en deze wilde aanvullen met ammoniak en endotoxine metingen. Uit op dit verzoek volgend overleg is een onderzoeksvoorstel uitgewerkt, dat door de provincie is gehonoreerd. Het onderzoek is in 2018 uitgevoerd en deze rapportage is een uitwerking van de resultaten van dit onderzoek.

Inhoudsopgave

SAMENVATTING	6
Inleiding.....	6
Opzet van het onderzoek	6
Resultaten	7
Ammoniakconcentraties in een veehouderij dicht gebied	7
PM _{2,5} massa en secundair fijnstof concentraties in veehouderij dicht gebied	7
Ultrafijnstof deeltjesconcentraties in Nederweert	8
Kortdurende endotoxine concentraties.....	8
Algemene conclusies	9
Vergelijking met grenswaarden en andere studies.....	9
Aanbevelingen.....	10
1. INLEIDING	12
Leeswijzer	13
2. AANPAK	15
Studie opzet.....	15
Selectie meetlocaties	15
Nederweert	15
Venray	16
Horst aan de Maas.....	16
Maastricht	16
Meetmethoden	18
Continue metingen - ammoniak.....	18
Continue metingen - ultrafijnstof stofdeeltjes (UF)	19
Continue metingen - fijnstof stofdeeltjes (FS)	19
Semi-continue metingen - endotoxinen.....	20
Daggemiddelde metingen - PM _{2,5} massaconcentraties.....	20
Daggemiddelde metingen – secundair fijnstofcomponenten analyse.....	20
Meerdaags gemiddelde metingen – ammoniak.....	20
Gegevensanalyse	21
3. Ammoniak	22
Verloop van ammoniak concentraties over de tijd	22
Verloop van ammoniakconcentraties over de dag	22
Invloed van bronnen	23

Ammoniak concentraties in ruimte en tijd	25
Implicaties	27
4. PM _{2,5} massa en secundair fijnstofcomponenten.....	29
PM _{2,5} massaconcentratie.....	29
Verloop over de tijd.....	29
Invloed van bronnen	29
(Secundair) fijnstofcomponenten	30
Verloop over de tijd.....	30
Invloed van bronnen	32
Correlatie PM _{2,5} massaconcentratie en secundair fijnstofcomponenten met ammoniak concentraties.....	32
.....	33
Implicaties	34
5. Ultrafijnstof en fijnstof(GRIMM) deeltjesaantallen	36
Ultrafijnstof	36
Verloop over de tijd.....	36
Verloop over de dag	38
Invloed van bronnen	40
Correlatie met ammoniakconcentraties	40
Fijnstof deeltjesaantallen met behulp van GRIMM	41
Verloop over de tijd.....	41
Verloop over de dag	41
Invloed van bronnen	42
Implicaties	42
6. Endotoxine.....	44
Verloop van concentraties over de tijd.....	44
Invloed van bronnen	45
Vergelijking met gemodelleerde concentraties	46
Correlatie met ammoniak concentraties	47
Implicaties	48
7. Algemene conclusies en aanbevelingen.....	50
Aanbevelingen.....	50
8. Dankwoord	52
9. Literatuur.....	53

10. Bijlagen	55
Bijlage1. Overzicht van het aantal dieren in buffers van 500m en 1000m rondom de meetlocaties.	56
Bijlage 2. Polar plots van dag-gemiddelde (links) en half-uursgemiddelde (rechts) ammoniak concentraties in relatie met windrichting en windsnelheid voor de meetlocaties NeHa en NeGu..	57
Bijlage 3. Verloop over de tijd van (ultra)fijnstof deeltjes aantallen voor de meetlocaties NeHa en NeGu voor de meetperiode in 2017 en 2018.....	58
Bijlage 4. Polarplots (ultra)fijnstof deeltjes voor de meetlocaties NeHa en NeGu	62
Bijlage 5. Verloop over de tijd in 2018 van fijnstof deeltjesaantallen in 31 GRIMM deeltjesgrootteklassen voor de meetlocaties NeHa (blauw) en NeGu (rood)	65
Bijlage 6. Gemiddeld dagpatroon van fijnstof deeltjesaantallen in 31 GRIMM deeltjesgrootteklassen voor de meetlocaties NeHa (rood) en NeGu (blauw)	69
Bijlage 7 Polarplots van fijnstof deeltjesaantallen in 31 GRIMM deeltjesgrootteklassen voor de meetlocaties NeHa en NeGu	73
Bijlage 8. Detailplots tijdseries 4-uurs endotoxine concentraties.....	77

SAMENVATTING

Inleiding

Het onderzoeksproject “Monitoring van luchtkwaliteit in een veehouderijrijke omgeving in de provincie Limburg” richt zich op een evaluatie van kortdurende veranderingen in de luchtkwaliteit in de leefomgeving in vee-dichte gebieden in Noord-Limburg. Het beoogt meer inzicht te verkrijgen in de kortdurende variaties in concentratie en tijd van een aantal componenten in de lucht die door veehouderijen worden geëmitteerd of met de aanwezigheid van veehouderijbedrijven kunnen samenhangen. De nadruk ligt hierbij op metingen van ammoniak, secundair fijnstof (dat onder andere uit ammoniak wordt gevormd) en endotoxine (een stof afkomstig van Gram-negatieve bacteriën). De doelstellingen van het onderzoeksproject zijn:

- Onderzoek in de leefomgeving van veehouderij-dichte gebieden naar voorkomende concentraties en de variatie in de concentraties voor ammoniak-, ultra-fijnstof, en fijnstof, en endotoxine. Voor ammoniak gaat het om relatief korte metingen over een periode van een half uur, voor endotoxine gaat het om metingen gedurende 4 uur. De verschillen in concentraties en variatie in concentraties worden ook beschreven voor meerdere locaties.
- Onderzoeken naar voorkomende concentraties van secundair fijnstofcomponenten in de PM_{2,5} stof fractie (24-uurs gemiddelde) in een gebied met veel veehouderij en een regionale achtergrondlocatie zonder nabijheid van veehouderij.
- Onderzoeken naar gemiddelde ammoniak concentraties over meerdere dagen op meerdere nabij gelegen locaties, naar de vergelijkbaarheid van concentratiepatronen over de tijd.

De resultaten van dit onderzoek dragen bij aan het antwoord op de vraag óf en hoe de veehouderij de luchtkwaliteit verandert over de tijd en in de ruimte voor verschillende componenten. Daarnaast beoogt dit onderzoek inzicht te geven of gemeten concentraties endotoxine overeenkomen met resultaten afkomstig uit een verspreidingsmodel waarmee in eerder onderzoek de endotoxine concentratie is voorspeld.

Opzet van het onderzoek

De variatie in luchtverontreinigende stoffen afkomstig uit de intensieve veehouderij werd onderzocht door een combinatie van elkaar aanvullende meetstrategieën. Voor de diverse stoffen verschilden de tijdsintervallen tussen de metingen alsook het aantal locaties waar de metingen werden uitgevoerd (zie de tabel hieronder).

In de gemeente Nederweert werden op twee locaties gelijktijdig, ieder half uur, de concentraties ammoniak, fijnstof en ultra-fijn stof (deeltjes met een diameter van 100nm en kleiner) gemeten gedurende een periode van circa 3 maanden in de zomer van 2017 en in het voorjaar van 2018. Eén locatie werd gekenmerkt door een hoge veehouderijdichtheid in de directe omgeving én een groot aantal nabije veehouderijen (afstand op minder dan 500 meter). De andere locatie werd gekenmerkt door een lagere veehouderijdichtheid in de omgeving. Tevens werden op deze locaties én op een locatie in Maastricht, daggemiddelde PM_{2,5} concentraties in de lucht bepaald. In het stof werd het aandeel secundair anorganisch fijnstof vastgesteld. In dezelfde periode werd gelijktijdig op de twee locaties in Nederweert de endotoxineconcentratie in de lucht bepaald over opeenvolgende periodes van 4-uur. Na de metingen in Nederweert zijn in Venray en Horst aan de Maas eveneens op twee locaties 4-uurs endotoxineconcentraties in de lucht bepaald gedurende periodes van circa 2 weken. In elke gemeente werd een veehouderij dichte en een minder veehouderij dichte locatie bemeaten.

Ten slotte werd een klein ruimtelijk meetnetwerk opgezet, waarbij gemiddelde ammoniakconcentraties werden gemeten, over meerdere dagen, met behulp van passieve monsternemers op de eerder genoemde locaties in Nederweert, en een 7-tal andere locaties verspreid in de gemeente Nederweert, en bij een punt van het Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit (locatie Vredepeel).

Schematisch overzicht van de meetcampagnes

Gemeente	Locatie	Ammoniak		Ultrafijn	PM2,5 massa	Endotoxine
		30 min	meerdaags	stof	en samenstelling	
				30 min	24 uur	4 uur
Nederweert	hoge veehouderijdichtheid	X	X	X	X	X
	lage veehouderijdichtheid	X	X	X	X	X
	7 ruimtelijk verspreide locaties		X			
Maastricht	stedelijke achtergrond				X	
Venray	hoge veehouderijdichtheid					X
	lage veehouderijdichtheid					X
Horst a/d Maas	hoge veehouderijdichtheid					X
	lage veehouderijdichtheid					X

Resultaten

Ammoniakconcentraties in een veehouderij dicht gebied

De ammoniakconcentraties in de lucht verschillen duidelijk tussen de verschillende meetlocaties. Deze verschillen werden gezien voor de continue half-uursmetingen en de metingen over meerdere dagen. De resultaten wijzen op een duidelijke bijdrage van lokale stalbronnen aan de ammoniakconcentraties in de lucht. Dit is met name goed waar te nemen voor de continue metingen. Met deze metingen worden ammoniak piekconcentraties opgepikt die afhankelijk bleken van de ligging van de veehouderijbedrijven ten opzichte van de meetlocaties en de op het moment van de meting heersende windrichting en windsnelheid. Bij passieve monsternamen, waarbij er gedurende langere tijd bemonsterd wordt, worden hogere concentraties uitgemiddeld, waardoor verschillen over de tijd afvlakken. Desondanks zijn er ook verschillen over de tijd en tussen locaties waargenomen met de passief over meerder dagen gemeten ammoniakconcentraties. De passief gemeten ammoniakconcentraties zijn geassocieerd met de aanwezigheid en de ammoniak uitstoot van veehouderijbedrijven in een straal van 1 km rond de meetlocaties. Dit wijst erop dat de gemeten concentraties worden bepaald door lokale emissie van ammoniak door veehouderijbedrijven. In het voorjaar van 2018 zijn duidelijk hogere concentraties ammoniak gemeten dan in de zomer van 2017. Dit wordt waarschijnlijk deels veroorzaakt door de weersomstandigheden die tussen de jaren verschillen. Het maximale verschil in gemiddelde ammoniakconcentraties tussen locaties bedraagt een factor 2,4.

PM2,5 massa en secundair fijnstof concentraties in veehouderij dicht gebied

Gemiddelde PM_{2,5} massaconcentraties voor de twee meetlocaties in Nederweert zijn hoger dan in Maastricht (respectievelijk circa 13 µg/m³ vs 11 µg/m³). De gemiddelde concentraties van de secundair fijnstofcomponenten (ammonium, sulfaat en nitraat) zijn circa 30% hoger voor de locaties

in Nederweert vergeleken met Maastricht. In tegenstelling tot ammoniak, kon voor PM_{2,5} geen duidelijk stalbronbijdrage worden vastgesteld. De hogere PM_{2,5} massaconcentraties en de hogere concentratie secundair fijn stof componenten in Nederweert ten opzichte van Maastricht lijken niet direct door een lokale bron veroorzaakt te worden, maar zijn meer het gevolg van een combinatie van bronnen in de omgeving van de meetlocaties en de vorming van secundair fijn stof. De hoge correlatie tussen de PM_{2,5} massaconcentratie en de secundair fijn stof componenten vormt hiervoor een sterke aanwijzing. In Nederweert is de bijdrage van secundair fijn stof aan de PM_{2,5} massaconcentratie groot. Deze bijdrage is substantieel in beide jaren: 46% in 2017 en 50% in 2018. Het aandeel van secundair fijn stof in Maastricht is met 47% in 2018 duidelijk hoger dan de 38% bijdrage in 2017. Het is waarschijnlijk dat de hogere ammoniakconcentraties zoals waargenomen in 2018 hebben geresulteerd in een hogere bijdrage van secundair fijnstof over een groter gebied. Het onderzoek bevestigt dat secundair fijn stof vorming uit ammoniak een belangrijke rol speelt in de PM_{2,5} massaconcentraties.

Ultrafijnstof deeltjesconcentraties in Nederweert

In Nederweert zijn stofdeeltjes concentraties gemeten in diverse deeltjesgrootte klassen. De deeltjesgrootte varieerde van ultrafijn stof (deeltjes kleiner dan 100 nm) tot aan deeltjes van 31 µm grootte. Voor alle deeltjesgrootte klassen is geen duidelijke directe bronbijdrage waargenomen. Dit suggereert dat de concentraties aan (ultra-)fijnstof deeltjes in beperkte mate direct door een lokale bron worden beïnvloed, maar het gevolg zijn van een combinatie van bronnen in de omgeving van de meetlocaties en transport over grotere afstanden.

Het patroon over de dag van de ultrafijn stof deeltjes aantallen vertoont voor deeltjes tot een diameter van 50nm een toename in de middaguren, wat suggestief is voor de vorming van nieuwe deeltjes als gevolg van fotochemische processen. Op de locatie met veel veehouderij in de nabijheid wordt dit voor de allerkleinste deeltjes (10-20nm) meer waargenomen, dan op de locatie waar er minder veehouderij in de directe omgeving aanwezig is. Op deze locatie zijn ook de hoogste ammoniakconcentraties gemeten. Dit suggereert dat er lokale verschillen in bijdrage van secundair fijnstof vorming tussen locaties kan optreden. Net als voor de fijnstof compositie wordt een verschil gevonden tussen de jaren 2017 en 2018. Dit wordt waarschijnlijk door verschillen in de meteorologische condities over de jaren verklaard.

Kortdurende endotoxine concentraties

De 4-uurs endotoxinen concentraties vertonen grote variatie over de tijd, waarbij regelmatig hogere concentraties voorkomen, met name bij de veehouderijdichte locaties. De verhoogde concentraties liggen rond of boven de voorgestelde grenswaarde van de Gezondheidsraad van 30 EU/m³. Resultaten wijzen op een bijdrage van lokale stalbronnen aan de endotoxine concentratie in de lucht, door de invloed van lokale bronnen bij bepaalde windrichtingen voor de hoog veehouderij belaste locaties in Nederweert en in Venray. De verhouding tussen de gemeten 99,5- percentiel concentraties op de twee meetlocaties in Nederweert komt redelijk overeen met de verhouding van de gemodelleerde waarden. De gemeten P99,5 endotoxine concentraties liggen een factor 1,6 hoger dan met een verspreidingsmodel berekende concentraties. De meetperiode in de gemeenten Venray

en Horst aan de Maas was te kort om goede indruk van het voorkomen van verhoogde concentraties te krijgen.

Niet eerder zijn tijdserie reeksen verzameld voor endotoxine in totaal stof in plaats van in PM₁₀ stof. Ook zijn niet eerder reeksen kortdurende (4-uurs) metingen voor endotoxinen uitgevoerd.

Algemene conclusies

Dit onderzoek had als doel om een antwoord te geven op de vraag óf en hoe de verschillende veehouderij gerelateerd luchtkwaliteitscomponenten veranderen over de tijd en naar meetlocatie (ruimte). Variaties over de tijd die duidelijk wijzen op lokale stalbronbijdragen zijn waargenomen voor ammoniak- en endotoxineconcentraties. Twee componenten die beiden specifiek zijn voor veehouderijen en waarvoor geldt dat de achtergrondconcentratie in de lucht relatief laag is. Dit verklaart waarschijnlijk waarom voor deze componenten eenvoudig een relatie met de aanwezigheid van veehouderijen in de omgeving kan worden gelegd. De twee componenten zijn niet hoog met elkaar gecorreleerd, dus vertonen ieder een unieke invloed als gevolg van de aanwezigheid van veehouderijbedrijven in de omgeving.

Het is voor het eerst dat endotoxine concentraties in de buitenlucht in totaal stof is gemeten in plaats van in PM₁₀. In eerdere verkennende studie naar endotoxine verspreidingsmodellering werden verhoogde 4-uursgemiddelde endotoxine concentraties in totaalstof voorspeld (Erbrink et al., 2016). De metingen laten zien dat aanzienlijk verhoogde 4-uursgemiddelde endotoxine concentraties in totaal stof daadwerkelijk optreden en dat endotoxine in totaal stof moet worden gemeten. De gemeten endotoxineconcentraties zijn hoger dan berekend (factor 1,6) en kunnen niveaus vertonen rond of boven de door de Gezondheidsraad voorgestelde grenswaarde.

Voor componenten die samenhangen met de hoeveelheid fijnstof wordt in het algemeen een minder duidelijke directe lokale stalbijdrage waargenomen. Toch zijn er verschillen tussen locaties (verschillen tussen meer of minder veehouderijdichte locaties), die het gevolg zijn van een combinatie van verschillende bronnen in de directe omgeving en verder weg. De bijdrage van secundair fijnstof aan PM_{2,5} massaconcentraties is in het algemeen hoger voor de locaties in Nederweert (circa 46- 50%) dan op de stadsachtergrond locatie in Maastricht (circa 38%). Als gevolg van andere meteorologische omstandigheden in 2018 was de secundair fijnstof bijdrage in Maastricht verhoogd (circa 46%). Dit duidt erop dat afhankelijk van de condities, de invloed van secundair fijn stof over een groter gebied spreidt. Het concentratiepatroon van ultrafijnstof deeltjes over de dag suggereert dat vorming van nieuwe deeltjes als gevolg van fotochemische processen optreedt, afhankelijk van de veehouderijdichtheid.

Vergelijking met grenswaarden en andere studies

Voor ammoniakconcentraties in de buitenlucht bestaat geen wettelijke grenswaarden. De verschillen tussen locaties in gemeten concentraties komen overeen of zijn hoger dan concentraties in eerdere studies in de Verenigde Staten en Duitsland (Loftus et.al, 2015, Schulze et al, 2011) . In deze studies zijn relaties tussen ammoniakconcentraties en gezondheidsuitkomsten gerapporteerd. Overigens zijn recent ook in Nederland, onder COPD patiënten, bij de waargenomen ammoniakniveaus effecten op de longfunctie geconstateerd (van Kersen et al., 2019).

Ammoniak wordt chemisch omgezet in secundaire anorganische aerosolen, zoals ammoniumnitraat en ammoniumsulfaat. Voor de vorming van secundair fijn stof speelt daarom niet alleen de hoeveelheid ammoniak, maar ook de hoeveelheid van de gassen die leiden tot vorming van nitraat (NO_x (NO en NO_2)) en sulfaat (SO_2) een rol. Ook meteorologische condities zijn bepalend (Sutton et al, 2003). Door de afname van de hoeveelheid SO_2 in de lucht, is de hoeveelheid ammoniak en NO_x tegenwoordig bepalend geworden voor de secundair fijnstof vorming (van Zanten, 2017). De bijdrage van secundair fijnstofcomponenten aan de massaconcentratie bleek met gemiddeld 50% relatief groot. Dit is eerder geconstateerd in een internationale studie (Lelieveld et al. 2015). Secundair fijnstof zorgt voor de helft van de ($\text{PM}_{2.5}$) fijnstof belasting in Nederland.

Sinds 2008 zijn grens- en richtwaarden voor $\text{PM}_{2.5}$ opgenomen in de Europese richtlijn voor luchtkwaliteit. Voor $\text{PM}_{2.5}$ geldt een Europese grenswaarde van $25 \mu\text{g}/\text{m}^3$ voor het jaargemiddelde. De World Health Organization (WHO) adviseert een grenswaarde van $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$. De Europese grenswaarde van $25 \mu\text{g}/\text{m}^3$ wordt op geen van de bemeten locaties overschreden, terwijl de advieswaarde van $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ van de WHO wel op alle locaties wordt overschreden. Een beperking in deze vergelijking is dat de metingen niet een heel jaar betreffen.

In 2012 heeft de Gezondheidsraad een tentatieve grenswaarde voor de endotoxine concentratie in de lucht rond veehouderijen afgeleid (Gezondheidsraad, 2012). Deze grenswaarde is afgeleid van een grenswaarde die eerder is voorgesteld voor de werkomgeving en geldt voor concentraties endotoxine in de inhaleerbaar stoffractie gedurende de werkdag. Voor de buitenluchtconcentraties is een middelingstijd van 4-uur gehanteerd. Het is voor het eerst dat endotoxine concentraties in kortdurende metingen en in de totaalstof fractie gemeten is (een fractie die de inhaleerbaar stoffractie benadert). De over 4-uur waargenomen concentraties liggen rond of boven de voorgestelde grenswaarde van de Gezondheidsraad van $30 \text{ EU}/\text{m}^3$. Er zijn endotoxine concentraties tot $75 \text{ EU}/\text{m}^3$ gemeten. Dit zijn concentraties die in de buurt komen van concentraties die in de werkomgeving zijn waargenomen ($90 \text{ EU}/\text{m}^3$) en waarvan bekend is dat deze acute gezondheidseffecten teweeg kunnen brengen. Dit zijn de laagste concentraties waarbij effecten in de literatuur zijn beschreven. Er is niet eerder onderzoek uitgevoerd waarbij blootstelling over kortere periodes in de woonomgeving in relatie tot gezondheid onderzocht is. In recent onderzoek (de Rooij e.a., 2019) zijn associaties tussen jaargemiddelde endotoxine blootstelling in PM_{10} en gezondheidseffecten bij omwonenden in een gebied met veel veehouderijen gerapporteerd. De veronderstelling is dat juist kortdurend verhoogde concentraties endotoxine deze effecten verklaren. Definitieve uitspraken over gezondheidseffecten zijn alleen mogelijk als verder onderzoek hiernaar wordt uitgevoerd.

Aanbevelingen

De aanzet tot dit onderzoek waren de bevindingen in de eerdere VGO (Maassen et al. 2016; Hagens et al. 2017) en RVG onderzoeken (Heederik et al, 2019). In VGO onderzoeken is vastgesteld dat jaargemiddelde concentraties van micro-organismen en endotoxine verhoogd zijn, en samenhangen met de afstand tot veehouderij bedrijven en aantallen van veehouderijbedrijven in een gebied rond de metingen (de Rooij et al. 2018; de Rooij, Hoek, et al. 2019). Verkennende modellering van endotoxineconcentraties die optreden gedurende enkele uren voor een groter gebied op basis van emissiegegevens leken er op te wijzen op dat hoge piekconcentraties endotoxine

naar alle waarschijnlijkheid voorkomen ook op afstanden waar de bewoning zich bevindt (Erbrink et al. 2016). Informatie over herhaalde kortdurende metingen naar endotoxine in de leefomgeving ontbreken. In het VGO onderzoek zijn meerdere associaties gevonden die wijzen op gezondheidsrisico's voor omwonenden. Luchtwegklachten en een verminderde longfunctie komen vaker voor wanneer de dichtheid van veehouderijbedrijven rond de woning hoger is, ongeacht het type bedrijf (Borlee et al. 2015). Een verminderde longfunctie wordt vaker gevonden in periodes met verhoogde ammoniakconcentraties, wat vermoedelijk wijst op een rol van secundair fijnstof blootstelling (Borlee, Yzermans, Krop, et al. 2017). Het gevonden verband tussen de longfunctie en ammoniak in de lucht vroeg om nadere aandacht voor secundair fijnstof en ammoniak. Er is in Nederland weinig inzicht in ammoniakconcentraties in leefgebied. Uit het VGO en RVG onderzoek lijkt een mogelijke rol voor kortdurende veranderingen in luchtkwaliteit van belang.

Het huidige onderzoek laat zien dat inderdaad kortdurende en langer durende veranderingen in de luchtkwaliteit kunnen optreden die samenhangen met veehouderijenmerken van de omgeving. Het is voor het eerst dat dergelijk onderzoek systematisch is uitgevoerd. Met de resultaten van dit onderzoek kan richting gegeven worden naar aanvullend onderzoek om de bijdrage voor verschillende componenten als gevolg van de veehouderij beter in kaart te brengen. Dit onderzoek is een eerste aanzet. Of de uitkomsten uniek zijn voor de huidige locaties of te extrapoleren zijn naar andere locaties in Nederland kan door het beperkte inzicht in veehouderij gerelateerde luchtverontreiniging niet worden voorspeld. Het verdient daarom aanbeveling om het onderzoek in een ander gebied te herhalen.

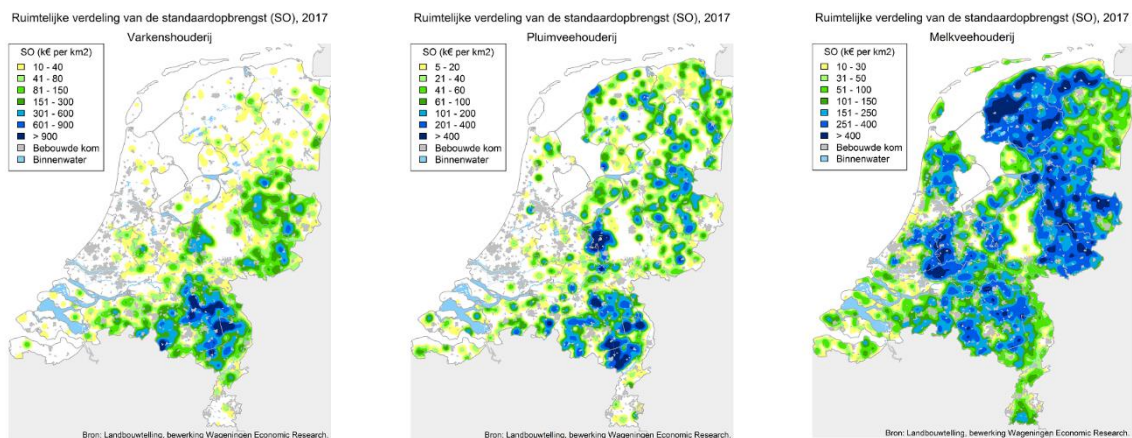
In het veehouderij gebied bestaat circa 50% van de PM_{2.5} massa uit secundair fijnstof, dat o.a. uit ammoniak afkomstig uit intensieve veehouderij gevormd wordt. Voor de vorming van secundair fijn stof zijn niet alleen ammoniak nodig, maar zijn ook andere componenten uit de lucht nodig, waaronder NO_x, welke een andere oorsprong hebben, o.a. uit verbrandingsmotoren. In het jaar waarin de ammoniak concentraties het hoogst waren lijkt de invloed van secundair fijnstof vorming zich over een groter gebied uit te spreiden, dit suggereert dat ammoniak mogelijk de beperkende factor is bij de vorming van secundair fijn stof. Resultaten zullen bijdragen aan de discussie en beleidsontwikkeling rondom veehouderij en gezondheid, waarbij de focus mogelijk niet alleen gericht moet zijn op directe lokale effecten maar ook hernieuwde aandacht voor secundair fijnstof vorming over grote gebieden meegewogen moet worden.

Het is voor het eerst dat kortdurende pieken in endotoxineconcentraties gemeten zijn. Hoewel er een overeenkomst is met de eerder gemodelleerde concentraties, roepen de uitkomsten van het onderzoek ook vragen op. Zo zijn de concentraties hoger dan voorspeld door de endotoxinemodellen. Dit vergt specifieke validatie van gemodelleerde endotoxineconcentraties over korte periodes, door meetreeksen van 4-urige metingen te verzamelen op meerdere locaties.

1. INLEIDING

Nederland telt een groot aantal veehouderijbedrijven op een klein landoppervlak. De verdeling van veehouderijbedrijven over Nederland is niet gelijk, en varieert per gehouden diersoort. Zo zijn melkveebedrijven redelijk gelijk verspreid over het land aanwezig. Andere veehouderijbedrijven komen meer geconcentreerd in bepaalde gebieden voor. Een voorbeeld hiervan zijn pluimveehouderijen en varkenshouderijen welke onder andere geconcentreerd zijn in Noord-Brabant en het noordelijk deel van Limburg (zie Figuur 1). De provincie Limburg kent een aantal gemeentes waarin sprake is van overschrijding van de luchtkwaliteitseisen voor PM₁₀ als gevolg van veehouderijen, zoals beschreven in de monitoringstool van nationale samenwerking luchtkwaliteit (<https://www.nsl-monitoring.nl/>).

Vanwege de grote dichtheid van veehouderijbedrijven in Limburg, in combinatie met het voorkomen van overschrijdingssituaties in dit deel van Nederland, is het *Institute for Risk Assessment Sciences* van de Universiteit Utrecht gevraagd om nader onderzoek uit te voeren.



Figuur 1. Ruimtelijke verdeling van veehouderijbedrijven in Nederland. Een overzicht is gegeven voor respectievelijk de varkens-, de pluimvee- en de melkveehouderijsector. Bron: www.agrimatie.nl thema ruimtelijke verdeling.

Recentelijk zijn de onderzoeksresultaten van het Veehouderij en Gezondheid Omwonenden (VGO) onderzoeksprojecten gepubliceerd (Maassen et al. 2016; Hagens et al. 2017). In dit project is onderzoek uitgevoerd naar via de lucht verspreide micro-organismen, fijnstof (PM₁₀) en endotoxinen vanuit intensieve veehouderijen die leiden tot blootstelling van omwonenden en mogelijke gezondheidsrisico's. Jaargemiddelde concentraties van micro-organismen en endotoxine zijn verhoogd, en hangen samen met de afstand tot veehouderij bedrijven en aantallen van veehouderijbedrijven in een gebied rond de metingen (de Rooij et al. 2018; de Rooij, Hoek, et al. 2019). Er zijn meerdere associaties gevonden die wijzen op gezondheidsrisico's voor omwonenden. Luchtwegklachten en een verminderde longfunctie komen vaker voor wanneer de dichtheid van veehouderijbedrijven rond de woning hoger is, ongeacht het type bedrijf (Borlee et al. 2015). Een verminderde longfunctie wordt vaker gevonden in periodes met verhoogde ammoniakconcentraties, wat vermoedelijk wijst op een rol van secundair fijnstof blootstelling (Borlee, Yzermans, Krop, et al. 2017). Ammoniak wordt in de atmosfeer via een reeks chemische processen voor een belangrijk deel omgezet in secundair fijnstof.

Het gevonden verband tussen de longfunctie en ammoniak in de lucht vraagt om nadere aandacht voor secundair fijnstof en ammoniak. Er is in Nederland weinig inzicht in ammoniakconcentraties in leefgebied. Er vind wel monitoring plaats in natuurgebieden in het kader van de stikstofregulering. In hoeverre deze metingen ook inzicht geven in de ammoniak concentraties in leefgebied is niet duidelijk. Gezien de voorgenoemde relaties met gezondheidseffecten en omdat ammoniak bijdraagt aan de secundaire fijnstof fractie, werd het zinvol geacht om uitgebreidere meetseries te verzamelen en deze meetgegevens te associëren aan de concentratie stof uit de fijnstof fracties van deeltjes <2,5 en <1 µm, alsmede ook om de samenstelling van componenten in het stof die gezamenlijk het secundair fijnstof vormen te bepalen.

De in de IVG en VGO studies gevonden jaargemiddelde endotoxineniveaus in de woonomgeving en de endotoxineniveaus nabij de bedrijven waren aanleiding voor nader onderzoek naar modellering van endotoxineconcentraties die optreden gedurende enkele uren voor een groter gebied op basis van emissiegegevens. Verkennend modeleringswerk leek er op te wijzen op dat hoge concentraties endotoxine over korte perioden kon voorkomen op afstanden waar zich bewoning bevindt (Erbrink et al. 2016). Informatie over herhaalde kortdurende metingen naar endotoxine in de leefomgeving ontbreken echter. Naar aanleiding van de uitkomsten van het modelleringsonderzoek en het VGO onderzoek is er behoefte om hier meer inzicht in te krijgen.

Dit onderzoeksproject richt zich op een evaluatie van de luchtkwaliteit in de leefomgeving in vee-dichte gebieden in Limburg. Het beoogt meer inzicht te verkrijgen in de kortdurende veranderingen over de tijd van een aantal componenten in de lucht die met veehouderij kunnen samenhangen. De nadruk ligt hierbij op ammoniak, secundair fijnstof dat hieruit gevormd wordt, en endotoxine.

Meer specifiek zijn de doelstellingen:

- Te onderzoeken in de leefomgeving in veehouderij dichte gebieden wat voorkomende concentraties en kortdurende variaties over de tijd zijn van half-uurs gemiddelde ammoniak-, ultra-fijnstof-, fijnstof- en 4-uurs gemiddelde endotoxine concentraties.
- Te onderzoeken wat voorkomende concentraties zijn van secundair fijnstofcomponenten in de PM_{2,5} stof fractie (24-uurs gemiddelde) in een gebied met veel veehouderij en een regionale achtergrondlocatie zonder nabije bron van ammoniak.
- Voor een groter aantal locaties, te onderzoeken of meerdaags gemiddelde ammoniak concentraties verschillen, en of het patroon over de tijd hiervan vergelijkbaar is tussen locaties.

Als neven-doelstelling is onderzocht óf het verloop over de tijd beïnvloed wordt door contrast in gemodelleerde veehouderij belasting, en door meteorologische condities.

De resultaten van dit onderzoek dragen bij aan een antwoord op de vraag óf en hoe de verschillende veehouderij gerelateerd luchtkwaliteitscomponenten veranderen over tijd en ruimte.

Leeswijzer

In hoofdstuk 2 worden de methoden kort beschreven. In de daarop volgende hoofdstukken worden de resultaten per gemeten component beschreven. In hoofdstuk 3 worden de resultaten beschreven van de ammoniakconcentraties voor alle meetstrategieën. In hoofdstuk 4 de resultaten van de PM_{2,5}

massa en secundair fijnstofcomponenten. In hoofdstuk 5 de resultaten van ultra-fijnstof metingen en de fijnstof deeltjesaantallen metingen. In hoofdstuk 6 komen de resultaten van de endotoxinemetingen aan bod. Binnen elk van de hoofdstukken worden de implicaties van de bevindingen beschreven.

2. AANPAK

Studie opzet

De temporele en ruimtelijke variatie van luchtverontreinigende stoffen uit de intensieve veehouderij werd onderzocht door een combinatie van elkaar aanvullende meetstrategieën:

- **Continue** metingen resulterend in half-uurs gemiddelde aantallen ultrafijnstofdeeltjes, aantallen deeltjes en ammoniak concentraties zijn op 2 locaties tegelijkertijd bemeten. Dit is uitgevoerd gedurende twee meetperioden. De eerste meetperiode liep van juni tot en met september 2017, de tweede meetperiode liep van half februari tot en met mei 2018. De metingen vonden plaats op twee locaties in Nederweert, één aan de rand van de woonkern (NeGu), en één in het buitengebied van Nederweert (NeHa).
- **Semi-continue** metingen resulterend in 4-uurs gemiddelde endotoxineconcentraties zijn eveneens uitgevoerd op bovenstaande locaties in Nederweert, en werden additioneel uitgevoerd bij nog twee andere gemeenten (Venray en Horst aan de Maas). In elke gemeente zijn twee locaties tegelijkertijd bemeten, waarbij de metingen binnen de verschillende gemeenten elkaar opvolgden. Dit is voor elke gemeente herhaald uitgevoerd gedurende twee perioden, éénmaal gedurende de periode juni 2017 tot februari 2018, en éénmaal in de periode februari 2018 tot en met juli 2018. Een overzicht wanneer welke locatie bemeten is staat in Tabel 2.
- **Daggemiddelde** metingen gericht op het bepalen van de PM_{2,5} massaconcentratie en secundair fijnstofcomponenten analyse werd uitgevoerd op de twee meetlocaties in Nederweert, en een regionale achtergrond meetlocatie in Maastricht (MaHo). De laatste meetlocatie is toegevoegd, omdat bij deze locatie geen grote ammoniak emissie bronnen aanwezig zijn. Dit is uitgevoerd gedurende twee meetperioden. De eerste meetperiode liep van juni tot en met september 2017, de tweede meetperiode liep van half februari tot en met mei 2018.
- **Meerdaags-gemiddelde** metingen van ammoniak concentraties werden tegelijkertijd uitgevoerd bij een tiental locaties, negen in de gemeente Nederweert, en één bij het landelijk meetnet luchtkwaliteit meetnetpunt in de Vredepeel (Vree). Dit is uitgevoerd gedurende twee meetperioden. De eerste meetperiode liep van juni tot en met september 2017, de tweede meetperiode liep van half februari tot en met mei 2018.

De twee locaties binnen elke gemeente zijn geselecteerd aan de hand van de veehouderijenmerken in de nabije omgeving. In elke gemeente is één locatie met een hoge dichtheid van veehouderij bedrijven in de omgeving, en één locatie met een lagere dichtheid van veehouderij bedrijven in de omgeving geselecteerd (zie ook onder selectie van meetlocaties). De additionele meetlocaties ten behoeve van het meerdaags-gemiddelde ammoniak ruimtelijk netwerk zijn verdeeld over een gebied rond de gemeente Nederweert geplaatst.

Selectie meetlocaties

Nederweert

De twee meetlocaties in Nederweert waar alle meetstrategieën op toegepast zijn werden geselecteerd aan de hand van de kaarten met gemodelleerde fijnstof bijdrage voor Weert die

beschikbaar gesteld werden door de Provincie. Met behulp van deze kaarten, informatie over de locatie van woonhuizen en visuele inspectie via *Google maps* en *Streetview* werden mogelijke meetlocaties geïdentificeerd in gebieden met contrasterende gemodelleerde bijdragen fijnstof door veehouderij. Daarbij moest genoeg ruimte aanwezig zijn om de meetapparatuur te plaatsen, en moesten elektriciteitsvoorzieningen beschikbaar zijn. Ook zijn van de gemeente voorstellen voor mogelijke meetlocaties verkregen. Bewoners zijn benaderd door medewerkers van het IRAS voor deelname, waarna twee contrasterende locaties zijn geselecteerd, één aan de rand van de woonkern, relatief laag belast met veehouderij, en één in het buitengebied, met in de directe nabijheid veehouderij.

Daarnaast is een klein ruimtelijk meetnet van passieve ammoniak (NH_3) metingen opgezet om inzicht te verkrijgen in de variatie in ammoniak concentraties naar tijd en plaats in een klein gebied. Naast de twee bovengenoemde locaties zijn een 7-tal andere locaties verspreid over de woonkern van Nederweert, en het direct aanliggende buitengebied geselecteerd. De veehouderij in de omgeving is in kaart gebracht aan de hand van het bestand veehouderij bedrijven (BVB) van de Provincie Limburg, in combinatie met *Streetview* om aanwezigheid van (lantaarn)palen te identificeren waar de monstername apparatuur aan bevestigd kon worden. Er is zorggedragen voor spreiding over het gebied, en spreiding in meest nabije diersoorten. Tegelijkertijd met de metingen in Nederweert is ammoniak met passieve monsternemers gemeten bij een locatie van het Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit (meetpunt in de Vredepeel), waar continue monitoring van ammoniak plaatsvindt met de miniDoas methode.

Venray

De twee meetlocaties in de gemeente Venray, waar semi-continue monstername van endotoxine heeft plaatsgevonden, zijn geselecteerd aan de hand van de BVB gegevens, in combinatie met bewonerslocaties. Ook hier werden relatief hoog en relatief laag belaste locaties geïdentificeerd en werden bewoners benaderd door medewerkers van het IRAS voor deelname.

Horst aan de Maas

Selectie van de meetlocaties in Horst aan de Maas ten behoeve van endotoxine metingen vond op vergelijkbare wijze plaats. Ook hier werden relatief hoog en relatief laag belaste locaties geïdentificeerd aan de hand van de BVB gegevens en werden bewoners benaderd door medewerkers van het IRAS voor deelname.

Maastricht

Aanvullend aan de daggemiddelde $\text{PM}_{2,5}$ metingen op de hoog- en laag-veehouderij belaste locaties in Nederweert, werd in Maastricht op een stadsachtergrond locatie (MaHo) tegelijkertijd metingen uitgevoerd. Deze locatie is onderdeel van het provinciaal meetnetwerk luchtkwaliteit van de Provincie Limburg, en bevindt zich niet nabij een bron van grootschalige veehouderij / ammoniak emissie, en niet nabij verkeersemisies¹.

Een overzicht van de veehouderij kenmerken rond de meetlocaties is gegeven in Tabel 1 en in meer detail voor diersoorten in bijlage 1. Een overzicht wanneer welke locatie bemeaten is voor welke studieonderdeelstaat in Tabel 2. Een ruimtelijke weergave van de gemeentes welke betrokken

¹ Het Provincie Limburg Meetnet is een aanvulling op het landelijk meetnet van het RIVM, zie <https://www.luchtmeetnet.nl/contact>

waren in het onderzoek staat weergegeven in Figuur 2, en een gedetailleerde weergave van de meetlocaties per gemeente is te vinden in Figuur 3.

Tabel 1. Overzicht van de betrokken meetlocaties in het onderzoek, onderverdeeld per gemeente, en de bijbehorende kenmerken van veehouderij in een straal van 500 of 1000m rond de meetlocatie. Voor iedere locatie is aangegeven wat voor soort locatie het betrof.

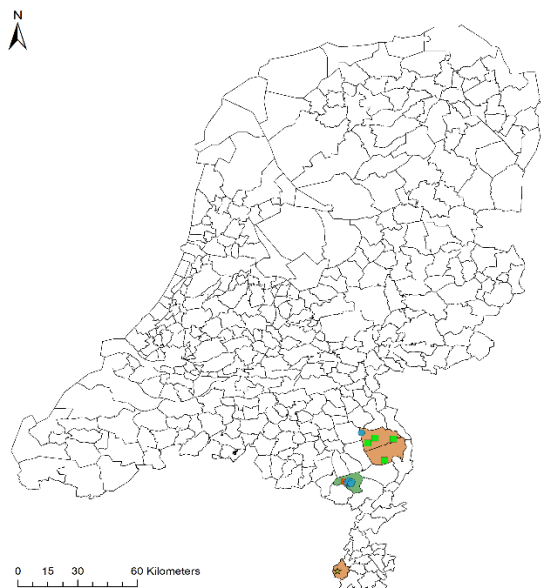
Gemeente	Locatie	Soort locatie [#]	afstand tot eerste veehouderij (in m)	in buffer 500m		in buffer 1000m		
				aantal bedrijven	aantal bedrijven	aantal NGE	FS emissie	NH3 emissie
Nederweert	NeHa	hoog	151	6	21	4060	31252	85601
	NeGu	laag	400	2	18	1993	14372	53858
	Ne-01	NH3 ruimtelijk	934	0	2	254	224	5185
	Ne-02	NH3 ruimtelijk	267	3	24	2310	20383	64140
	Ne-03	NH3 ruimtelijk	145	10	33	4501	39968	114230
	Ne-06	NH3 ruimtelijk	87	9	22	1872	12240	69255
	Ne-07	NH3 ruimtelijk	108	8	38	5453	51547	132081
	Ne-08	NH3 ruimtelijk	367	2	26	2594	8260	51754
	Ne-09	NH3 ruimtelijk	100	6	24	2753	11838	73253
Venray	VeIJs	hoog	424	3	22	4284	21594	79192
	VeLeu	laag	79	3	10	755	4433	20348
Horst a/d Maas	HoSe	laag	157	3	6	1189	3622	17956
	HoMe	hoog	165	4	13	2473	15402	37266
	Vree	LML	196	2	7	4093	4691	45528
Maastricht	MaHo	PML	1444	0	0	-	-	-

[#] soort meetlocatie: hoog= hoge veehouderij dichtheid rond de locatie, laag= lage veehouderij dichtheid rond de locatie, NH3 ruimtelijk= onderdeel van het meerdaags-gemiddelde ammoniak meetnetwerk, LML= locatie van het landelijk meetnet luchtkwaliteit, PML= locatie van het provinciaal meetnet luchtkwaliteit.

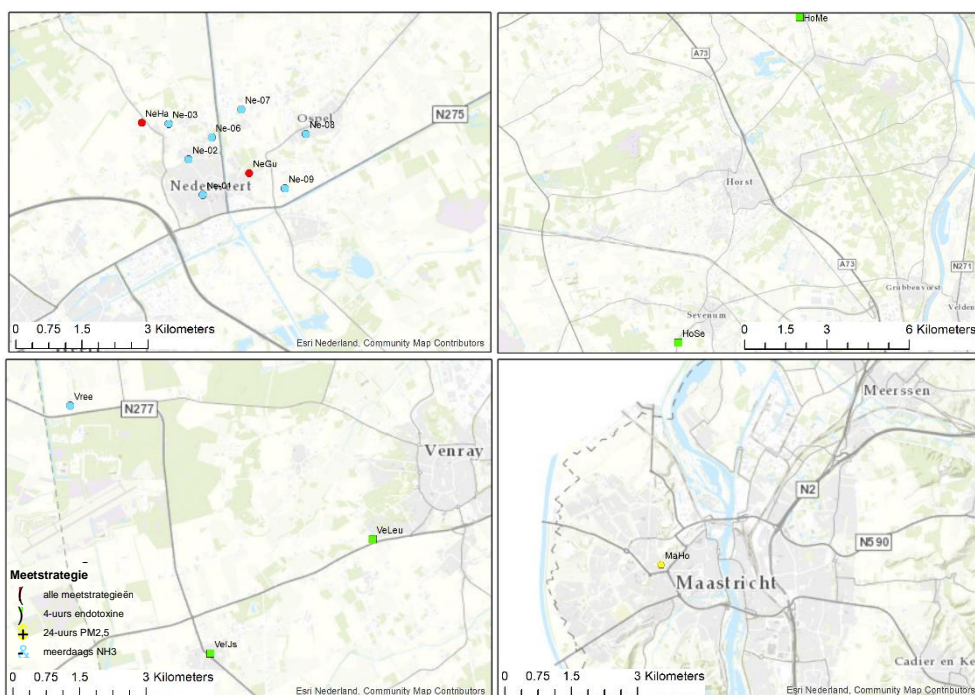
NGE=Nederlandse Grootte Eenheid (economische maat omvang agrarisch bedrijf). FS = fijnstof (PM₁₀). NH₃= ammoniak.

Tabel 2. Overzicht van meetstrategieën, betrokken meetlocaties per meetstrategie, en periode waarin monsternamen heeft plaatsgevonden op de meetlocaties.

Gemeente	Locatie	Continue metingen	Semi-continue metingen	Daggemiddelde metingen	Meerdaags-gemiddelde metingen
		Ammoniak, Ultrafijn stof, Fijnstof	Endotoxinen	PM _{2,5} massa, componenten	Ammoniak
Nederweert	NeHa	Juni – Sep 2017	Juni – Sep 2017	Juni – Sep 2017	Juni – Sep 2017
		Feb – Mei 2018	Feb – Mei 2018	Feb – Mei 2018	Feb – Mei 2018
	NeGu	Juni – Sep 2017	Juni – Sep 2017	Juni – Sep 2017	Juni – Sep 2017
		Feb – Mei 2018	Feb – Mei 2018	Feb – Mei 2018	Feb – Mei 2018
Ne-01 t/m NE-09					Juni – Sep 2017 Feb – Mei 2018
Venray	VeIJs		Dec 2017		
			Juni 2018		
	VeLeu		Dec 2017		
			Juni 2018		
Vree					Juni – Sep 2017 Feb – Mei 2018
Horst a/d Maas	HoSe		Jan/Feb 2018		
			Jun/jul 2018		
	HoMe		Jan/Feb 2018		
			Jun/jul 2018		
Maastricht	MaHo			Juni – Sep 2017 Feb – Mei 2018	



Figuur 2. Overzicht van de deelnemende gemeenten in het onderzoek. Bij oranje gekleurde gemeenten is één van de meetstrategieën toegepast (Maastricht, Venray, Horst aan de Maas). In Nederweert (groen gearceerd) zijn alle meetstrategieën uitgevoerd



Figuur 3. Detailoverzicht van de ligging van de meetlocaties per gemeente, waarbij per locatie aangegeven is welke meetstrategie van toepassing is.

Meetmethoden

Continue metingen - ammoniak

Continue ammoniakconcentraties op leefniveau (NH_3) werd bepaald op basis van een chemisch luminescentie principe met de HORIBA NO_x Analyzer model APNA 370_ NH_3 converter (HORIBA Instruments Incorporated (Irvine Facility), Irvine California, USA). Dit is uitgevoerd door ISSEP (*Institut Scientifique de Service Public*, België). Dit toestel meet NH_3 via chemiluminescentie na thermische conversie (820°C). In verschillende cycli worden NO , NO_x en totaal stikstof gemeten,

waaruit dan NH₃ concentratie wordt berekend. De lucht werd bemonsterd boven het dak van de ISSEP-meetwagen en via een leiding naar het toestel in de meetwagen gebracht. Concentraties in µg/m³ werden voor een interval van 30 minuten opgeslagen.

Continue metingen - ultrafijnstof stofdeeltjes (UF)

Continue metingen van ultrafijnstof (UF) werd bepaald met een zogenaamde Scanning Mobility Particle Size Spectrometer (SMPS, TROPOS-SMPS, *Leibniz Institute for Tropospheric Research*, Leipzig, Germany). Deze metingen werden uitgevoerd door ISSEP. Het meetprincipe van de SMPS is gebaseerd op de mobiliteit van elektrisch geladen deeltjes. Nadat de lucht bemonsterd is, worden de deeltjes in de lucht elektrisch geladen met behulp van een bipolaire diffusielader. Daarna wordt de grootte van de deeltjes geclassificeerd aan de hand van de elektrische mobiliteit die de deeltjes vertonen in het elektrische veld van een cilindrische condensator, waarna een deeltjesteller het aantal aerosol-deeltjes telt. De gebruikte SMPS was uitgerust met een TSI 3772 *Condensation Particle Counter (CPC)*, die de deeltjes aantal concentratie meet. De SMPS meet daarmee het aantal UF stofdeeltjes in de lucht en geeft daarnaast ook een klassenverdeling van de deeltjesgrootte. Aantallen deeltjes per cm³ lucht werden met een interval van 30 minuten verkregen voor de volgende klassen:

Klasse	Omschrijving
UF10-20	UF deeltjes van 10-20nm grootte
UF20-30	UF deeltjes van 20-30nm grootte
UF30-50	UF deeltjes van 30-50nm grootte
UF50-100	UF deeltjes van 50-100nm grootte
UF100-200	(U)F* deeltjes van 100-200nm grootte
UF200-500	(U)F* deeltjes van 200-500nm grootte
UF500+	(U)F* deeltjes van 500nm grootte en groter

* officieel omvat ultrafijnstof alleen het bestanddeel van fijnstof met een afmeting kleiner dan 0,1 micrometer (µm) ofwel 100 nanometer (nm).

Continue metingen - fijnstof stofdeeltjes (FS)

De term 'fijn stof' wordt vaak gebruikt om deeltjes met een afmeting kleiner dan 10 micrometer aan te duiden, afgekort tot PM₁₀. Aantallen deeltjes fijnstof en de deeltjesgrootteverdeling van deeltjes groter dan ultrafijnstof (>0,1 µm) werd gemeten met een stofspectrometer waarvan het werkingsprincipe is gebaseerd op lichtverstrooiing. De stofspectrometer (*Grimm instrument, Grimm Aerosol Technik GmbH & Co., Ainring, Germany*) bepaalde het aantal deeltjes in 31 grootteklassen met de volgende ondergrenzen (in µm): GR001 0,25 µm; GR002 0,28 µm; GR003 0,30 µm; GR004 0,35 µm; GR005 0,40 µm; GR006 0,45 µm; GR007 0,50 µm; GR008 0,58 µm; GR009 0,65 µm; GR010 0,70 µm; GR011 0,80 µm; GR012 1,0 µm; GR013 1,3 µm; GR014 1,6 µm; GR015 2,0 µm; GR016 2,5 µm; GR017 3 µm; GR018 3,5 µm; GR019 4 µm; GR020 5 µm; GR021 6,5 µm; GR022 7,5 µm; GR023 8,5 µm; GR024 10 µm; GR025 12,5 µm; GR026 15 µm; GR027 17,5 µm; GR028 25 µm; GR029 28 µm; GR030 30 µm; GR031 > 32 µm. Aantallen deeltjes per cm³ lucht in de verschillende klassen werden voor een interval van 30 minuten opgeslagen. Met deze methode wordt officieel niet alleen fijnstof gemeten (PM₁₀, deeltjesklassen GR001 tot en met GR023), maar wordt ook informatie verzameld over deeltjes van grotere omvang (>PM₁₀; deeltjesklassen GR024 en hoger). In de rapportage maken we hierin geen onderscheid en refereren hiernaar als fijnstof stofdeeltjes.

Semi-continue metingen - endotoxinen

Omdat bekend is dat endotoxine meer voorkomt in grotere stofdeeltjes (Erbrink et al., 2016) wordt de endotoxine concentratie in totaalstof monsters bepaald en niet in PM₁₀ stofmonsters. Endotoxineconcentraties in de lucht werden bepaald middels totaalstof monsternamen gevolgd door het bepalen van de hoeveelheid endotoxine in het stof met behulp van de Limulus Amebocyte Lysate (LAL)-assay. Totaalstof omvat al het zwevend stof in de lucht ongeacht de deeltjesgrootte. Totaalstof werd bemonsterd voor achtereenvolgende 4-uurs meetperioden met behulp van een Derenda PNS 18T-DM-6.1 automatische stofmonsternamen uitgerust met een totaalstof monsternamen kop conform de beschrijving in de standaard van de Duitse vereniging voor ingenieurs VDI2463 blatt 8. (Comde-Derenda GmbH, Stahnsdorf, Germany). Zwevend stof in de lucht wordt hierbij verzameld op een glasvezel filter (Whatmann GF/A, Whatmann Inc). Na extractie in 5 ml pyrogeenvrij water met 0.05% Tween20, werd de hoeveelheid endotoxine in het extract bepaald met behulp van een kinetisch chromogene LAL-assay (Lonza, Basel, Zwitserland) zoals beschreven in de internationale standaard voor endotoxine metingen EN14031 met verdere specificatie van de meetmethode en meetprocedures volgens de aanbevelingen van Spaan e.a. (2008). Endotoxine concentraties uitgedrukt in Endotoxine Units (EU) per m³ met een interval van 4 uur werden verkregen.

Daggemiddelde metingen - PM_{2,5} massaconcentraties

Daggemiddelde PM_{2,5} metingen werden verzameld met behulp van een Leckel SEQ47/50 automatische monsternamen uitgerust met een PM_{2,5} monsternamen kop (Sven Leckel GMHB, Berlin, Germany). Stofdeeltjes met een nominale diameter van 2,5 µm werden verzameld op Quartz filters (Pall Laboratory, Portsmouth, Verenigd Koninkrijk). De monsternamen en de weging van de filters voor- en na monsternamen werd uitgevoerd door het luchtkwaliteit laboratorium van de Provincie Limburg (later omgevingsdienst Limburg). PM_{2,5} massaconcentraties uitgedrukt in microgram per m³ lucht werden verkregen met een interval van 24 uur.

Daggemiddelde metingen – secundair fijnstofcomponenten analyse

De filters verzameld voor het bepalen van daggemiddelde PM_{2,5} massaconcentratie werden na de wegingen gekoeld getransporteerd naar het IRAS Universiteit Utrecht. De filters zijn onderzocht op de aanwezigheid van een aantal componenten van fijnstof te weten: chloride, nitraat, sulfaat en ammonium. Chloride is een maat voor de aanwezigheid van zout. Secundair fijnstof deeltjes bestaan voornamelijk uit ammoniumsulfaat en ammoniumnitraat, deze worden in de lucht gevormd uit ammoniak (NH₃), stikstofoxiden (NO_x), zwaveldioxide (SO₂). Deze fijnstofcomponenten in het stof op het filter werden bepaald met behulp van chemische en ion-chromatografische analyses volgens de methodiek zoals eerder beschreven in Brunekreef e.a. (2005). Filters werden voor analyse geëxtraheerd in 20ml ultrapuur water. De negatief geladen anionen (sulfaat, nitraat, nitriet, en chloride) zijn bepaald met behulp van een Dionex DX100 ion chromatograaf uitgerust met een Dionex Ionpac AS14A column. Het positief geladen ammonium (NH₄⁺) ion is in het extract bepaald met behulp van een chemische analyse, de zogenaamde Berthelot reactie. Ammonium reageert met fenol en natrium hypochloriet, en vormt indophenol als reactieproduct wat middels absorptie gemeten bij 635 nm wordt bepaald. De daggemiddelde concentratie van anionen en ammonium wordt uitgedrukt in microgram per m³ lucht.

Meerdaags gemiddelde metingen – ammoniak

Meerdaags gemiddelde ammoniak (NH₃) metingen vonden plaats met behulp van de Radiello© passieve ammoniak sampler zoals ook toegepast in het Amerikaanse ammoniak netwerk (Puchalski

et al. 2011) (<http://nadp.slh.wisc.edu/amon/>). Deze passieve sampler bestaat uit een cilindrische huls van een diffusie membraan, met daarin een absorptie oppervlak bestaande uit polyethyleen geïmpregneerd met fosforzuur. Gasvormig ammoniak uit de lucht zal door het diffusie membraan heen diffunderen en geabsorbeerd worden als ammoniumionen op het absorptieoppervlak. Deeltjesvormige ammoniumzouten in de lucht kunnen het diffusie membraan niet passeren. De hoeveelheid geabsorbeerd ammonium werd bepaald met behulp van een chemische analyse (Berthelot reactie, zie hierboven). Deze passieve samplers werden afwisselend gedurende 3 of 4 dagen blootgesteld, resulterend in 3 of 4-daagsgemiddelde ammoniak concentraties uitgedrukt in microgram per m³ lucht.

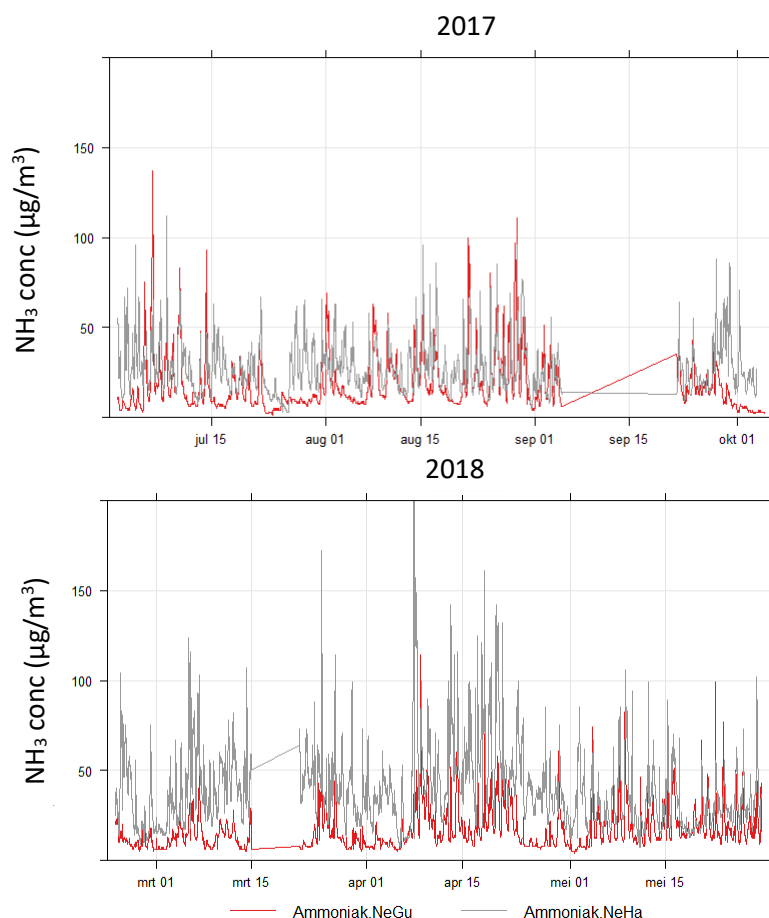
Gegevensanalyse

De gegevens zijn geanalyseerd met behulp van R en SAS versie 9.4 (*Statistical Analytical Software*) (R Core Team. R: A language and environment for statistical computing. *R Foundation for Statistical Computing*, Vienna, Austria. [Internet]. 2018 [cited 2019 May 17] en beschikbaar via: <https://www.r-project.org/>). Vergelijking van meetlocaties zijn veelal gebaseerd op een volledige set gegevens, dus als informatie mist voor één van de twee tegelijkertijd bemeten locaties, dan zijn de gegevens voor de wel bemeten locatie niet betrokken in de gegevensanalyse. Voor alle bemeten componenten zijn tijdserie plots gemaakt en zijn polar plots geconstrueerd met behulp van R en *openair package* (Carslaw, D. C. and K. Ropkins, (2012) *openair* --- an R package for air quality data analysis. *Environmental Modelling & Software*. Volume 27-28, 52-61), waarbij bij middeling over de tijd de windsnelheid gebaseerd is op de vector windsnelheid. Pearson correlatie tussen gemeten componenten zijn bepaald.

3. Ammoniak

Verloop van ammoniak concentraties over de tijd

Het verloop van de half uursgemiddelde ammoniak concentraties op de twee meetlocaties (NeHa en NeGu) in Nederweert gedurende de meetperiodes in 2017 en 2018 is weergegeven in Figuur 4. Er wordt een duidelijk verschil in concentraties waargenomen tussen de twee meetlocaties. De ammoniak concentraties zijn in het algemeen hoger op de locatie met veel veehouderij in de nabijheid (NeHa), dan op de locatie met minder veehouderij in de nabijheid (NeGu). Piekconcentraties ammoniak zijn in de meetperiode van 2017 in het algemeen lager dan in de meetperiode van 2018.

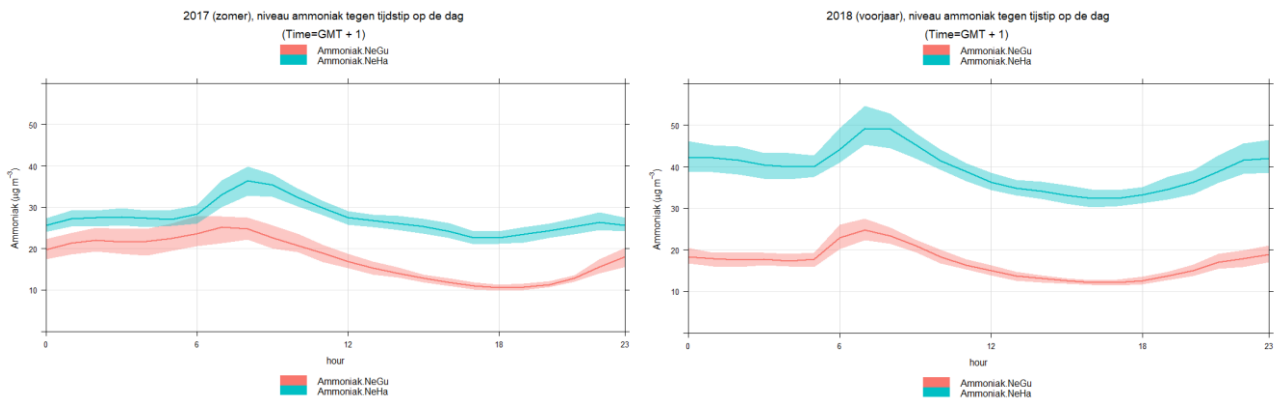


Figuur 4. Verloop van half-uursgemiddelde ammoniak concentraties over de tijd op de twee locaties in Nederweert. NeHa = veel veehouderij nabij NeGu= minder veehouderij nabij.

Verloop van ammoniakconcentraties over de dag

Het gemiddelde concentratiepatroon over de dag is vergelijkbaar voor de twee locaties, met een stabiel niveau gedurende de nacht, gevolgd door een toename in de vroege ochtend en een afname gedurende de dag (zie Figuur 5). Verschillende processen zoals emissies van ammoniak uit agrarische bronnen, meteorologische omstandigheden (temperatuur, relatieve vochtigheid, windsnelheid, etc) en chemische processen waarbij het ammoniak omgezet wordt in deeltjes spelen een rol. Het samenspel tussen deze processen is bepalend voor de uiteindelijke ammoniak concentratie en de

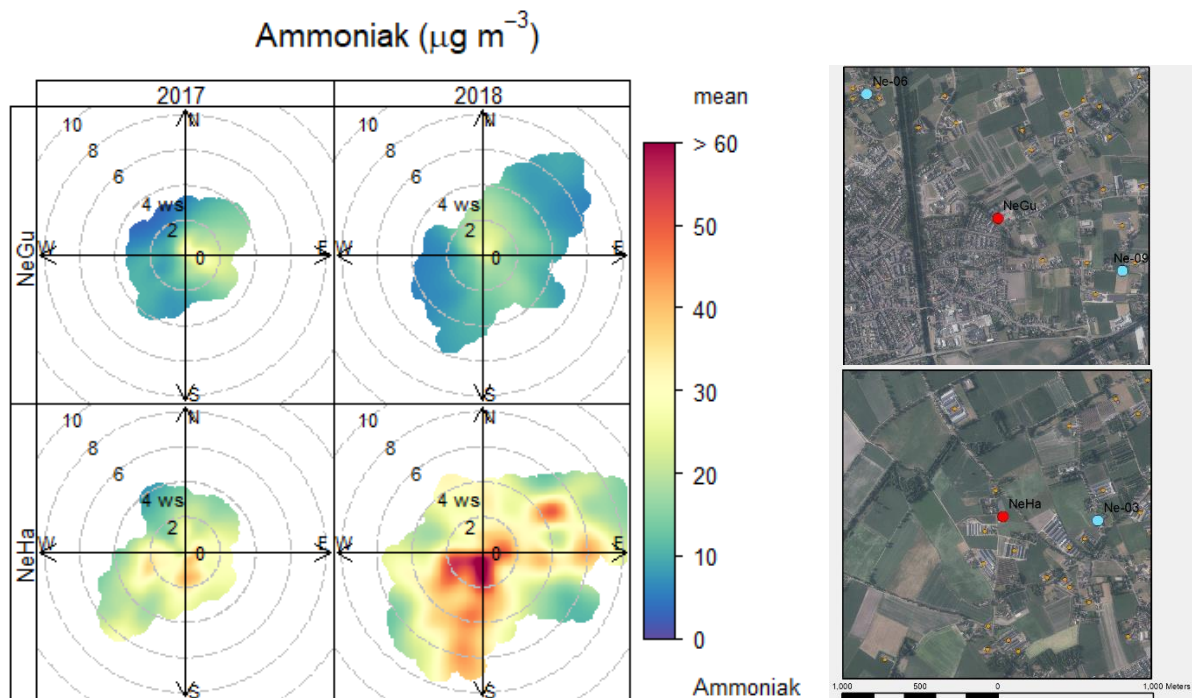
dagelijkse patronen op een locatie. Absolute ammoniak concentraties zijn met name voor de locatie dicht bij de veehouderij in 2018 tijdens de metingen in het voorjaar beduidend hoger dan in de zomer van 2017.



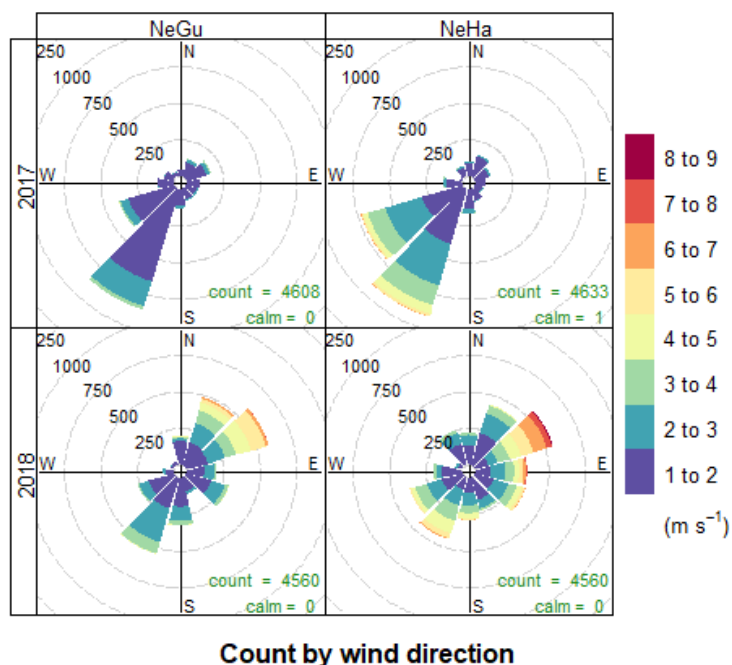
Figuur 5. Gemiddeld dagpatroon van ammoniak concentraties voor de meetperiode in 2017 en 2018 op de beide locaties. De tijd komt overeen met het begin van het tijdslot.

Invloed van bronnen

Het verschil in de zogenaamde polarplots van beide locaties, waarbij de half uursgemiddelde ammoniak concentratie op een meetlocatie uitgezet wordt in relatie met de windrichting en windsnelheid ten tijde van de metingen laten de invloed zien van enkele lokale bronnen nabij de NeHa meetlocatie (zie Figuur 6). De verhoogde ammoniak concentraties ten zuiden en ten oosten en noord-oosten van de meetlocatie met een hoge veehouderijdichtheid bij hogere windsnelheden zijn indicatief voor de invloed van lokale bronnen. Verder blijkt voor beide locaties dat bij lage windsnelheden de hoogste ammoniakconcentraties voorkomen. Dit is te verwachten omdat bij lage windsnelheden minder vermenging en verspreiding kan plaatsvinden. De waarneming dat in het algemeen concentraties gedurende de meetcampagne in 2017 lager zijn dan gedurende de meetcampagne in 2018 heeft naar alle waarschijnlijkheid te maken met de duidelijk verschillende meteorologische condities tijdens de respectievelijk meetperiodes (zie Figuur 7). Ook wanneer 24-uurs gemiddelde ammoniak concentraties geplot worden blijft de broninvloed zichtbaar (zie bijlage 2).



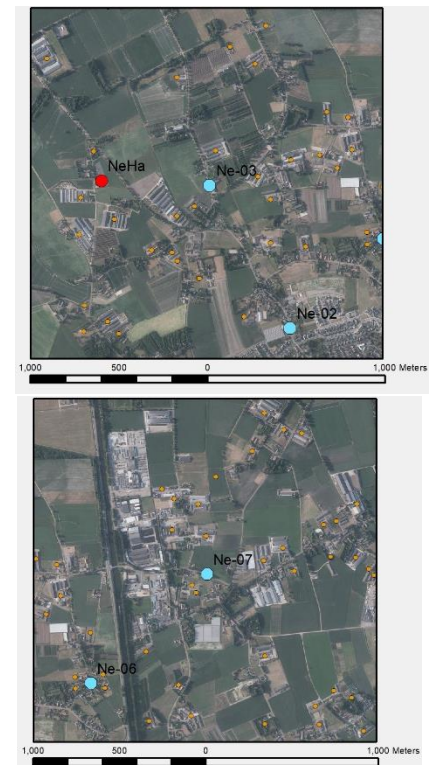
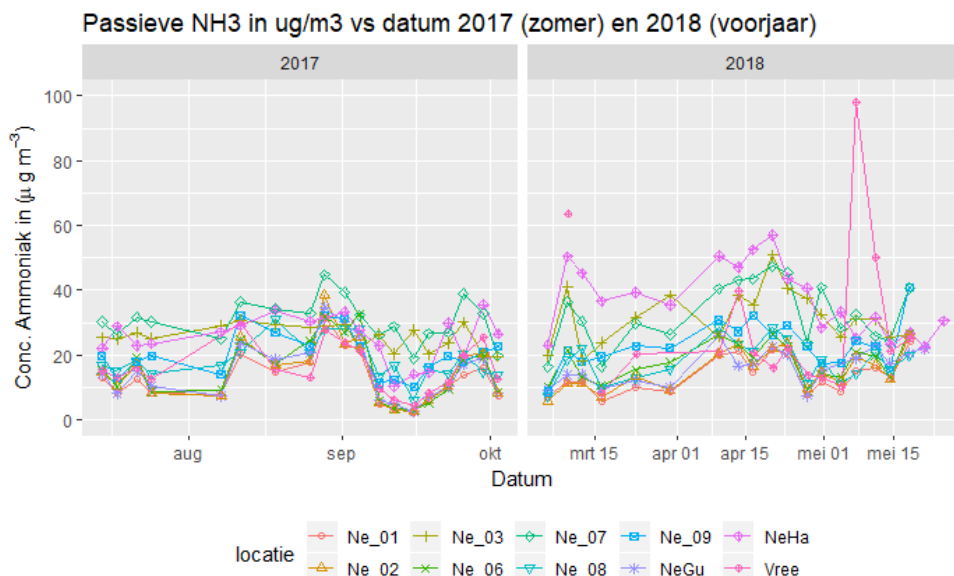
Figuur 6. Gemiddelde ammoniakconcentraties op de twee meetlocaties in Nederweert in relatie tot windrichting en windsnelheid. Het patroon suggereert de invloed van één of enkele bronnen op de waargenomen ammoniak concentraties bij de NeHa meetlocatie, met name ten zuiden en ten oosten van de meetlocatie. Een detail van de ligging van de meetlocaties (rode dot) met omringende veehouderij (bruine dots) is bijgevoegd.



Figuur 7. Frequentie van windrichting en windsnelheid tijdens de meetperiodes in 2017 en 2018 op de twee locaties.

Ammoniak concentraties in ruimte en tijd

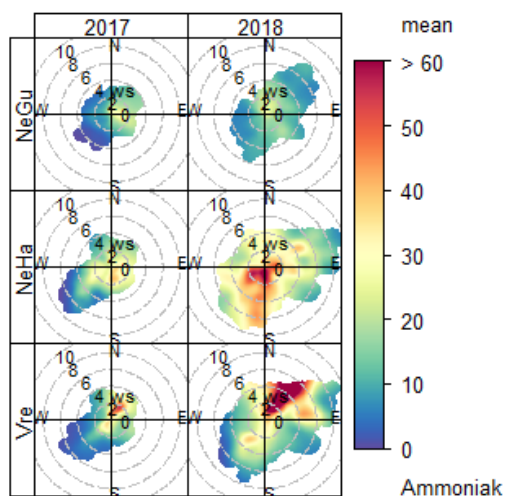
De drie/vier-daagsgemiddelde passief gemeten ammoniak concentraties van 9 locaties in Nederweert en het landelijk meetnetpunt in Vredepeel vertonen in 2017 een vergelijkbaar verloop over de tijd (zie Figuur 8). Bij enkele locaties (NeHa, Ne-03 en Ne-07) worden stelselmatig hogere ammoniak concentraties waargenomen, wat impliceert dat ruimtelijke contrasten in ammoniakconcentraties aanwezig zijn. In 2018 is het verloop over de tijd grilliger. In Nederweert is het verloop van de ammoniakconcentraties over de tijd redelijk vergelijkbaar voor de verschillende locaties, waarbij wederom verschillen tussen locaties worden waargenomen. Vooral bij de Vredepeel (Vre) locatie worden hoge ammoniak concentraties waargenomen die bij de andere locaties niet voorkomen. Het afwijkend patroon van de ammoniak concentraties bij de Vredepeel wordt veroorzaakt door een andere ligging van de lokale bronnen ten opzichte van de meetlocatie, en daarmee een andere invloed van de lokale bronnen afhankelijk van de meteorologische omstandigheden (zie de polarplot in Figuur 9). Gemiddelde passief gemeten ammoniakconcentraties op de locaties hangen samen met de afstand gewogen som van de ammoniak emissie van veehouderij in een straal van 1000m rond de meetlocaties (zie



Figuur 10).

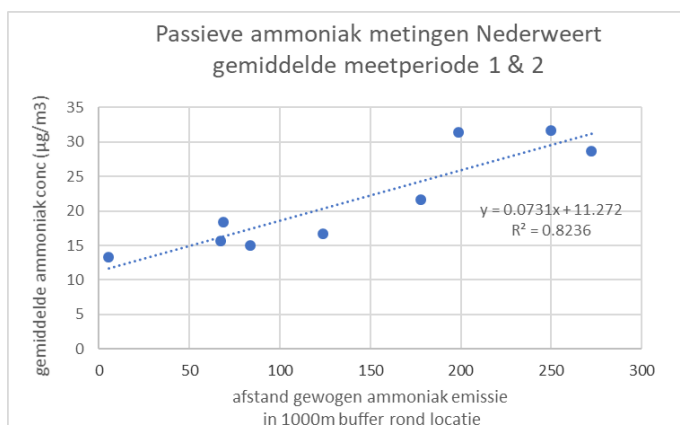
Figuur 8. Verloop van drie-/vierdaags-gemiddelde ammoniakconcentraties op de negen meetlocaties in Nederweert en de LML meetlocatie Vredepeel over de tijd voor de meetperiode in 2017 en 2018. De ligging van de meetlocaties waarbij hogere ammoniakconcentraties worden waargenomen (NeHa, Ne-03, Ne-07) met omliggende veehouderij zijn bijgevoegd.

Ammoniak actieve data in $\mu\text{g}/\text{m}^3$
opmerking: winddata 'vre' afkomstig van NeHa-data



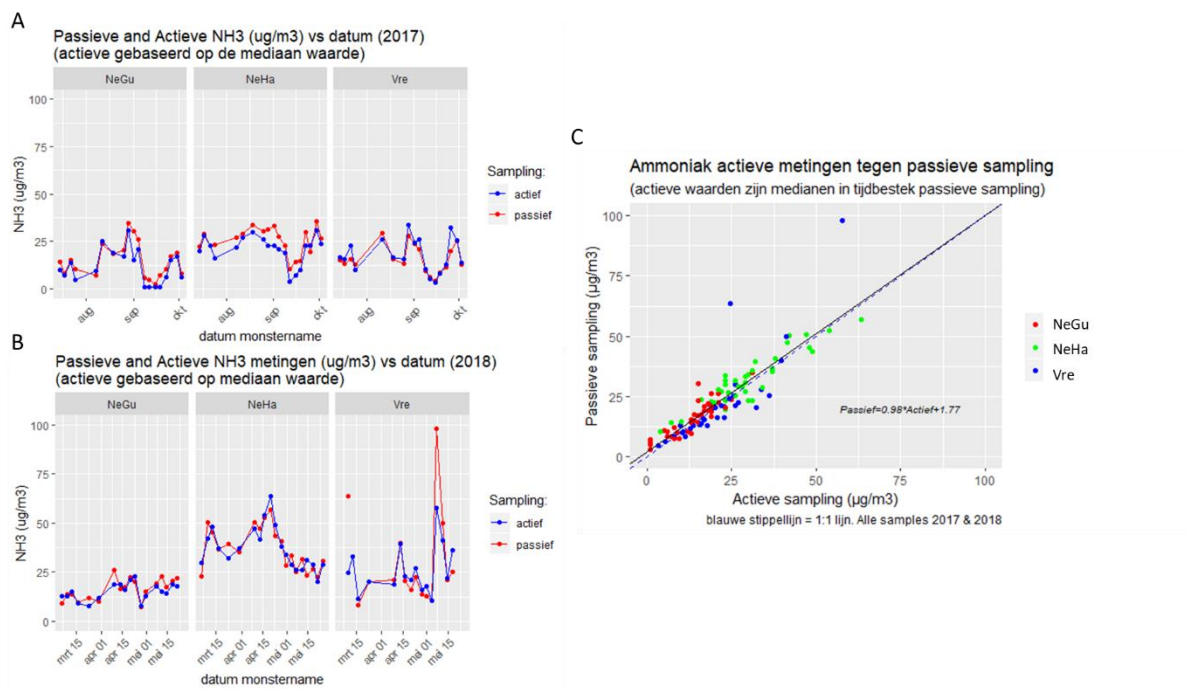
Figuur 9. Polarplot van ammoniakconcentraties op de meetlocaties in Nederweert en LML meetlocatie Vredepeel² voor de meetperiode in 2017 en 2018 laten zien dat de dominante lokale bronnen voor de locatie NeHa en Vre bij verschillende windrichtingen invloed hebben op de op het meetpunt gemeten concentratie.

Figuur 10. Gemiddelde passief gemeten ammoniakconcentraties op de locaties in Nederweert hangen samen met de som van ammoniakemissie in een 1000m buffer rond de meetlocatie, waarbij rekening gehouden wordt met de afstand tussen de bron van de emissie tot de meetlocatie.



De medianen van de actieve half uurs / uurs-concentraties zijn ook berekend over een langere middelingstijd, de middelingstijd die is gehanteerd voor de monstername periode van de passieve monstername, ter vergelijking van het verloop over de tijd van de passief gemeten concentraties en de actief gemeten concentraties. Vervolgens zijn de uitkomsten uitgezet per monstername locatie over de tijd samen met de passief gemeten concentraties. De passief gemeten ammoniakconcentraties volgen goed het verloop van de actief gemeten ammoniakconcentraties op de locaties. Dit is ook terug te zien in de scatter-plot van actieve versus passieve ammoniak concentraties, waarbij de afwijking van de identiteitslijn ($X=Y$) in het algemeen vrij klein is (Figuur 11).

² Ammoniakconcentraties op het LML station Vredepeel zijn bepaald met de miniDoas.



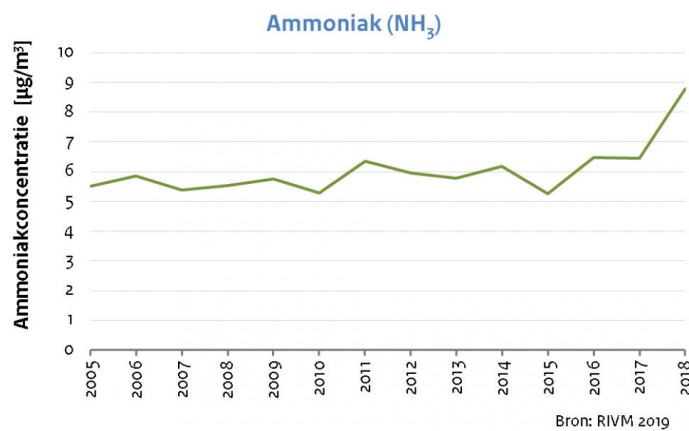
Figuur 11. Vergelijking van passief en actief gemeten ammoniakconcentraties. Panels A en B vertonen het verloop over de tijd van de drie/vier-daagsgemiddelde ammoniakconcentraties uitgezet tegen de mediaan van de actief gemeten ammoniakconcentraties gedurende dezelfde tijdsperiode. De plot in panel C laat zien dat passief en actief gemeten ammoniakconcentraties goed overeenstemmen over de hele concentratie range.

Implicaties

Resultaten wijzen op een bijdrage van lokale bronnen aan ammoniak concentraties in de lucht. Dit is met name goed waar te nemen voor de continue metingen, waarbij pieken in concentraties opgepikt worden afhankelijk van de ligging van de veehouderijbedrijven ten opzichte van de meetlocaties in combinatie met de windrichting en windsnelheid. Bij passieve monsternamen, waarbij er gedurende langere tijd bemonsterd wordt, worden hogere concentraties uitgemiddeld, waardoor verschillen over de tijd afvlakken. Toch zijn er nog wel verschillen over de tijd en tussen locaties waar te nemen bij de passief gemeten ammoniakconcentraties. Ook nu blijken lokale bronnen ruimtelijke verschillen in ammoniakconcentraties te veroorzaken als gevolg van de nabijheid van veehouderijbedrijven. De passief gemeten ammoniakconcentraties zijn geassocieerd met de ammoniakemissie van veehouderijbedrijven in een straal van 1000m rond de meetlocaties.

De ammoniakconcentraties in de lucht van het Meetnet Ammoniak in Natuurgebieden (MAN) van het RIVM waren in 2018 eveneens hoger dan in 2017 (zie Figuur 12). Dit werd verondersteld te komen doordat 2018 warm, zonnig en zeer droog was, waardoor ammoniak uit mest kon verdampen, die door een tekort aan regen niet neersloeg (<https://www.rivm.nl/nieuws/ammoniakmetingen-in-2018>). Het lijkt dus aannemelijk dat de

meteorologische omstandigheden tijdens de meetperiodes de waargenomen verhoogde ammoniak concentraties in 2018 verklaart.



Figuur 12 Trend in lucht concentraties ammoniak in het meetnet ammoniak natuurgebieden (MAN) van het RIVM. Bron: <https://www.rivm.nl/nieuws/ammoniakmetingen-in-2018>

Er zijn weinig studies waarin gedurende langere tijd in de leefomgeving ammoniakconcentraties in de lucht zijn bepaald. In een studie uitgevoerd in 2001 werden jaargemiddelde ammoniak concentraties bepaald voor locaties in een grid over Nederland met behulp van passieve samplers (Van Pul et al. 2004). Jaargemiddelde ammoniak concentraties waren hoger bij locaties die op minder dan 50 meter van een veehouderij gelegen waren, dan bij locaties waarbij de afstand tot een veehouderij groter was. Jaargemiddelde concentraties tot $27 \mu\text{g}/\text{m}^3$ werden gerapporteerd voor de locaties nabij een veehouderij (Van Pul et al., 2004). In de huidige studie varieerden gemiddelde concentraties op de hoger belaste locaties tussen de 22 en $25 \mu\text{g}/\text{m}^3$, concentraties voor de lager belaste locaties varieerden tussen de 10 en $17 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Omdat de passieve monsternamen methode een onderschatting van ammoniak concentraties laat zien bij hogere ammoniak piekconcentraties zullen ruimtelijke verschillen in ammoniak concentraties tussen locaties mogelijk in werkelijkheid groter zijn.

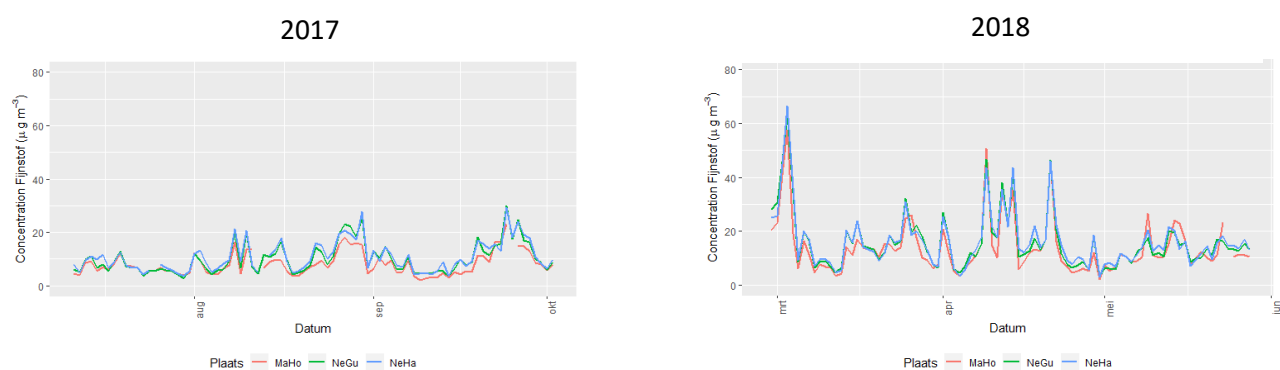
In een studie in Duitsland varieerden gemiddelde jaargemiddelde ammoniakconcentraties voor omwonenden van veehouderij bedrijven tussen de 16 en $24 \mu\text{g}/\text{m}^3$. In deze studie hadden omwonenden met hogere blootstelling aan ammoniak ($> 19,7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ versus lager) vaker een sensitiviteit tegen algemeen voorkomende allergenen, en verhoogde blootstelling aan ammoniak was tevens geassocieerd met een lagere longfunctie (Schulze et al. 2011). In een Amerikaanse studie en in Nederland in de VGO studie zijn relaties met veranderingen over de tijd in ammoniakconcentraties bestudeerd. De longfunctie was verminderd volgend op dagen met verhoogde ammoniakconcentraties (Loftus, Yost, Sampson, Torres, et al. 2015; Borlee, Yzermans, Aalders, et al. 2017). In de studies van Borlee e.a. en van Kersen e.a. werd de ammoniakconcentratie afgeleid van de monitoringsgegevens op een beperkt aantal locaties in het studiegebied. De bevindingen van de huidige studie suggereren dat de temporele trend op woonlocaties deels afhankelijk is van de lokale bronnen in een omgeving. Dit is bij de studie van Loftus en Schulze ondervangen door een combinatie van bepaling van ammoniak op meerdere locaties in combinatie met modellering, waardoor lokale ammoniakconcentraties beter geschat worden (Loftus et al., 2015; Schulze et al., 2011).

4. PM_{2,5} massa en secundair fijnstofcomponenten

PM_{2,5} massaconcentratie

Verloop over de tijd

Het verloop van PM_{2,5} massaconcentraties over de tijd is zeer vergelijkbaar voor de drie meetlocaties waar dag-gemiddelde PM_{2,5} metingen uitgevoerd zijn (zie Figuur 13). Wel zijn er in beide jaren perioden te identificeren waar de stofconcentraties voor de locaties in Nederweert hoger zijn dan de concentraties in Maastricht. Dit resulteert erin dat gemiddelde PM_{2,5} concentraties in NeGu en NeHa significant hoger dan in MaHo (gepaarde t-toets, $p < 0.05$), en ook op de locatie NeHa wordt een enigszins verhoogde concentratie ten opzichte van de andere locatie in Nederweert gemeten (gepaarde t-toets, $p < 0.05$; zie Tabel 3).



Figuur 13. Verloop van daggemiddelde PM_{2,5} massaconcentraties over de tijd op de meetlocaties in Nederweert (NeHa en NeGu) en Maastricht (MaHo). Concentraties gemeten in de gemeente Nederweert (NeHa en NeGu) zijn over het algemeen hoger dan in de gemeente Maastricht.

Tabel 3. Overzicht van gemiddelde, mediaan en 25- en 75 percentiel waarde van de daggemiddelde PM_{2,5} massaconcentraties gedurende de twee meetperiodes in 2017 en 2018 zoals gemeten op de verschillende meetlocaties.

Locatie	PM _{2,5} massaconcentraties (µg/m ³)								
	2017&2018	2017				2018			
	Gemiddelde	Gemiddelde	Mediaan	Q25 ¹	Q75 ¹	Gemiddelde	Mediaan	Q25 ¹	Q75 ¹
MaHo	11.2	8.14	6.89	5.03	9.67	14.00	11.20	7.72	16.03
NeGu	13.1 ^a	10.08	8.26	5.85	12.65	15.91	13.38	8.94	18.15
NeHa	13.7 ^{a, b}	10.80	9.25	6.71	13.59	16.28	14.15	9.52	18.62

¹ Q25 = 25 percentiel waarde, Q75= 75 percentiel waarde

^a significant afwijkend van concentraties op de locatie MaHo, gepaarde t-toets, $p < 0.05$

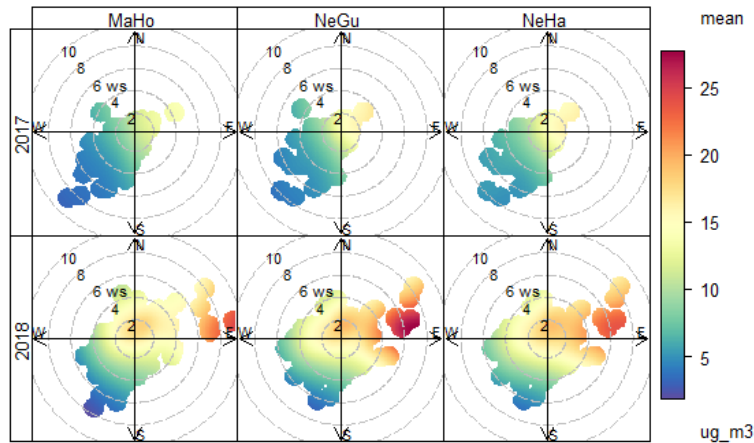
^b significant afwijkend van concentraties op de locatie NeGu, gepaarde t-toets, $p < 0.05$

Invloed van bronnen

De polarplot van de drie locaties, waarbij de 24-uursgemiddelde PM_{2,5} massaconcentratie op een meetlocatie uitgezet wordt afhankelijk van windrichting en windsnelheid ten tijde van de metingen,

is zeer vergelijkbaar voor alle drie de locaties. Dit suggereert dat de hogere PM_{2,5} massaconcentraties in Nederweert ten opzichte van Maastricht niet direct door een lokale bron veroorzaakt wordt, maar meer het gevolg is van een combinatie van bronnen in de omgeving van de meetlocaties (zie Figuur 14).

Polarplot PM_{2,5} massaconcentratie gebaseerd op KNMI windgegevens



Figuur 14. Polarplot van PM_{2,5} massaconcentraties op de meetlocaties in Nederweert en Maastricht voor de meetperiode in 2017 en 2018 laten geen invloed zien van dominante lokale bronnen.

(Secundair) fijnstofcomponenten

Verloop over de tijd

Het verloop van fijnstofcomponenten over de tijd is zeer vergelijkbaar voor de drie meetlocaties waar de metingen zijn uitgevoerd (zie Figuur 15). In het algemeen zijn met name de concentraties van de secundair fijnstofcomponenten (ammonium, sulfaat en nitraat) hoger voor de locaties in Nederweert dan de concentraties in Maastricht (gepaarde t-toetsen $p < 0.05$, zie Tabel 4).

Concentraties zijn circa 30% verhoogd ten opzichte van op de achtergrondlocatie in Maastricht.

2017

2018



Figuur 15. Verloop van fijnstofcomponenten over de tijd op de meetlocaties in Nederweert (NeHa en NeGu) en Maastricht (MaHo): A) chlorideconcentraties, B) nitraatconcentraties, C) sulfaatconcentraties, D) ammoniumconcentraties. Het verloop over de tijd is zeer vergelijkbaar voor de locaties. Concentraties gemeten in de gemeente Nederweert (NeHa en NeGu) zijn over het algemeen hoger dan op de achtergrondlocatie in de gemeente Maastricht, met uitzondering van de chlorideconcentraties.

Tabel 4. Overzicht van gemiddelde, mediaan en 25- en 75 percentiel waarde van de daggemiddelde chloride, nitraat, sulfaat en ammonium concentraties gedurende de twee meetperiodes in 2017 en 2018 zoals gemeten op de verschillende meetlocaties.

Locatie	2017&2018	2017			2018				
	Gemiddelde	Gemiddelde	Mediaan	Q25 ¹	Q75 ¹	Gemiddelde	Mediaan	Q25 ¹	Q75 ¹
Daggemiddelde chloride concentratie (µg/m ³)									
MaHo	0.08	0.07	0.03	0.02	0.06	0.09	0.04	0.03	0.10
NeGu	0.08	0.07	0.04	0.02	0.07	0.09	0.05	0.02	0.11
NeHa	0.10 ^{a, b}	0.10	0.05	0.03	0.11	0.11	0.07	0.03	0.14
Daggemiddelde nitraat concentratie (µg/m ³)									
MaHo	2.41	1.10	0.59	0.34	1.11	3.62	2.13	1.05	4.68
NeGu	3.31 ^a	2.17	1.10	0.69	2.65	4.38	2.93	1.74	5.83
NeHa	3.59 ^{a, b}	2.40	1.63	0.92	2.77	4.70	3.32	2.04	6.07
Daggemiddelde sulfaat concentratie (µg/m ³)									
MaHo	1.56	1.43	1.25	0.91	1.79	1.68	1.36	0.89	2.06
NeGu	1.72 ^a	1.59	1.34	1.05	1.87	1.84	1.60	1.04	2.26
NeHa	1.71 ^a	1.57	1.34	1.09	1.85	1.85	1.55	1.14	2.27
Daggemiddelde ammonium concentratie (µg/m ³)									
MaHo	0.95	0.59	0.44	0.30	0.73	1.26	0.82	0.44	1.48
NeGu	1.21 ^a	0.90	0.62	0.39	1.10	1.50	1.13	0.64	1.81
NeHa	1.28 ^a	0.95	0.70	0.44	1.22	1.59	1.23	0.72	1.89

¹ Q25 = 25 percentiel waarde, Q75= 75 percentiel waarde

^a significant afwijkend van concentraties op de locatie MaHo, gepaarde t-toets, p<0.05

^b significant afwijkend van concentraties op de locatie NeGu, gepaarde t-toets, p<0.05

Invloed van bronnen

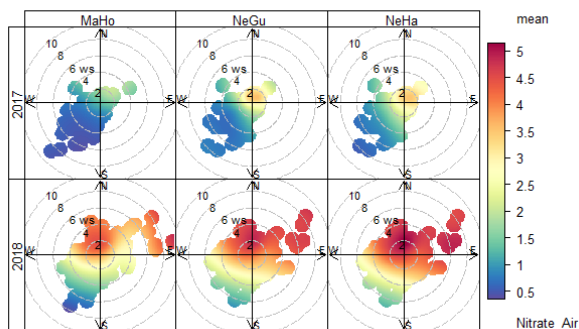
De polarplots van de secundair fijnstofcomponenten zijn net als de PM_{2,5} massaconcentraties zeer vergelijkbaar voor de drie meetlocaties, dit suggereert dat concentraties secundair fijnstofcomponenten niet direct door een lokale bron worden beïnvloed, maar het gevolg zijn van een combinatie van bronnen in de omgeving van de meetlocaties en lange termijn-transport (zie Figuur 16).

Correlatie PM_{2,5} massaconcentratie en secundair fijnstofcomponenten met ammoniak concentraties

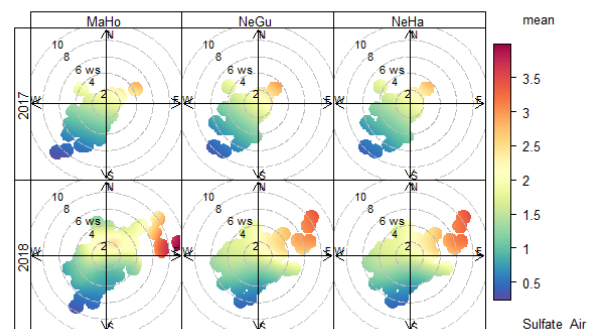
De correlaties tussen de PM_{2,5} massaconcentratie en secundair fijnstofcomponenten onderling en 24-uursgemiddelde ammoniak concentraties zijn in Tabel 5 beschreven. Ammoniakconcentraties hangen niet samen met PM_{2,5} massaconcentraties of de componenten in het stof (r<0,35). PM_{2,5} massaconcentraties hangen relatief sterk samen met ammonium- (r=0,96), gevolgd door nitraat- (r=0,91) en sulfaatconcentraties (r=0,79). Ook ammonium en nitraat hangen sterk met elkaar samen

($r=0,96$). Dit bevestigt dat secundair fijnstof dat gevormd wordt, met name ammonium-nitraat, voor een belangrijk deel de $PM_{2,5}$ massaconcentratie bepaald.

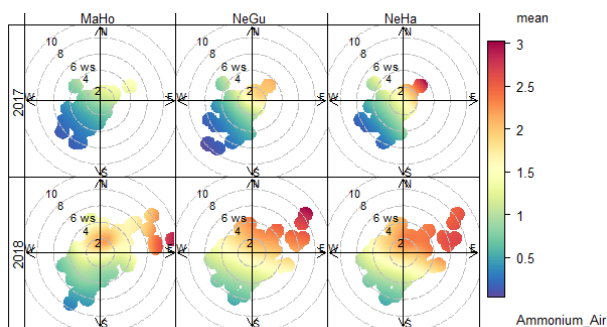
A Polarplot nitraat ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) KNMI wind



B Polarplot sulfaat ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) KNMI wind



C Polarplot ammonium ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) KNMI wind



Figuur 16. Gemiddelde nitraat- (A), sulfaat- (B) en ammoniumconcentraties (C) op de 3 meetlocaties in relatie met de windrichting en windsnelheid voor de meetperiode in 2017 en 2018. Voor de meteorologische gegevens is gebruik gemaakt van KNMI gegevens van de locatie EII voor de meetlocaties in Nederweert, en van de locatie Maastricht voor de meetlocatie in Maastricht.

Tabel 5. Correlatiecoëfficiënten en p-waarden voor de correlatie tussen daggemiddelde NH_3 , $PM_{2,5}$ massa en fijnstofcomponenten concentraties. Correlatiecoëfficiënten van 0,75 en hoger zijn dikgedrukt weergegeven.

	$PM_{2,5}$					
	24u NH_3	massa	Nitraat	Sulfaat	Ammonium	Chloride
24u NH_3	1	0,32 $p < 0,001$	0,29 $p < 0,001$	0,15 $p < 0,005$	0,26 $p < 0,001$	-0,06 $p = 0,27$
$PM_{2,5}$ massa		1	0,91 $p < 0,001$	0,79 $p < 0,001$	0,96 $p < 0,001$	0,28 $p < 0,001$
Nitraat			1	0,58 $p < 0,001$	0,96 $p < 0,001$	0,25 $p < 0,001$
Sulfaat				1	0,75 $p < 0,001$	0,20 $p < 0,001$
Ammonium					1	0,25 $p < 0,001$
Chloride						1

Implicaties

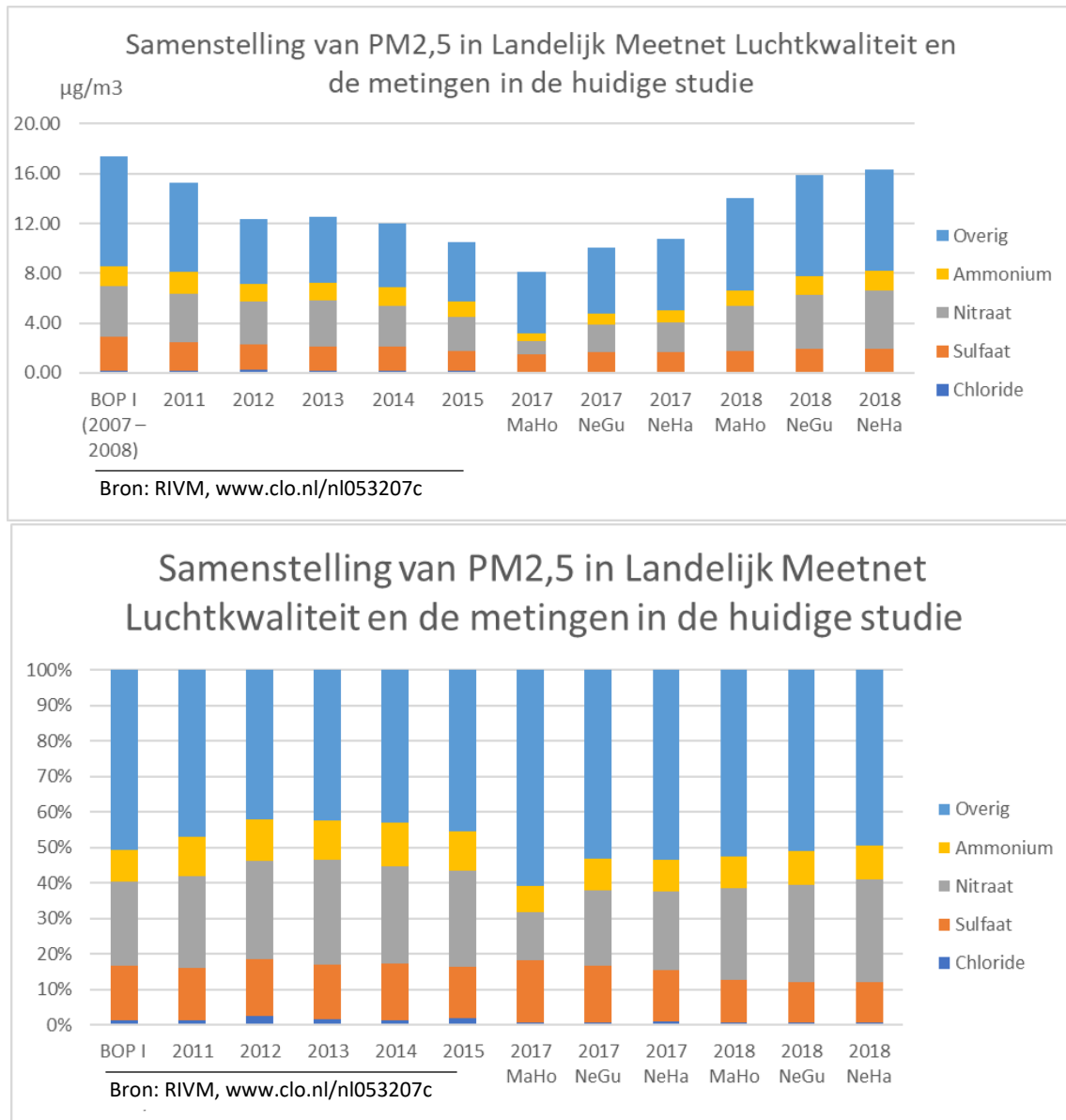
Sinds 2008 zijn grens- en richtwaarden voor $PM_{2,5}$ opgenomen in de Europese richtlijn voor luchtkwaliteit. Voor $PM_{2,5}$ geldt een Europese grenswaarde van $25 \mu\text{g}/\text{m}^3$ voor het jaargemiddelde. Deze waarde wordt door de WHO als een tussentijdse doelstelling gezien, zij adviseren een waarde van $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (WHO 2006). Als we het gemiddelde van de meetperiodes uitgevoerd in 2017 en 2018, tezamen circa 6 maanden, beschouwen als een schatter voor de jaargemiddelde blootstelling wordt de Europese grenswaarde van $25 \mu\text{g}/\text{m}^3$ op geen van de bemeten locaties overschreden, terwijl de advieswaarde van $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ van de WHO wel bij alle locaties overschreden wordt.

Wanneer de resultaten van de huidige metingen vergeleken worden met beschikbare informatie over massa en samenstelling van $PM_{2,5}$ van het landelijk meetnet luchtkwaliteit (bron: RIVM, www.clo.nl/nl053207; Figuur 17) valt allereerst op dat de niveaus van $PM_{2,5}$ in de huidige studie voor het jaar 2017 in de buurt liggen van die van LML in 2015. Voor 2018 worden beduidend hogere massaconcentraties gevonden. Dit heeft naar alle waarschijnlijkheid te maken met de extremere meteorologische omstandigheden in 2018 ten opzichte van meerjarige normaalwaarden³, zoals eerder ook beschreven bij de beschouwing van de ammoniakconcentraties. In 2018 zijn vooral de massafracties van nitraat en ammonium hoger dan in 2017, het verschil tussen de jaren is met name groot voor de meetlocatie in Maastricht. De meetmethode en de laboratorium analyses zijn voor alle locaties op dezelfde manier uitgevoerd, het lijkt daarom onwaarschijnlijk dat dit een artefact van de metingen op die locatie is. Daarmee suggereren deze uitkomsten een sterk effect van vorming van secundair fijnstof in 2018 als gevolg van de meteorologische condities, welke tot ver van de voornaamste bronnen van secundair fijnstof impact kan hebben. De bijdrage van de secundair fijnstofcomponenten (ammonium, nitraat en sulfaat) aan de $PM_{2,5}$ massa bedraagt 46% in 2017 en 50% in 2018 voor de locaties in Nederweert. Het aandeel van secundair fijn stof in Maastricht is met 47% in 2018 duidelijk hoger dan de 38% bijdrage in 2017. Er is geen recente informatie over mogelijke verschillen in bijdrage van fijnstofcomponenten tussen locaties in Nederland. Resultaten van de huidige studie impliceren dat de relatieve secundair fijnstof bijdrage en absolute fijnstof en secundair fijnstof concentraties tussen locaties behoorlijk kunnen variëren tussen locaties. Waargenomen verschillen van enkele microgram per m^3 zijn vergelijkbaar met eerder gerapporteerde verschillen tussen straat en stad locaties in stedelijk gebied (PBL 2010).

De bijdrage van secundair fijnstofcomponenten op de massaconcentratie is met gemiddeld circa 45-50% groot. Dit is eerder geconstateerd in een internationale studie, waarin geconcludeerd werd dat voor Europa de bijdrage van de landbouw de voornaamste bron voor $PM_{2,5}$ is en de bijdrage van landbouw minimaal 40% bedraagt (Lelieveld et al. 2015). Volgens deze studie heeft de landbouw daardoor ook een belangrijke bijdrage aan de mortaliteit die optreedt als gevolg van $PM_{2,5}$ blootstelling. Er zijn weinig studies die gezondheidseffecten van PM blootstelling in een niet stedelijke omgeving hebben onderzocht. De sterfte is voor zover bekend niet op ruraal niveau in verband gebracht met luchtverontreiniging afkomstig van veehouderijbedrijven. Wel zijn meerdere studies bekend waarin gekeken is naar de respiratoire morbiditeit (optreden van ziekte) in ruraal gebied. Loftus e.a. voerden een panel studie uit bij astmatische kinderen in een agrarische gemeenschap in Amerika. Zij rapporteerden voor dit gebied een toename van astma symptomen en een afname van longfunctie in relatie met toename in $PM_{2,5}$ blootstelling, wat aannemelijk maakt dat

³ KNMI Jaaroverzicht van het Weer in Nederland 2018, <https://www.knmi.nl/nederland-nu/klimatologie/gegevens/mow>

PM blootstelling in een agrarische setting gezondheidseffecten kan hebben. De uitkomsten van deze studie wijzen daarmee op een verergering van astmaklachten en -verschijnselen door rurale luchtverontreiniging (Loftus, Yost, Sampson, Arias, et al. 2015).



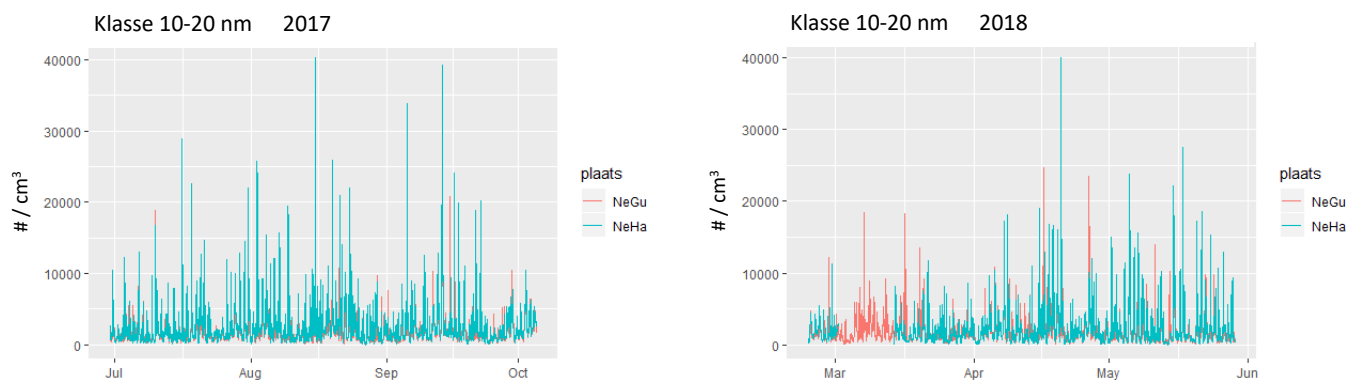
Figuur 17. Absolute (bovenste panel) en procentuele (beneden panel) samenstelling van fijnstof binnen het landelijk meetnet luchtkwaliteit en bij de locaties in het huidige onderzoek. Bij de samenstelling van het stof voor het LML is de gerapporteerde bijdrage van natrium, organisch koolstof en elementaire koolstof toegevoegd aan de overige categorie, aangezien voor de huidige meetreeks hierin geen onderscheid gemaakt wordt.

5. Ultrafijnstof en fijnstof(GRIMM) deeltjesaantallen

Ultrafijnstof

Verloop over de tijd

Het verloop over de tijd van (ultra)fijnstof deeltjes in de zeven deeltjesgrootte klassen is zeer vergelijkbaar voor de twee meetlocaties in Nederweert (zie voorbeeld Figuur 18 en bijlage 3). Voor beide jaren liggen de deeltjesaantallen dicht bij elkaar, maar in het algemeen worden stelselmatig iets hogere waarden gemeten voor de locatie dicht bij de veehouderij dan de andere locatie in Nederweert bij de kleinste deeltjesklasse en totaal ($p < 0.001$ gepaarde T-toets, zie



Tabel 6). Dit suggereert dat er mogelijk een kleine lokale bijdrage is van lokale bronnen aan aantallen (ultra)fijnstof deeltjes, maar dat deze binnen een veehouderrijke regio moeilijk te onderscheiden is van de regionale achtergrond in het gebied.

Figuur 18. Voorbeeld van verloop over de tijd van half uurs gemiddelde aantallen deeltjes in deeltjes klasse 10-20nm op de meetlocaties in Nederweert (NeHa en NeGu). Het patroon is zeer vergelijkbaar voor de andere deeltjesgrootte klassen (20-30nm, 30-50nm, 50-100nm, 100-200nm, 200-500nm, >500nm; bijlage 3).

Tabel 6. Overzicht van gemiddelde, mediaan en 25- en 75 percentiel waarde van totaal ultrafijnstof deeltjesaantallen (som van alle deeltjesklassen: $PM_{10-20nm} + PM_{20-30nm} + PM_{30-50nm} + PM_{50-100nm} + PM_{100-200nm} + PM_{200-500nm} + PM_{>500nm}$) gedurende de twee meetperiodes in 2017 en 2018 zoals gemeten op de verschillende meetlocaties.

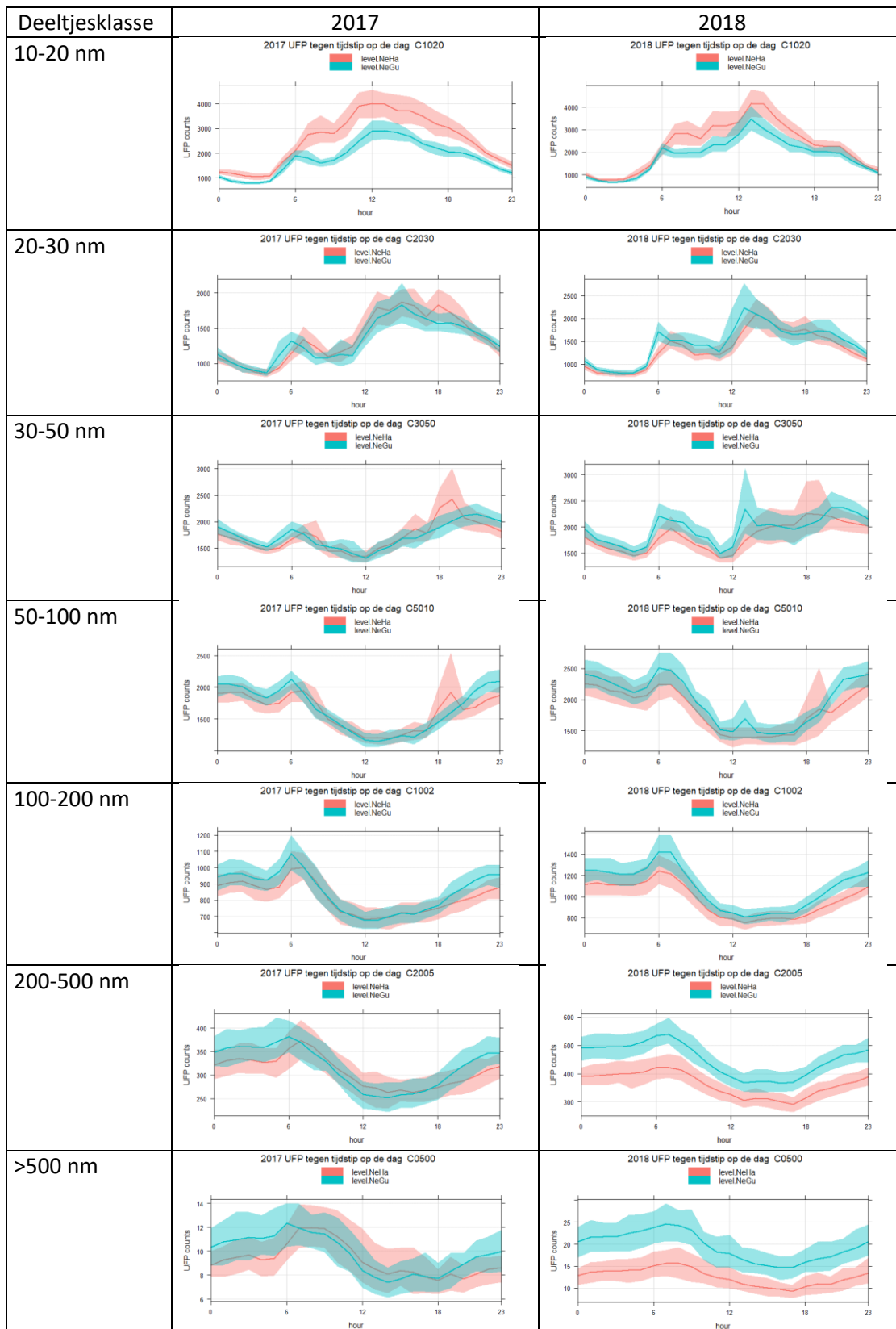
	Locatie	2017				2018			
		Gem	Mediaan	Q25 ¹	Q75 ¹	Gem	Mediaan	Q25 ¹	Q75 ¹
UFP10-20nm	NeGu	1800	1270	780	2190	1850	1250	730	2180
	NeHa	2520 ^a	1620	960	2930	2280 ^a	1440	810	2600
UFP20-30nm	NeGu	1310	1060	710	1570	1450	1060	710	1620
	NeHa	1350	1060	700	1580	1340	1000	650	1530
UFP30-50nm	NeGu	1730	1480	1000	2100	1960	1560	1020	2350
	NeHa	1720	1440	970	2010	1830	1460	940	2220
UFP50-100nm	NeGu	1660	1450	810	2250	1990	1560	1000	2570
	NeHa	1620	1400	770	2140	1850	1460	900	2430
(U)FP100-200nm	NeGu	850	720	420	1190	1080	900	560	1420
	NeHa	820	700	400	1130	980	820	510	1270
(U)FP200-500nm	NeGu	318	244	134	440	451	380	232	594
	NeHa	308	235	131	428	363	317	191	490
(U)FP>500nm	NeGu	10	6	4	11	19	10	5	21
	NeHa	9	5	3	10	13	7	4	13
UFPtotaal <100nm	NeGu	6510	5820	4210	7950	7250	6020	4140	8770
	NeHa	7210 ^a	6030	4320	8540	7290	5930	4010	8930
(U)FPtotaal	NeGu	7690	7180	5180	9420	8830	7540	5470	10690
	NeHa	8350 ^a	7310	5370	9930	8670 ^a	7310	5200	10670

¹ Q25 = 25 percentiel waarde, Q75= 75 percentiel waarde

^a significant afwijkend van concentraties op de locatie NeGu, gepaarde t-toets, $p < 0.05$

Verloop over de dag

Het patroon over de dag van de (ultra)fijnstof deeltjes aantallen vertoont voor deeltjes tot een diameter van 50nm een toename in de middaguren, wat suggestief is voor de vorming van nieuwe deeltjes als gevolg van fotochemische processen (zie Figuur 19). In het jaar 2017 gebeurt dit voor de allerkleinste deeltjes (10-20nm) meer voor de NeHa-locatie waar ook hogere ammoniak concentratie gemeten wordt, wat wijst op enigszins lokale verschillen in bijdrage van fijnstof vorming tussen de locaties. Voor de metingen in het jaar 2018 zijn de dagpatronen voor beide locaties relatief sterker met elkaar in overeenstemming. Dit heeft waarschijnlijk met de meteorologische omstandigheden van de metingen in 2018 te maken. Door de droge en warme omstandigheden in 2018 lijkt de ruimtelijke invloed van nieuw gevormde deeltjes zich over een groter gebied uit te spreiden, met hogere aantallen deeltjes op beide locaties, waardoor lokale invloeden in de hogere achtergrond wegvallen. Voor deeltjes groter dan 50nm verloopt het patroon over de dag anders, met een stabiel niveau gedurende de nacht, al dan niet gevolgd door een toename in de vroege ochtend en een afname gedurende de dag. Een dergelijk patroon wijst niet op vorming van nieuwe deeltjes.



Figuur 19. Gemiddeld dagpatroon van half uursgemiddelde aantallen deeltjes per cm^3 in deeltjesklassen met grootte 10-20nm, 20-30nm, 30-50nm, 50-100nm, 100-200nm, 200-500nm, >500nm voor de meetlocaties in Nederweert (NeHa(rood) en NeGu(blauw)) per meetperiode.

Invloed van bronnen

De polarplots van de aantallen deeltjes ultrafijnstof zijn net als voor de $PM_{2,5}$ massaconcentraties en fijnstofcomponenten zeer vergelijkbaar voor de twee meetlocaties. Dit suggereert dat de ultrafijnstof deeltjes in beperkte mate direct door een lokale bron beïnvloed wordt, maar het gevolg is van een combinatie van bronnen in de omgeving van de meetlocaties en lange termijn-transport (zie bijlage 4).

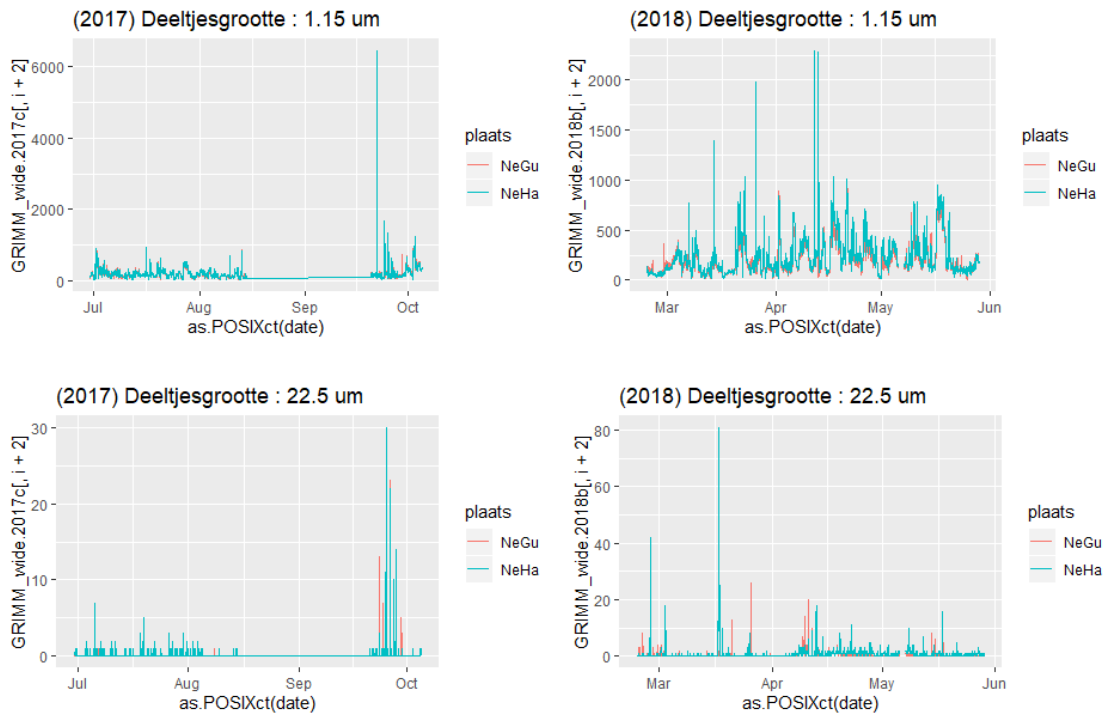
Correlatie met ammoniakconcentraties

Ultrafijnstofdeeltjes aantallen en tegelijkertijd gemeten ammoniakconcentraties hangen niet duidelijk met elkaar samen (de range in pearson correlatie coëfficiënten is 0,02 – 0,43).

Fijnstof deeltjesaantallen met behulp van GRIMM

Verloop over de tijd

Ook voor de metingen met de GRIMM, welke deeltjes aantallen in 31 deeltjesgrootte klassen geeft, geldt dat het verloop over de tijd van de deeltjesaantallen zeer vergelijkbaar is voor de twee meetlocaties in Nederweert (zie voorbeelden hiervan in Figuur 20). Dit suggereert dat er geen duidelijke directe lokale bijdrage van nabije veehouderij bronnen te identificeren is. Dit heeft deels te maken met een hoge regionale achtergrond, waardoor de bijdrage van lokale bronnen in de achtergrond wegvallen.



Figuur 20. Voorbeelden van verloop over de tijd van half uurs gemiddelde aantallen deeltjes op de meetlocaties in Nederweert (NeHa (blauw) en NeGu (rood)). Figuren bevatten verloop voor de deeltjes van gemiddeld 1.15 µm (deeltjes tussen 1 en 1.3 µm) en deeltjes van gemiddeld 22.5 µm (deeltjes tussen 17.5 – 25 µm). Het patroon is zeer vergelijkbaar voor de andere deeltjesgrootte klassen, met uitzondering van de drie grootste deeltjesklassen welke alleen bij de locatie NeGu waargenomen worden (zie bijlage 5 met het verloop over de tijd voor alle 31 GRIMM deeltjesklassen voor het jaar 2018).

Verloop over de dag

Het patroon over de dag van de fijnstofdeeltjesaantallen van deeltjes kleiner dan 2 µm (GRIMM klasse 15) vertonen in het algemeen hoogste aantallen deeltjes in de nacht, gevolgd door een afname gedurende de dag tussen 6 en 12 uur, gevolgd door een plateau tot circa 18 uur, waarna de niveaus weer stijgen. Voor grotere deeltjes worden de hoogste aantallen in het algemeen ook in de avonduren en de nacht gevonden, en is het niveau overdag constant laag (zie bijlage 6). Er worden geen consistente verschillen in dagpatronen tussen de meetlocaties waargenomen, met uitzondering van de 3 grootste deeltjesklassen welke alleen bij de locatie NeGu worden waargenomen, dit betreft echter zeer lage deeltjes aantallen van 1 tot maximaal enkele deeltjes per cm³, waardoor de

onzekerheid groot is. Alles bij elkaar genomen is er geen duidelijk onderscheid tussen de meetlocaties waar te nemen.

Invloed van bronnen

De polarplots van de fijnstof deeltjesaantallen zijn in het algemeen eveneens zeer vergelijkbaar voor de twee meetlocaties, dit suggereert dat op basis van aantallen fijnstofdeeltjes lokale bijdragen van bronnen moeilijk geïdentificeerd kunnen worden (zie bijlage 7).

Implicaties

Er zijn voor zover bekend geen eerdere studies uitgevoerd waarin verschillen in ultrafijnstof- en fijnstofdeeltjesaantallen in rurale gebieden werden bestudeerd. Hierdoor kan er slechts voor ultrafijnstof en in beperkte mate vergeleken worden met eerdere bevindingen. In Duitsland wordt er sinds 2008 structureel metingen uitgevoerd naar ultrafijnstof in het zogenaamde *German Ultrafine Aerosol Network (GUAN)*. Dit netwerk is gestart op zeven locaties, waaronder regionale achtergrondlocaties, stadsachtergrond locaties, verkeerslocaties, en locaties nabij de bergen, en is in de loop der jaren uitgebreid naar zeventien locaties verspreid over Duitsland (Birmili et al. 2009; Sun et al. 2019). De hoeveelheid ultrafijn stofdeeltjes is circa 30 maal verhoogd op verkeerslocaties ten opzichte van berglocaties. In Nederland is er geen dergelijk netwerk van ultrafijnstof monitoring. Wel zijn er in meetcampagnes voor projecten ultrafijnstof metingen uitgevoerd, hierbij worden vergelijkbare contrasten gevonden tussen verkeersdrukke en verkeersarme locaties als gerapporteerd voor Duitsland (RIVM brochure ultrafijnstof en gezondheid ⁴). Door TNO is gedurende de jaren 2009-2012 ultrafijnstof gemeten in Cabauw in de provincie Utrecht. De gemiddelde totale ultrafijnstof concentraties (som van de fracties 10-25nm, 25-100nm en >100nm) lag voor deze jaren rond de 8.000 á 12.000 deeltjes/cm³. Voor de meetlocaties in Nederweert worden iets lagere gemiddelde totale ultrafijnstof deeltjesconcentraties gevonden met waarden in de range van 6.500 en 8.800 deeltjes/cm³. Tussen de gemiddelde waarden van de twee meetlocaties in Nederweert wordt een verschil gevonden van circa 10%. Dit is een veel minder groot contrast dan gevonden wordt bij verkeersbelaste locaties.

Er is meer en meer aandacht voor ultrafijnstof omdat ultrafijnstof bij inademing tot diep in de longen kan binnendringen. De deeltjes zijn zo klein dat ze ook via de longen in de bloedbaan doordringen en zo andere organen kunnen bereiken. In onderzoek zijn aanwijzingen gevonden voor chronische gezondheidseffecten door langdurige blootstelling aan ultrafijnstofdeeltjes, alsook aanwijzingen voor effecten als gevolg van kortdurende blootstelling (Ohlwein et al. 2019; HEI 2013). Onderzoek naar ultrafijnstofblootstelling in relatie met gezondheidsuitkomsten is veelal uitgevoerd in stedelijke omgeving. Het is niet bekend óf en hoe de onderzoeksresultaten te vertalen zijn naar een niet-stedelijke setting.

Het dagpatroon van ultrafijnstofdeeltjesaantallen lijkt te wijzen op vorming van nieuwe deeltjes als gevolg van fotochemische processen, met mogelijk een klein verschil tussen beide meetlocaties. In vergelijking met bijdrage van fotochemische processen op ultrafijnstofvorming in stedelijke omgeving zoals eerder gerapporteerd door Birmili e.a. (2013) is het contrast in Nederweert veel

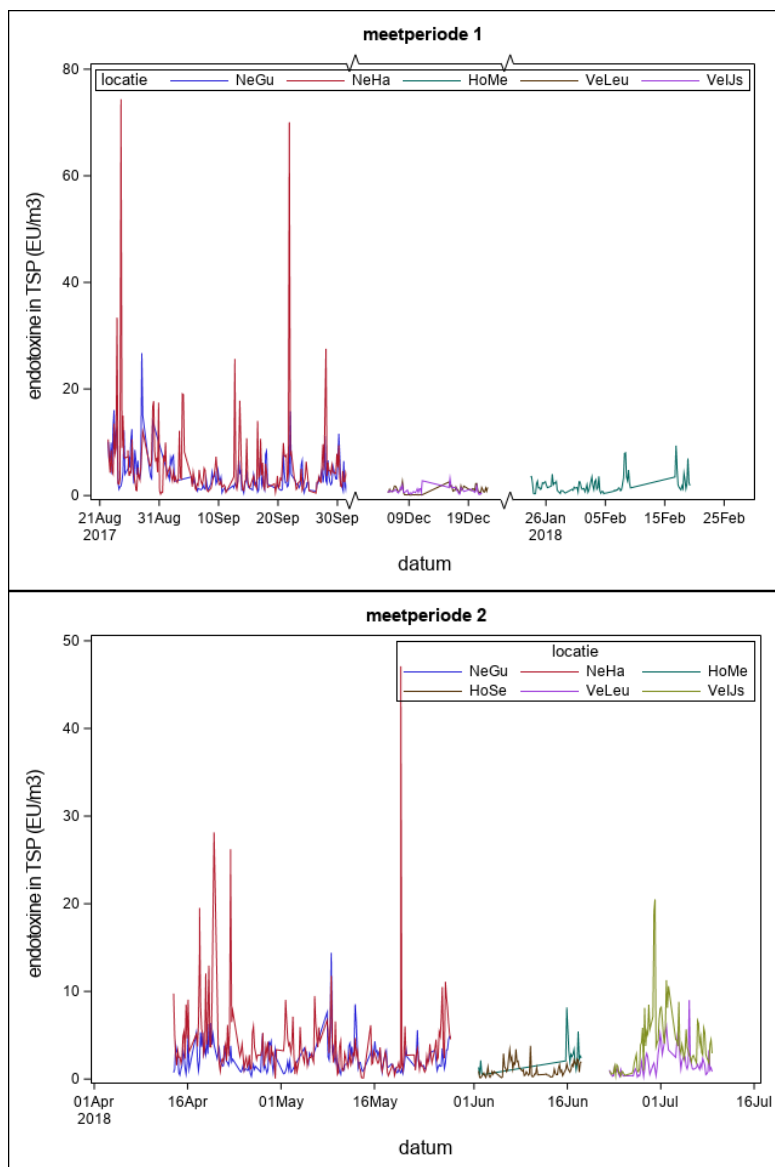
⁴ <https://www.rivm.nl/documenten/brochure-ultrafijn-stof-en-gezondheid>

kleiner. Net als voor de fijnstof compositie wordt een verschil gevonden tussen de jaren 2017 en 2018, waarbij de meteorologische condities een rol spelen.

6. Endotoxine

Verloop van concentraties over de tijd

Het is voor het eerst dat er tijdseries zijn verzameld met kortdurende metingen voor endotoxinen. Het verloop van 4-uursgemiddelde endotoxineconcentraties in totaalstof (TSP) op de meetlocaties in Nederweert, Venray en Horst aan de Maas zijn weergegeven in Figuur 21 en bijlage 8. De meetreeksen laten zien dat 4-uurs endotoxinen concentraties grote variatie vertonen over de tijd. Voor de meetlocaties in Nederweert (NeHa en NeGu) zien we dat het patroon over de tijd vergelijkbaar is, echter voor de locatie met veel veehouderij in de buurt (NeHa) worden regelmatig verhoogde concentraties waargenomen. Deze verhoogde concentraties liggen rond of boven de



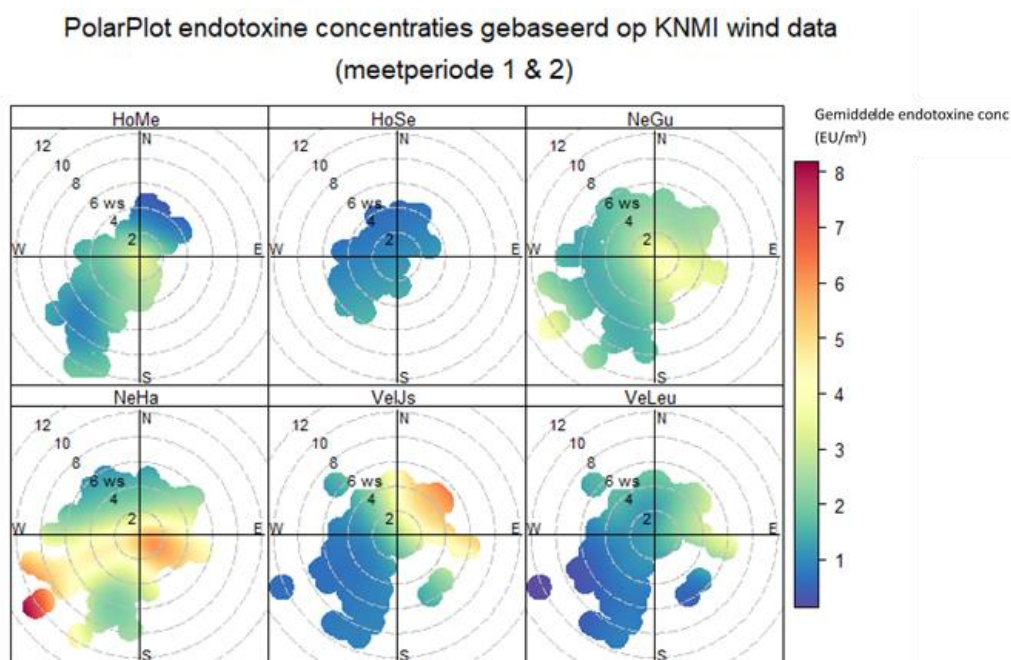
Figuur 21. Tijdseries van 4-uursgemiddelde endotoxine concentraties in totaalstof (TSP) over de tijd voor de meetlocaties in de gemeente Nederweert (NeHa, NeGu), Venray (VeIJs, VeLeu) en Horst aan de Maas (HoMe, HoSe) in de twee meetperiodes. Door uitval van apparatuur ontbreken metingen van de locatie HoSe gedurende de eerste meetperiode.

voorgestelde grenswaarde van de Gezondheidsraad van 30 EU/m^3 (Gezondheidsraad 2012). Bij de andere locaties zijn de maximale concentraties die zijn waargenomen lager tot maxima van circa 20

EU/m³. Het vergelijken van locaties is niet goed mogelijk omdat duur van de meetserie en het tijdstip van metingen niet gelijk zijn voor de verschillende gemeenten. Als alleen metingen tussen gemeenten worden vergeleken die tegelijkertijd zijn uitgevoerd dan zijn duidelijke verschillen waarneembaar in optredende concentraties tussen de twee meetlocaties in Nederweert (NeGu en NeHa), waarbij bij de meetlocatie meest nabij veehouderij NeHa vaker hogere waarden worden gemeten. Voor de meetlocaties in Horst aan de Maas zijn de gemeten endotoxine concentraties bij de locatie met meer nabije veehouderij (HoSe) lager dan bij de locatie met minder nabije veehouderij (HoMe). Voor de locaties in Venray geldt dat concentraties bij de locatie met meeste veehouderij (VeJIs) in een straal van 1000m rond de meetlocatie tijdens de eerste meetperiode niet verhoogd zijn ten opzichte van de andere locatie, terwijl dit tijdens de tweede meetperiode wel het geval was. De ligging van de veehouderij bedrijven ten opzichte van de meetlocatie en de meteorologische condities tijdens de metingen spelen hierbij een rol.

Invloed van bronnen

De zogenaamde polarplots van de gemiddelde concentratie per windrichting en windsnelheid op basis van de 4-uursgemiddelde endotoxine concentraties laten inderdaad verschillende patronen zien voor de 6 bemeeten locaties. Hoogste gemiddelde concentraties per windrichting komen voor bij de locatie NeHa en VeJIs, en suggereren de invloed van lokale bronnen bij bepaalde windrichtingen (zie Figuur 22).

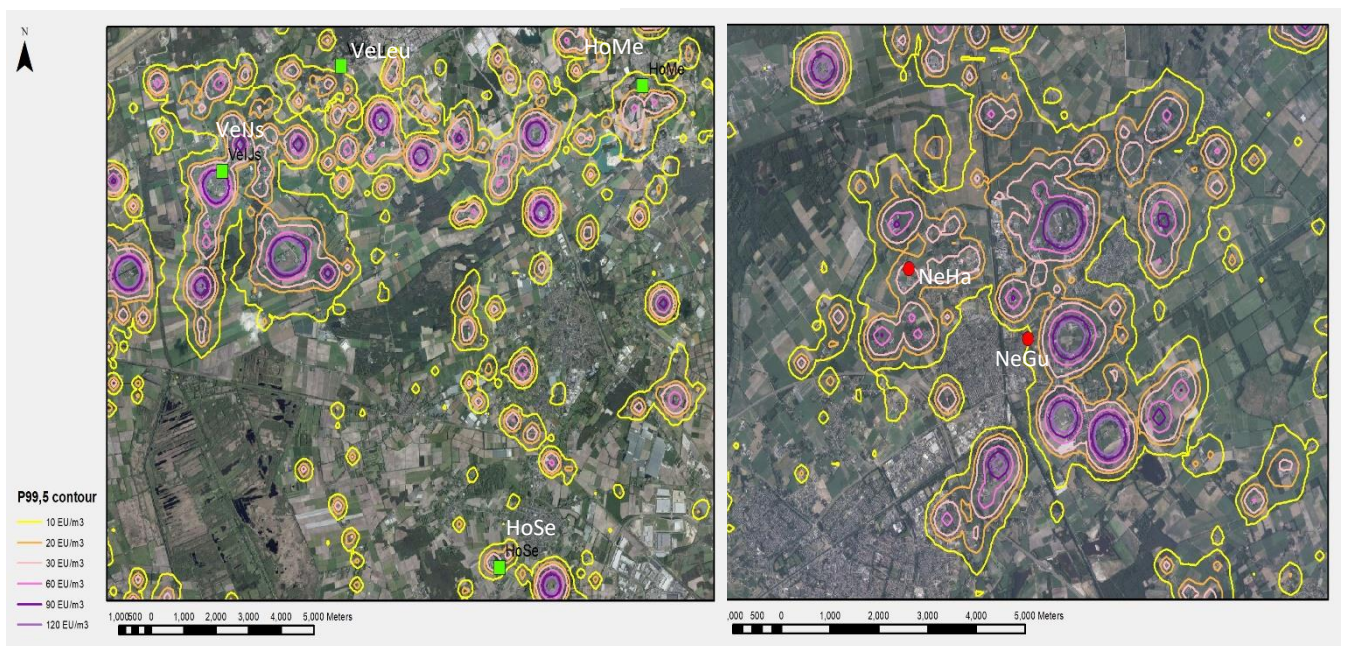


Figuur 22. Gemiddelde endotoxine concentraties per windrichting en windsnelheid gebaseerd op gemeten 4-uursgemiddelde endotoxineconcentraties in totaalstof (TSP) voor de meetlocaties in de gemeente Horst aan de Maas (HoMe, HoSe), Nederweert (NeGu, NeHa) en Venray (VeJIs, VeLeu). De plots zijn gebaseerd op de meetwaarden van meetperiode 1 & 2 en voor alle meetlocaties zijn de windrichting en windsnelheid gebaseerd op die van het KNMI meetpunt EII.

Vergelijking met gemodelleerde concentraties

De 99,5-percentiel endotoxine concentraties voor de meetlocaties zijn afgeleid uit de contourplot (zie Figuur 23) en zijn in Correlatie met ammoniak concentraties

Voor de locaties in Nederweert is de correlatie tussen de 4-uursgemiddelde endotoxineconcentraties en 4-uursgemiddelde ammoniakconcentraties onderzocht. De endotoxine- en ammoniakconcentraties hangen niet duidelijk met elkaar samen (pearson $r = 0.25$).



Tabel 7 uitgezet tegen de mediaan en percentiel waarden van de waargenomen 4-uurs endotoxine concentraties. De verhouding tussen de 99,5- percentiel concentraties van de meetlocaties in Nederweert benadert die van de contourplot (2.9 voor gemeten waarden versus 3 voor de contourplot waarden, maar laat hogere waarden zien met voor beide locaties circa 1,6 maal hogere P99,5 concentraties. Voor de andere gemeenten konden de hogere percentiel concentraties niet afgeleid worden. De verhouding tussen de mediane concentraties van de meetlocaties per gemeente is niet altijd in overeenstemming met de verhouding van de contour gegevens, en voor de locaties in Horst aan de Maas zelfs omgekeerd. Dit kan een gevolg zijn van de relatief beperkte omvang van de meetreeksen op deze locaties in combinatie met de meteorologische condities tijdens de metingen.

Figuur 23. P99,5 endotoxine contour plots voor de meetlocatie waar de endotoxine metingen zijn uitgevoerd. Contour plots zijn gebaseerd op de modellering zoals beschreven in Heederik e.a.(2019), op basis van BVB 2015 en gebaseerd op meteo gegevens van 2014/2015. Meetlocaties zijn weergegeven met rode (Nederweert) of groene dot (Venray en Horst aan de Maas).

Correlatie met ammoniak concentraties

Voor de locaties in Nederweert is de correlatie tussen de 4-uursgemiddelde endotoxineconcentraties en 4-uursgemiddelde ammoniakconcentraties onderzocht. De endotoxine- en ammoniakconcentraties hangen niet duidelijk met elkaar samen (pearson $r = 0.25$).

Tabel 7. Overzicht van P99,5 contour-waarden en mediaan en percentiel-waarden van 4-uursgemiddelde endotoxine concentraties voor de meetlocaties.

Gemeente	Locatie	P99,5 contour EU/m ³	Gemeten concentraties (in EU/m ³)				
			Rekenkundig gemiddelde	Mediaan	P75	P90	P99,5
Nederweert	NeGu	10	3.1	2.2	3.6	6.4	16.1
	NeHa	30	4.8	3.2	5.3	9.0	47.1
Venray	VeIJs	45	2.7	1.5	-#	-	-
	VeLeu	<10	1.5	1.1	-	-	-
Horst aan de Maas	HoMe	15	2.1	1.6	-	-	-
	HoSe	20	1.1	0.8	-	-	-

voor de meetlocaties in de gemeente Venray en Horst aan de Maas zijn er niet genoeg waarnemingen om de hogere percentiel waarden betrouwbaar te schatten.

Implicaties

Er zijn niet eerder metingen naar endotoxine in totaalstof in de buitenlucht uitgevoerd. In verkennende endotoxine verspreidingsmodellering werden verhoogde 4-uursgemiddelde endotoxine concentraties in totaalstof voorspeld ook op afstanden van enkele honderden meters van de gemodelleerde situatie (Erbrink et al., 2016). De huidige studie laat zien dat aanzienlijk verhoogde 4-uursgemiddelde endotoxine concentraties daadwerkelijk optreden en de voorgestelde grenswaarde voor endotoxine van de Gezondheidsraad van 30 EU/m³ overschrijden. Dit maakt de gemodelleerde P99,5 endotoxine concentratie contouren, zoals in de RVG studie gepubliceerd zijn (Heederik e.a., 2019), plausibel. De 4-uurs endotoxine concentraties vertonen aanzienlijke variatie over de dag en over de meetperioden. Het is niet duidelijk óf en hoe dit samenhangt met meteorologische omstandigheden en/of dynamiek in de bedrijfsvoering. De eerdere twee-weeksgemiddelde endotoxinen concentraties in PM₁₀ in de VGO studie vertoonden ook variatie over de tijd (de Rooij et al., 2018). De verschillen in patronen tussen meetlocaties zijn plausibel met betrekking tot de ligging van mogelijke emissiebronnen in de omgeving, en lijken te wijzen op de invloed van lokale bronnen bij het optreden van piek concentraties.

Van metingen in stallen is bekend dat de grotere deeltjesfractie meer endotoxine bevat dan kleinere deeltjesfracties (Winkel et al. 2015; Erbrink et al., 2016; Winkel 2018). Daarom was de verwachting dat endotoxine concentraties in totaalstof fracties hoger zullen zijn dan zoals eerder bepaald in PM₁₀ stof fracties. In het huidige onderzoek is alleen de totaalstof fractie op endotoxine onderzocht, waardoor een directe vergelijking niet mogelijk is. De gemiddelde endotoxine concentratie in totaalstof kan echter wel vergeleken worden met de gemiddelde endotoxine concentratie in PM₁₀ van de met dezelfde analysemethode bepaalde metingen in de woonomgeving van de VGO studie zoals eerder gerapporteerd door de Rooij e.a, deze varieerden tussen 0.24 en 0.39 EU/m³ (de Rooij et al., 2018). De nu bepaalde endotoxine concentraties in totaalstof zijn inderdaad aanzienlijk hoger dan de concentraties in PM₁₀.

De gemeten concentraties komen regelmatig in de buurt van de voorgestelde grenswaarde van de Gezondheidsraad (Gezondheidsraad 2012), welke afgeleid is van arbeids-hygiënische studies en

experimentele studies waarbij longfunctie verandering zijn vastgesteld na acute blootstelling. De grenswaarde van 90 EU/m³ voor de werkomgeving was gebaseerd op een acuut effect op de longfunctie na zes uur blootstelling aan endotoxine-bevattend katoenstof via de lucht. De geschatte extra daling van de longfunctie als gevolg van blootstelling aan 90 EU/m³ werd als No Adverse Effect Level gezien. Door toepassing van een onzekerheidsfactor 3 om te compenseren voor verschillen in gevoeligheid tussen personen kwam de Gezondheidsraad in 2012 tot een voorgestelde grenswaarde voor de buitenlucht van 30 EU/m³. Omdat de grenswaarde voor de werkomgeving gedefinieerd is voor een duur van 8 uur, en beschermt tegen acute effecten, moet er van worden uitgegaan dat de grenswaarde voor de buitenlucht ook betrekking heeft op een vergelijkbare korte blootsteldingsduur. Endotoxine concentraties tot 75 EU/m³ worden gemeten. Dit zijn concentraties die in de buurt komen van concentraties in de werkomgeving (90 EU/m³) waarvan bekend is dat deze acute gezondheidseffecten teweeg kunnen brengen.

Pas zeer recentelijk zijn associaties tussen jaargemiddelde endotoxine blootstelling en gezondheidseffecten bij omwonenden in een gebied met veel veehouderijen onderzocht (de Rooij, Smit, et al. 2019). Er zijn aanwijzingen dat jaargemiddelde gemodelleerde blootstelling aan endotoxinen in PM₁₀ als gevolg van veehouderijen sterker samenhangt met gezondheidseffecten bij omwonenden van veehouderijen, dan van veehouderij afkomstige PM₁₀ blootstelling. De prevalentie van atopische sensibilisatie en astma was lager bij hogere jaargemiddelde endotoxine blootstelling. De prevalentie van respiratoire symptomen daalde met toenemende endotoxine concentratie in het lagere bereik van de blootstelling, terwijl bij hogere concentraties de prevalentie toenam met toenemende concentratie. Er werden geen significante associaties met de longfunctie gevonden (de Rooij et al., 2019). Acute longfunctie veranderingen, zoals die met ammoniak in meerdere studies zijn geassocieerd, zijn niet onderzocht. Endotoxine kan etiologisch gerelateerd zijn met een aantal van de waargenomen gezondheidseffecten, echter nader onderzoek is hiernaar nodig. Tot nu toe zijn vooral relaties met jaargemiddelde concentraties onderzocht, relaties met percentiel concentraties in totaalstof zijn onderdeel van aanvullend onderzoek. Het daadwerkelijk voorkomen van verhoogde piek concentraties endotoxine in totaalstof, onderstreept het belang hiervan.

7. Algemene conclusies en aanbevelingen

Dit onderzoek had als doel om een antwoord te geven op de vraag óf en hoe de verschillende veehouderij gerelateerde luchtkwaliteitscomponenten veranderen over tijd en ruimte. Variaties over de tijd die duidelijk wijzen op lokale stalbronbijdragen zijn waargenomen voor ammoniak- en endotoxineconcentraties. Twee componenten die beiden specifiek zijn voor veehouderijen en waarvoor geldt dat de achtergrondconcentratie in de lucht relatief laag is. Dit verklaart waarom voor deze componenten een relatie met de aanwezigheid van veehouderijen in de omgeving wordt gevonden. De twee componenten zijn niet hoog met elkaar gecorreleerd, dus vertonen ieder een unieke invloed als gevolg van de aanwezigheid van veehouderijbedrijven in de omgeving.

Het is voor het eerst dat endotoxineconcentraties in de buitenlucht in totaal stof zijn gemeten in plaats van in PM_{10} . In een eerdere verkennende studie naar endotoxine verspreidingsmodellering werden verhoogde 4-uursgemiddelde endotoxine concentraties in totaalstof voorspeld (Erbrink et al., 2016). De metingen laten zien dat aanzienlijk verhoogde 4-uursgemiddelde endotoxine concentraties in totaal stof daadwerkelijk optreden, en dat endotoxine concentraties in totaal stof hoger zijn dan in PM_{10} stof. De gemeten endotoxine piekconcentraties zijn hoger dan de gemodelleerde waarden (factor 1,6) en komen uit rond en boven de door de Gezondheidsraad geadviseerde grenswaarde.

Voor componenten die samenhangen met de hoeveelheid en samenstelling van fijnstof wordt in het algemeen een minder duidelijke directe lokale stalbijdrage waargenomen. Toch zijn er verschillen tussen locaties (verschillen tussen locaties met meer of minder veehouderij in de omgeving) waarneembaar, die het gevolg zijn van een combinatie van verschillende bronnen in de directe omgeving en verder weg. De bijdrage van secundair fijnstof aan $PM_{2,5}$ massaconcentraties is in het algemeen hoger voor de locaties in Nederweert (circa 46- 50%) dan op de stadsachtergrond locatie in Maastricht (circa 38%). Als gevolg van andere meteorologische omstandigheden in 2018 was de secundair fijnstof bijdrage in Maastricht verhoogd (circa 46%). Dit duidt erop dat afhankelijk van de condities, de invloed van secundair fijn stof over een groter gebied spreidt. Het patroon van ultrafijnstof deeltjes over de dag suggereert dat afhankelijk van de veehouderij dichtheid vorming van nieuwe deeltjes als gevolg van fotochemische processen in meer of mindere mate optreedt.

Aanbevelingen

De aanzet van dit onderzoek waren de bevindingen in de eerdere VGO (Maassen et al. 2016; Hagens et al. 2017) en RVG onderzoeken (Heederik et al, 2019). In het VGO onderzoek werd gevonden dat jaargemiddelde concentraties van micro-organismen en endotoxine verhoogd zijn, en samenhangen met de afstand tot veehouderij bedrijven en aantallen van veehouderijbedrijven in een gebied rond de metingen (de Rooij et al. 2018; de Rooij, Hoek, et al. 2019). Verkennende modellering van endotoxineconcentraties die optreden gedurende enkele uren voor een groter gebied op basis van emissiegegevens leken er op te wijzen op dat hoge piekconcentraties endotoxine naar alle waarschijnlijkheid voorkomen ook op afstanden waar de bewoning zich bevindt (Erbrink et al. 2016). Informatie over herhaalde kortdurende metingen naar endotoxine in de leefomgeving ontbreken. In het VGO onderzoek zijn meerdere associaties gevonden die wijzen op gezondheidsrisico's voor omwonenden. Luchtwegklachten en een verminderde longfunctie komen vaker voor wanneer de dichtheid van veehouderijbedrijven rond de woning hoger is, ongeacht het type bedrijf (Borlee et al. 2015). Een verminderde longfunctie wordt vaker gevonden in periodes met

verhoogde ammoniakconcentraties, wat vermoedelijk wijst op een rol van secundair fijnstof blootstelling (Borlee, Yzermans, Krop, et al. 2017). Het gevonden verband tussen de longfunctie en ammoniak in de lucht vroeg om nadere aandacht voor secundair fijnstof en ammoniak. Er is in Nederland weinig inzicht in ammoniakconcentraties in leefgebied. Uit het VGO en RVG onderzoek lijkt een mogelijke rol voor kortdurende veranderingen in luchtkwaliteit van belang.

Het huidige onderzoek laat zien dat inderdaad kortdurende en langer durende veranderingen in de luchtkwaliteit kunnen optreden die samenhangen met veehouderijenmerken van de omgeving. Het is voor het eerst dat dergelijk onderzoek systematisch is uitgevoerd. Met de resultaten van dit onderzoek kan richting gegeven worden naar aanvullend onderzoek om de bijdrage voor verschillende componenten als gevolg van de veehouderij beter in kaart te brengen. Dit onderzoek is een eerste aanzet. Of de uitkomsten uniek zijn voor de huidige locaties of te extrapoleren zijn naar andere locaties in Nederland kan door het beperkte inzicht in veehouderij gerelateerde luchtverontreiniging niet worden voorspeld. Het verdient daarom aanbeveling om het onderzoek in een ander gebied te herhalen.

In het veehouderij gebied bestaat circa 50% van de PM_{2.5} massa uit secundair fijnstof, dat o.a. uit ammoniak afkomstig uit intensieve veehouderij gevormd wordt. Voor de vorming van secundair fijn stof is niet alleen ammoniak nodig, maar zijn ook andere componenten uit de lucht nodig, waaronder NO_x, welke een andere oorsprong hebben, o.a. uit verbrandingsmotoren. In het jaar waarin de ammoniak concentraties het hoogst waren lijkt de invloed van secundair fijnstof vorming zich over een groter gebied uit te spreiden, dit suggereert dat ammoniak mogelijk de beperkende factor is bij de vorming van secundair fijn stof. Resultaten zullen bijdragen aan de discussie en beleidsontwikkeling rondom veehouderij en gezondheid, waarbij de focus mogelijk niet alleen gericht moet zijn op directe lokale effecten maar ook hernieuwde aandacht voor secundair fijnstof vorming over grote gebieden meegewogen moet worden.

Het is voor het eerst dat kortdurende verhoogde niveaus in endotoxineconcentraties gemeten zijn. Hoewel er een overeenkomst is met de eerder gemodelleerde concentraties, roepen de uitkomsten van het onderzoek ook vragen op. Zo zijn de concentraties enigszins hoger dan voorspeld door de verspreidingsmodellen voor endotoxine. Dit vergt specifieke validatie van gemodelleerde endotoxineconcentraties over korte periodes, door meetreeksen van 4-urige metingen te verzamelen op meerdere locaties.

8. Dankwoord

Wij danken de deelnemers in wiens tuinen de meetapparatuur kon worden opgesteld. Wij hebben waarden het zeer dat uw tuin voor ons open stond. Naast de auteurs hebben de volgende personen ook op verschillende manieren bijgedragen bij de uitvoer en uitwerking van het onderzoek: Erik van Nunen (IRAS), Sebastian Fays en Robin Laruelle (ISSEP), Maurice Hermans (Omgevingsdienst Limburg), waarvoor hartelijk dank.

9. Literatuur

- Birmili, W., K. Weinhold, S. Nordmann, A. Wiedensohler, G. Spindler, K. Mueller, H. Herrmann, T. Gnauk, M. Pitz, J. Cyrus, H. Flentje, C. Nickel, T. A. J. Kuhlbusch, G. Loschau, D. Haase, F. Meinhardt, A. Schwerin, L. Ries, and K. Wirtz. 2009. Atmospheric aerosol measurements in the German Ultrafine Aerosol Network (GUAN), *Gefahrstoffe Reinhaltung Der Luft*, (69): 4, 137-45.
- Birmili, Wolfram , Laura Tomsche, Andre Sonntag, Claudia Opelt, Kay Weinhold, Stephan Nordmann, and Wolfram Schmidt. 2013. Variability of aerosol particles in the urban atmosphere of Dresden (Germany): Effects of spatial scale and particle size, *Meteorologische Zeitschrift*, (4): 22, 195-211.
- Borlee, F., C. J. Yzermans, B. Aalders, J. Rooijackers, E. Krop, C. B. M. Maassen, F. Schellevis, B. Brunekreef, D. Heederik, and L. A. M. Smit. 2017. Air Pollution from Livestock Farms Is Associated with Airway Obstruction in Neighboring Residents, *Am J Respir Crit Care Med*, (196): 9, 1152-61.
- Borlee, F., C. J. Yzermans, E. Krop, B. Aalders, J. Rooijackers, J. P. Zock, C. E. van Dijk, C. B. Maassen, F. Schellevis, D. Heederik, and L. A. Smit. 2017. Spirometry, questionnaire and electronic medical record based COPD in a population survey: Comparing prevalence, level of agreement and associations with potential risk factors, *PLoS One*, (12): 3, e0171494.
- Borlee, F., C. J. Yzermans, C. E. van Dijk, D. Heederik, and L. A. Smit. 2015. Increased respiratory symptoms in COPD patients living in the vicinity of livestock farms, *Eur Respir J*, (46): 6, 1605-14.
- Brunekreef, B., N. A. Janssen, J. J. de Hartog, M. Oldenwening, K. Meliefste, G. Hoek, T. Lanki, K. L. Timonen, M. Vallius, J. Pekkanen, and R. Van Grieken. 2005. Personal, indoor, and outdoor exposures to PM_{2.5} and its components for groups of cardiovascular patients in Amsterdam and Helsinki, *Res Rep Health Eff Inst*, 127, 1-70; discussion 71-9.
- de Rooij, M. M. T., D. J. J. Heederik, E. van Nunen, I. J. van Schothorst, C. B. M. Maassen, G. Hoek, and I. M. Wouters. 2018. Spatial Variation of Endotoxin Concentrations Measured in Ambient PM₁₀ in a Livestock-Dense Area: Implementation of a Land-Use Regression Approach, *Environ Health Perspect*, (126): 1, 017003.
- de Rooij, M. M. T., G. Hoek, H. Schmitt, I. Janse, A. Swart, C. B. M. Maassen, M. Schalk, D. J. J. Heederik, and I. M. Wouters. 2019. Insights into Livestock-Related Microbial Concentrations in Air at Residential Level in a Livestock Dense Area, *Environ Sci Technol*, (53): 13, 7746-58.
- de Rooij, M. M. T., L. A. M. Smit, H. J. Erbrink, T. J. Hagenars, G. Hoek, N. W. M. Ogink, A. Winkel, D. J. J. Heederik, and I. M. Wouters. 2019. Endotoxin and particulate matter emitted by livestock farms and respiratory health effects in neighboring residents, *Environ Int*, (132): 105009.
- Erbrink, J.J., D.J.J. Heederik, N.W.M. Ogink, A. Winkel, and I.M. Wouters, 2016, Emissies van endotoxinen uit de veehouderij: emissiemetingen en verspreidingsmodellering [Emissions of endotoxins from animal production: emission measurements and dispersion modelling], Wageningen, Wageningen University and Research, Wageningen Livestock Research report 959.
- Gezondheidsraad, 2012, Health risks associated with livestock farms., The Hague, Health Council of the Netherlands, Publication no. 2012/27E (available from www.healthcouncil.nl).
- Hagenars, T, P Hoeksma, AM de Roda-Husman, A Swart, and I Wouters, 2017, Veehouderij en Gezondheid Omwonenden (aanvullende studies). Analyse van gezondheidseffecten, risicofactoren en uitstoot van bio-aerosolen, Bilthoven, RIVM, RIVM rapport nr 2017-0062, 69 p.
- Heederik, D., Erbrink, H., Farokhi, A., Hagenars, T., Hoek, G., Ogink, N., de Rooij, M., Smit, L., Winkel, A., Wouters, I. , 2019, Risicomodellering veehouderij en gezondheid (RVG): modellering van regionale endotoxineconcentraties en relaties met gezondheidseffecten, Wageningen, Wageningen University and Research, (IRAS UU; no. 2019-01)(WBVR; no. 1910304), 133.

- HEI, 2013, HEI Review Panel on Ultrafine Particles, Understanding the Health Effects of Ambient Ultrafine Particles, HEI Perspectives 3, Boston, MA, Health Effects Institute,
- Lelieveld, J., J. S. Evans, M. Fnais, D. Giannadaki, and A. Pozzer. 2015. The contribution of outdoor air pollution sources to premature mortality on a global scale, *Nature*, (525): 7569, 367-71.
- Loftus, C., M. Yost, P. Sampson, G. Arias, E. Torres, V. B. Vasquez, P. Bhatti, and C. Karr. 2015. Regional PM_{2.5} and asthma morbidity in an agricultural community: a panel study, *Environ Res*, (136): 505-12.
- Loftus, C., M. Yost, P. Sampson, E. Torres, G. Arias, V. Breckwich Vasquez, K. Hartin, J. Armstrong, M. Tchong-French, S. Vedal, P. Bhatti, and C. Karr. 2015. Ambient Ammonia Exposures in an Agricultural Community and Pediatric Asthma Morbidity, *Epidemiology*, (26): 6, 794-801.
- Maassen, K, L Smit, I Wouters, E van Duijkeren, I Janse, T Hagenaaars, J IJzermans, W van der Hoek, and D Heederik, 2016, Veehouderij en gezondheid omwonenden, Bilthoven, RIVM, RIVM rapport 2016-0058, 136 p.
- Ohlwein, S., R. Kappeler, M. Kutlar Joss, N. Kunzli, and B. Hoffmann. 2019. Health effects of ultrafine particles: a systematic literature review update of epidemiological evidence, *Int J Public Health*, (64): 4, 547-59.
- PBL, 2010, Beleidsgericht onderzoeksprogramma fijn stof. Resultaten op hoofdlijnen en beleidsconsequenties., Den Haag/Bilthoven, Planbureau voor de Leefomgeving (PBL), PBL-rapport 500099013/2010,
- Puchalski, M. A., M. E. Sather, J. T. Walker, C. M. Lehmann, D. A. Gay, J. Mathew, and W. P. Robarge. 2011. Passive ammonia monitoring in the United States: comparing three different sampling devices, *J Environ Monit*, (13): 11, 3156-67.
- Schulze, A., H. Rommelt, V. Ehrenstein, R. van Strien, G. Praml, H. Kuchenhoff, D. Nowak, and K. Radon. 2011. Effects on pulmonary health of neighboring residents of concentrated animal feeding operations: exposure assessed using optimized estimation technique, *Arch Environ Occup Health*, (66): 3, 146-54.
- Spaan, S., G. Doekes, D. Heederik, P. S. Thorne, and I. M. Wouters. 2008. Effect of extraction and assay media on analysis of airborne endotoxin, *Appl Environ Microbiol*, (74): 12, 3804-11.
- Sun, J., W. Birmili, M. Hermann, T. Tuch, K. Weinhold, G. Spindler, A. Schladitz, S. Bastian, G. Loschau, J. Cyrus, J. Gu, H. Flentje, B. Briel, C. Asbach, H. Kaminski, L. Ries, R. Sohmer, H. Gerwig, K. Wirtz, F. Meinhardt, A. Schwerin, O. Bath, N. Ma, and A. Wiedensohler. 2019. Variability of black carbon mass concentrations, sub-micrometer particle number concentrations and size distributions: results of the German Ultrafine Aerosol Network ranging from city street to High Alpine locations, *Atmospheric Environment*, (202): 256-68.
- Van Pul, A., H. Van Jaarsveld, T. Van Der Meulen, and G. Velders. 2004. Ammonia concentrations in the Netherlands: Spatially detailed measurements and model calculations, *Atmospheric Environment*, (38): 24, 4045-55.
- WHO, 2006, Air Quality Guidelines. Global Update 2005., Copenhagen World Health Organization,
- Winkel, A., Erbrink, J. J., Wouters, I. M., Huis in 't Veld, J. W. H., Heederik, D. J. J. , Ogink, N. W. M., 2018, Emissies van endotoxinen uit de veehouderij: eindrapport endotoxine metingen = Emissions of endotoxins from animal production: final report on endotoxin measurements ,Wageningen, Wageningen University and Research, (Wageningen Livestock Research rapport; no. 1092), 67 p.
- Winkel, A., I.M. Wouters, A.J.A. Aarnink, D.J.J. Heederik, and N.W.M. Ogink, 2015, Emissies van endotoxinen uit de veehouderij: een literatuurstudie voor ontwikkeling van een toetsingskader, Wageningen, Wageningen University and Resarch, Wageningen Livestock Research Rapport 773

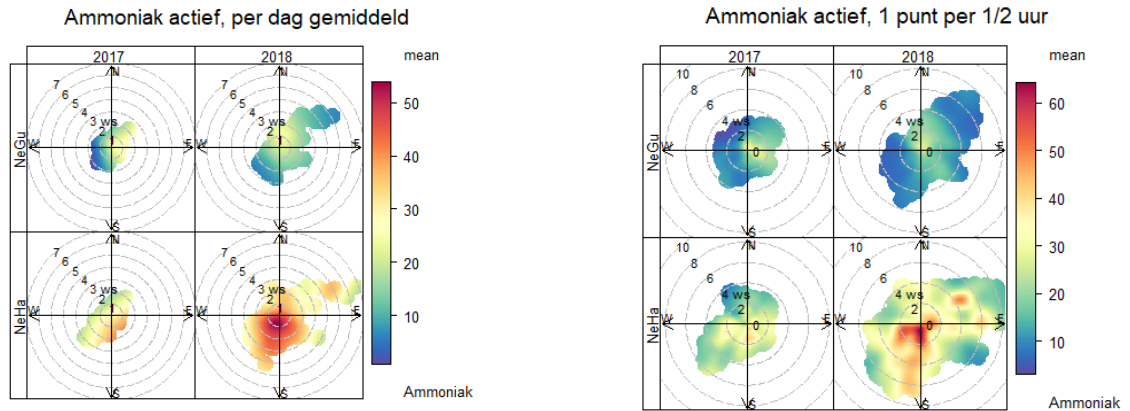
10. Bijlagen

Bijlage1. Overzicht van het aantal dieren in buffers van 500m en 1000m rondom de meetlocaties.

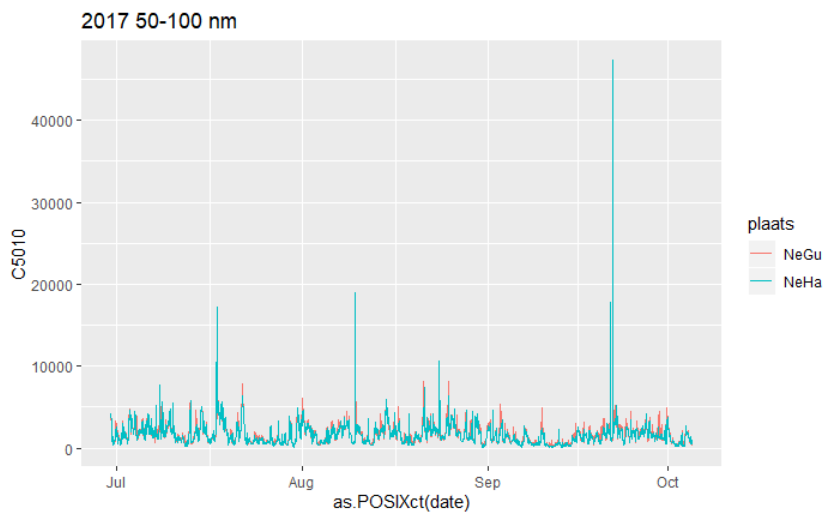
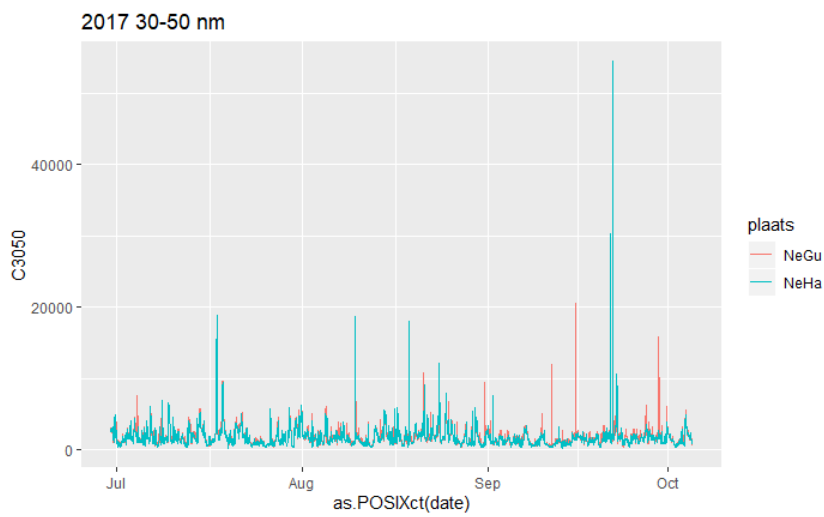
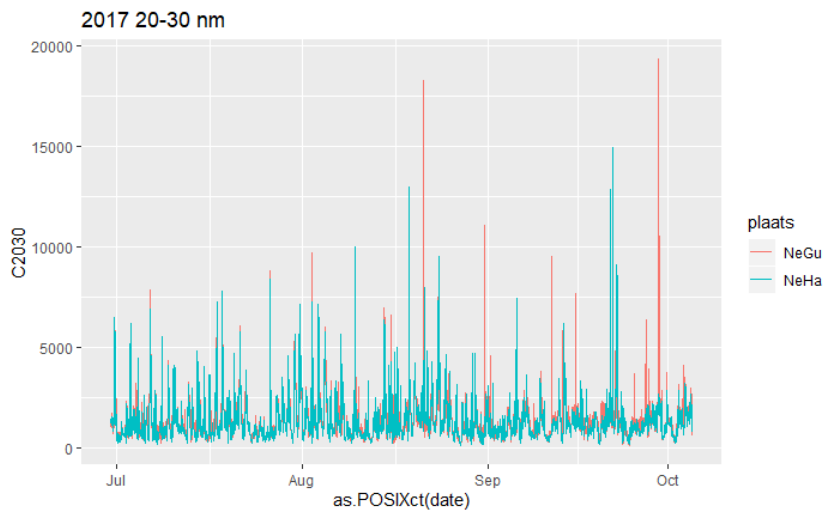
Gemeente	Locatie	afstand tot eerste veehouderij (in m)	in buffer 500m				in buffer 1000m			
			aantal bedrijven	aantal rundvee	aantal varkens	aantal pluimvee	aantal bedrijven	aantal rundvee	aantal varkens	aantal pluimvee
Nederweert	NeHa	151	6	11	19061	278157	21	133	49342	654258
	NeGu	400	2	0	786	0	18	553	12910	229800
	Ne-01	934	0	0	0	0	2	522	4072	0
	Ne-02	267	3	0	2063	9097	24	445	21549	350241
	Ne-03	145	10	21	12644	499718	33	2333	38777	822300
	Ne-06	87	9	354	5850	8522	22	2820	10856	256540
	Ne-07	108	8	666	4681	332780	38	4064	39890	908306
	Ne-08	367	2	0	1520	1440	26	1953	20544	245040
	Ne-09	100	6	0	6322	114300	24	487	27782	200376
Venray	VelJs	424	3	0	6566	73250	22	567	50309	458547
	VeLeu	79	3	111	50	1900	10	111	9874	52100
Horst a/d Maas	HoSe	157	3	306	9858	39950	6	321	13273	39950
	HoMe	165	4	138	1442	0	13	198	23356	483841
	Vree	196	2	155	0	51034	7	4028	5185	51034
Maastricht	MaHo	1444	0	-	-	-	0	-	-	-

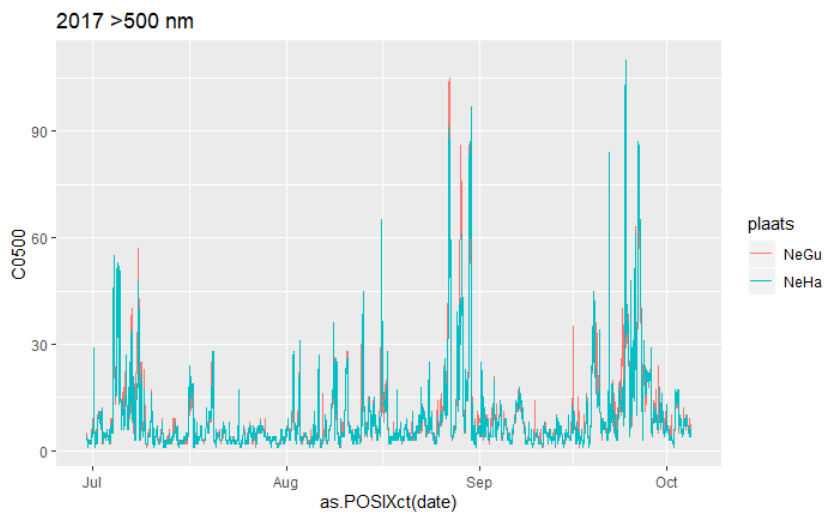
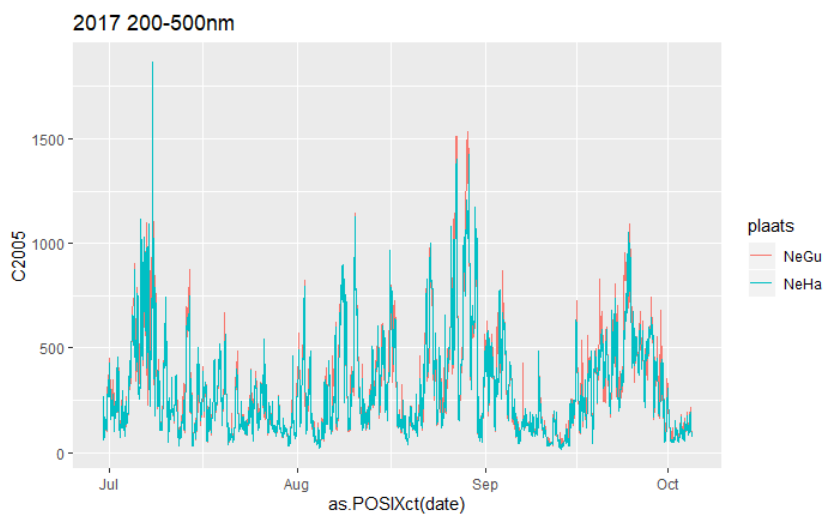
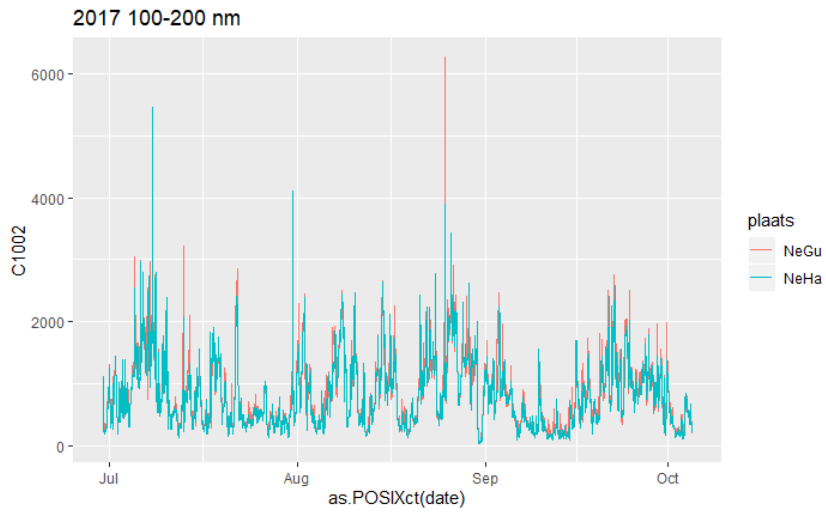
Bijlage 2. Polar plots van dag-gemiddelde (links) en half-uursgemiddelde (rechts) ammoniak concentraties in relatie met windrichting en windsnelheid voor de meetlocaties NeHa en NeGu.

Ook bij 24-uursgemiddelde ammoniak concentraties zijn de patronen van ammoniak concentraties verschillend voor de twee locaties, duidend op een mogelijke bron ten Zuiden van de meetlocatie.

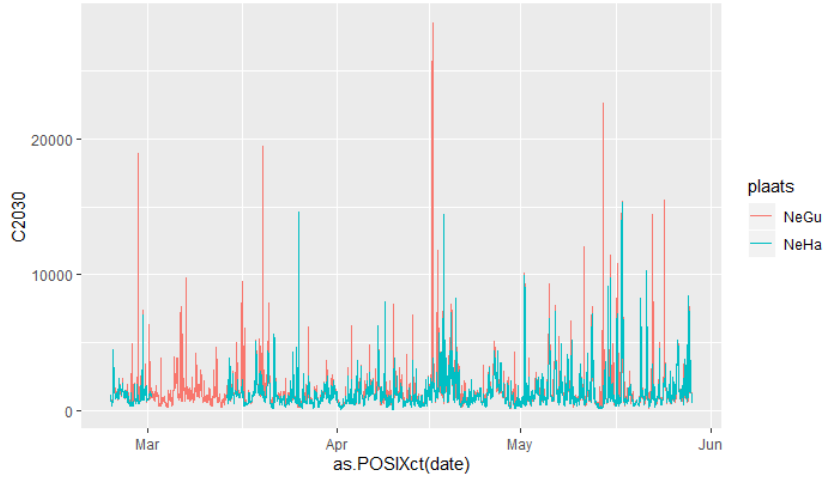


Bijlage 3. Verloop over de tijd van (ultra)fijnstof deeltjes aantallen voor de meetlocaties NeHa en NeGu voor de meetperiode in 2017 en 2018

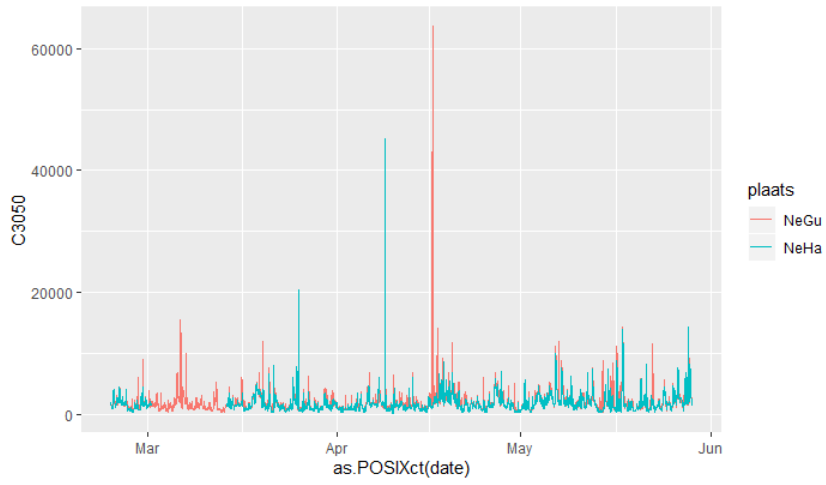




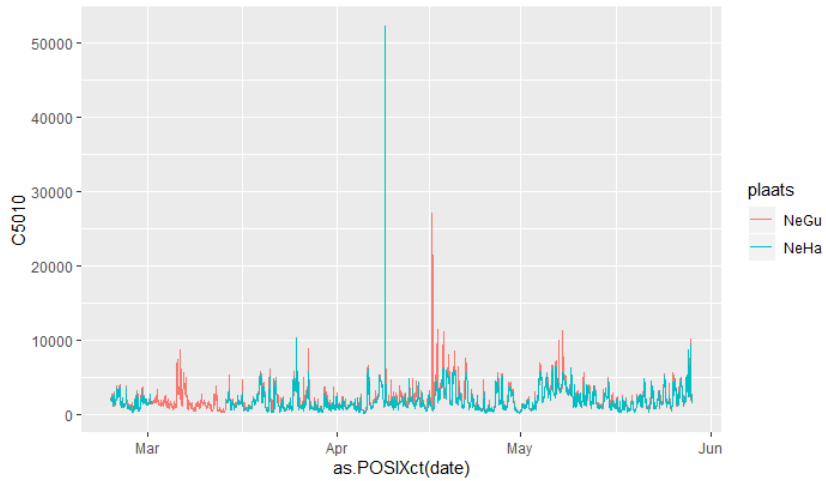
2018 20-30 nm

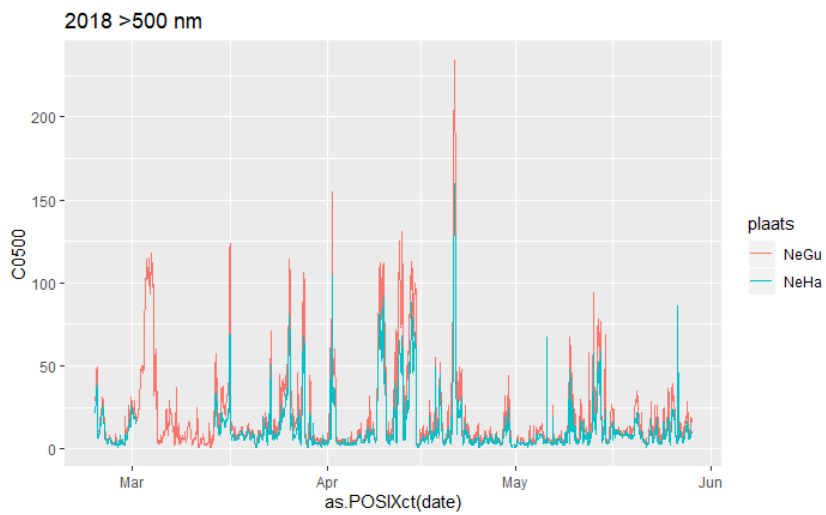
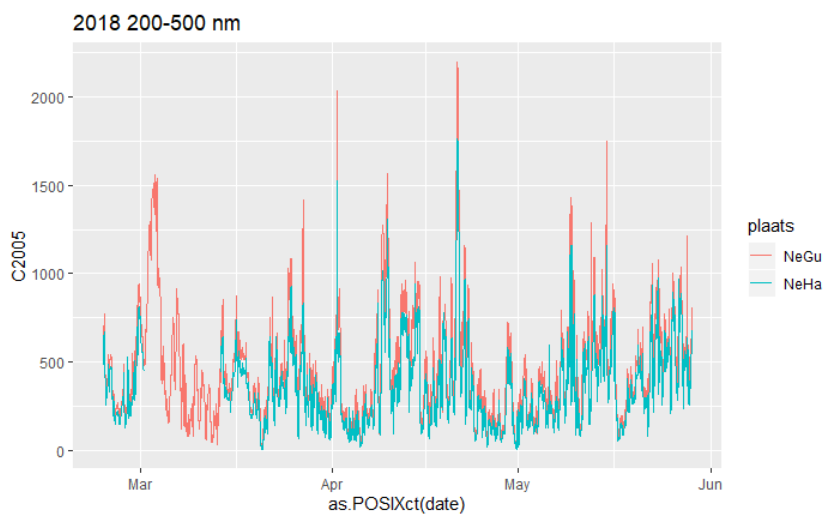
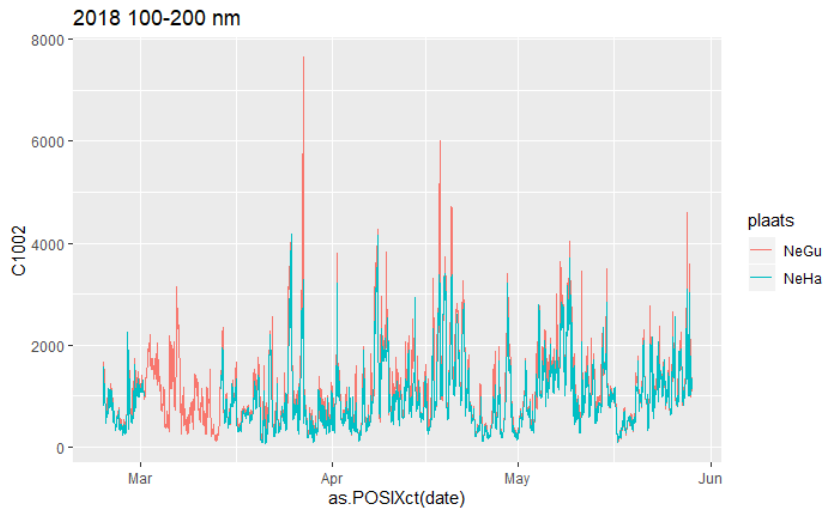


2018 30-50 nm



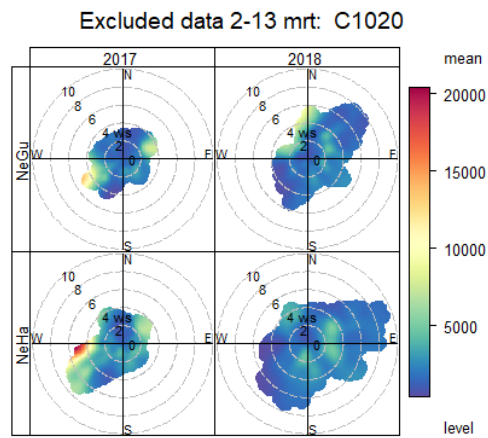
2018 50-100 nm



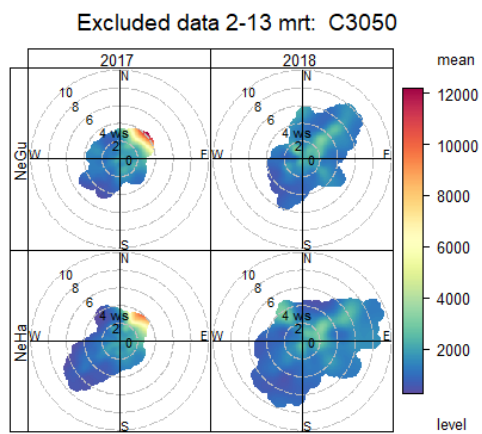


Bijlage 4. Polarplots (ultra)fijnstof deeltjes voor de meetlocaties NeHa en NeGu

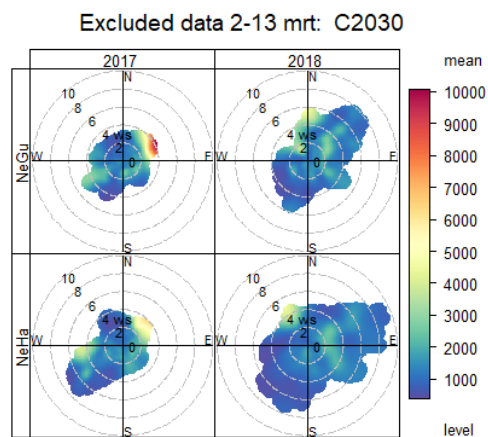
Deeltjesklasse 10-20nm



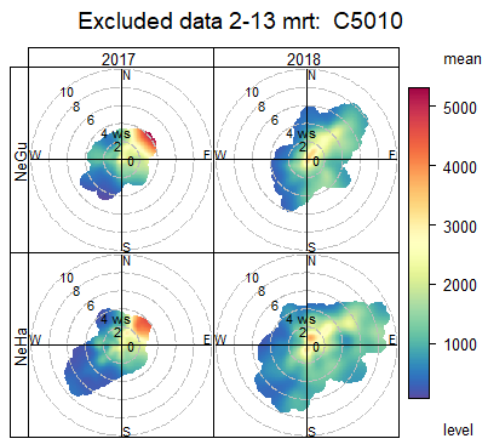
Deeltjesklasse 20-30 nm



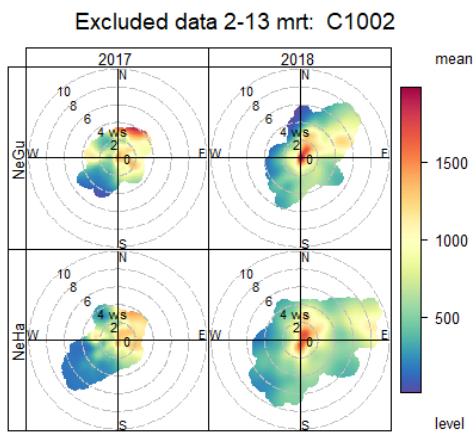
Deeltjesklasse 30-50 nm



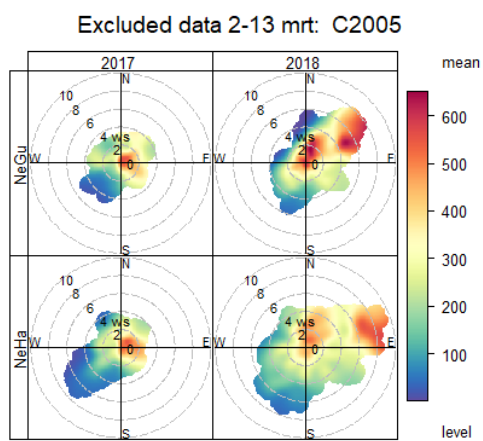
Deeltjesklasse 50-100 nm



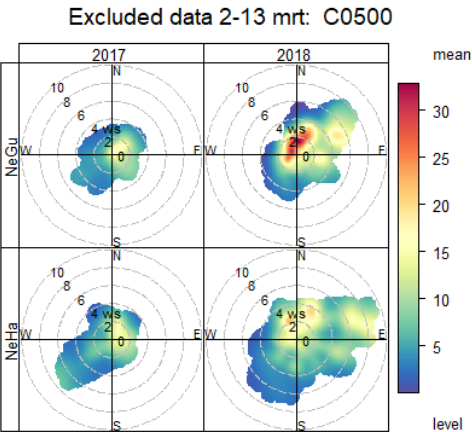
Deeltjesklasse 100-200 nm



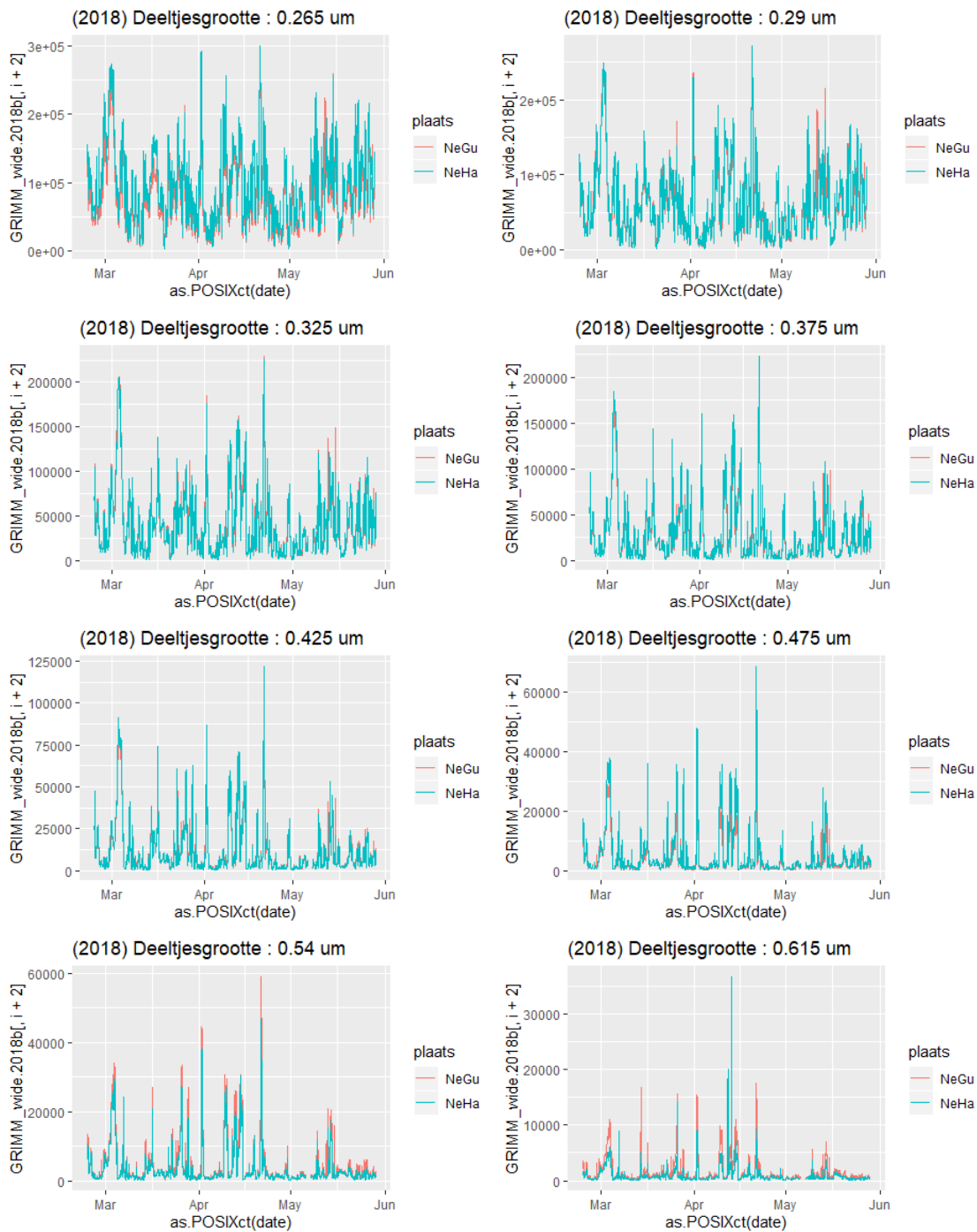
Deeltjesklasse 200-500 nm

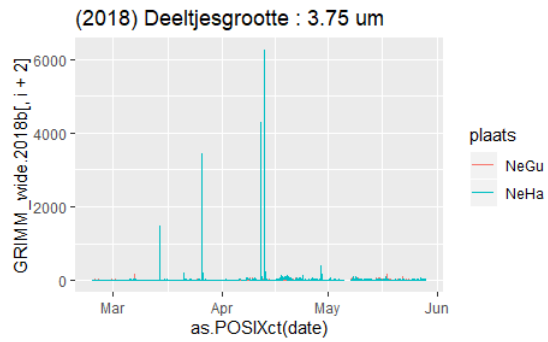
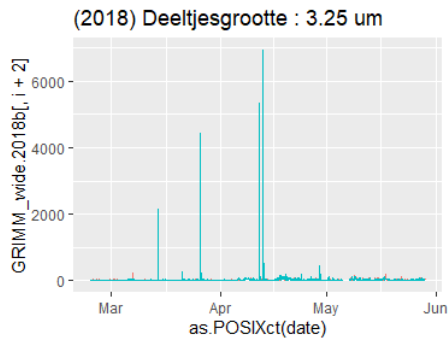
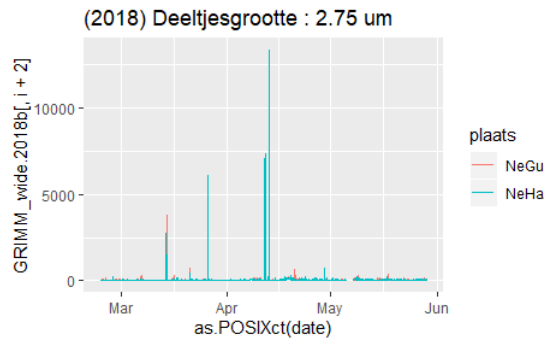
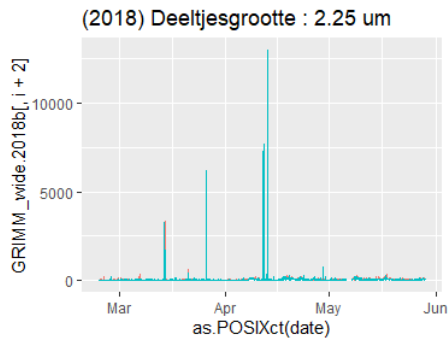
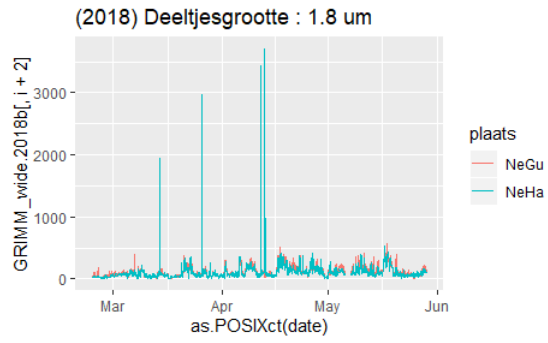
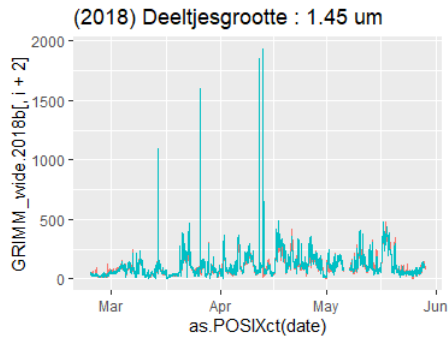
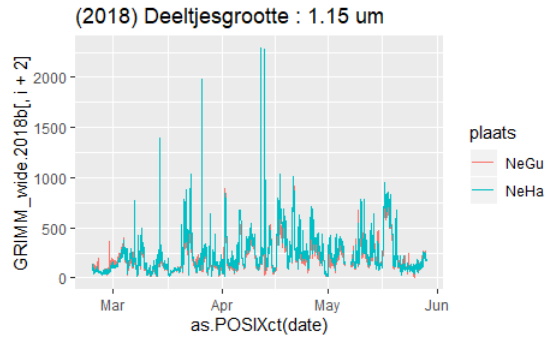
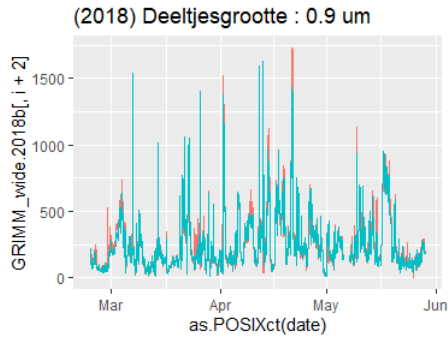
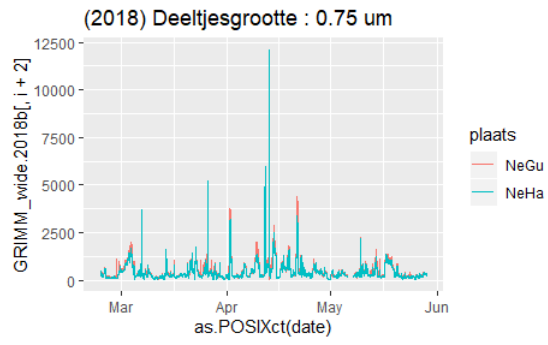
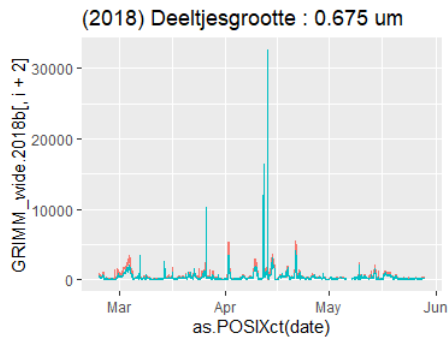


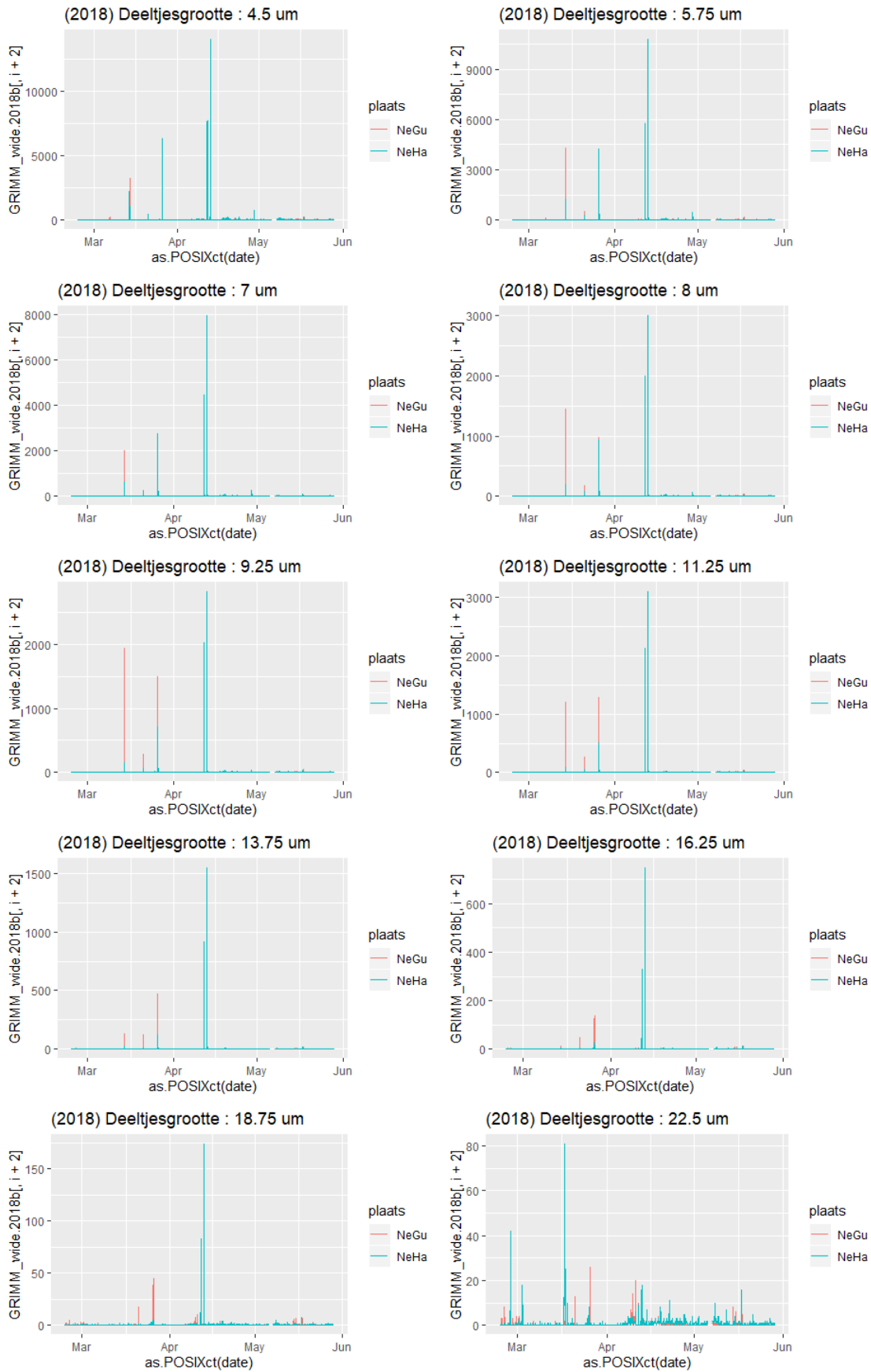
Deeltjesklasse >500 nm

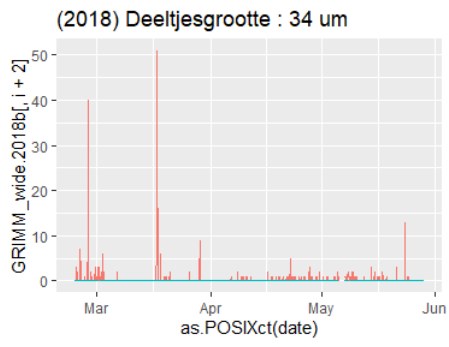
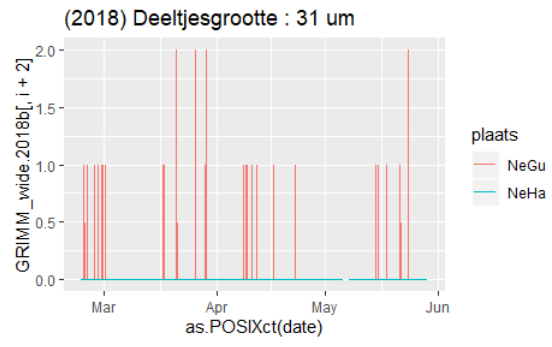
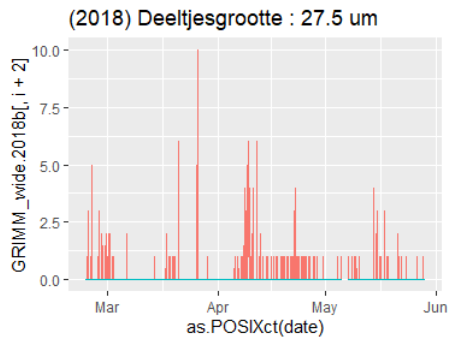


Bijlage 5. Verloop over de tijd in 2018 van fijnstof deeltjesaantallen in 31 GRIMM deeltjesgrootteklassen voor de meetlocaties NeHa (blauw) en NeGu (rood)

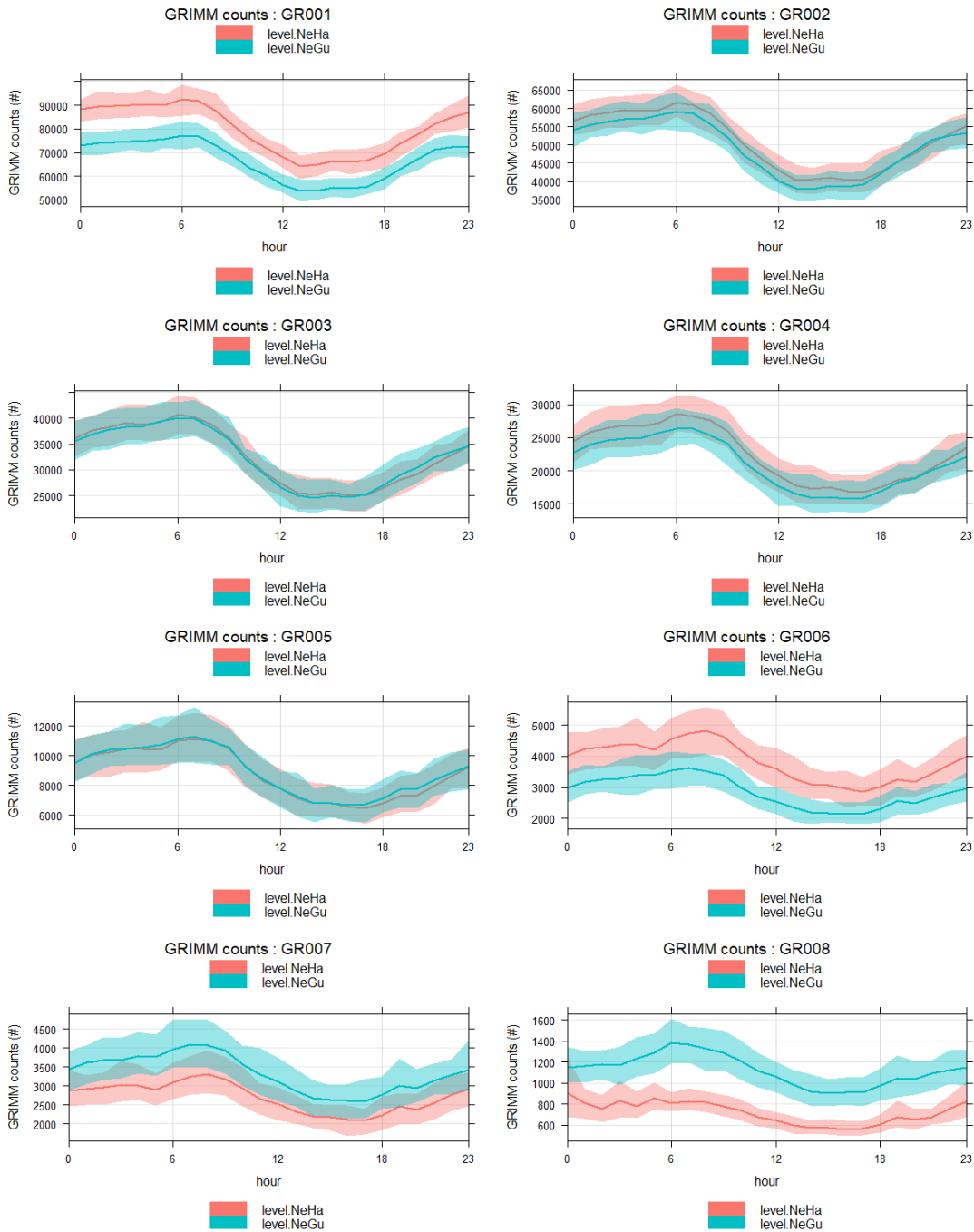


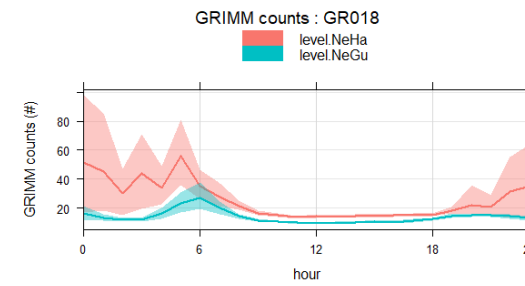
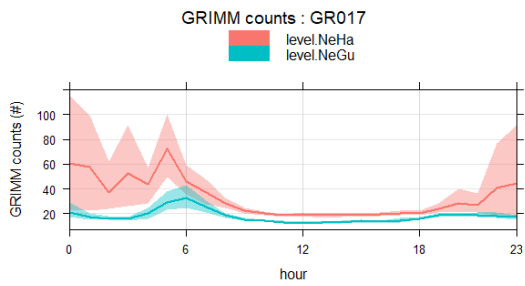
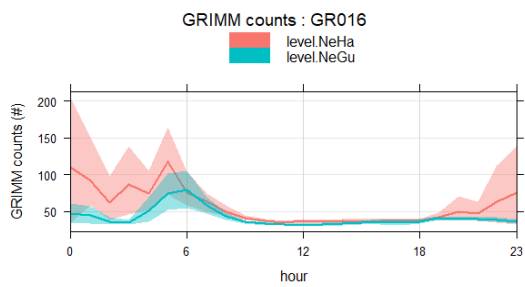
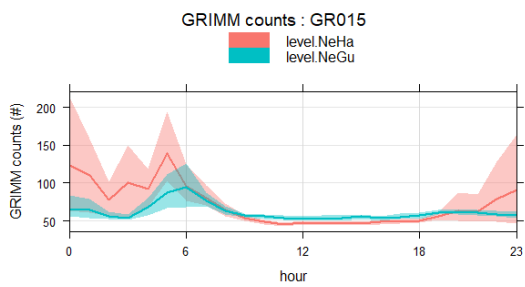
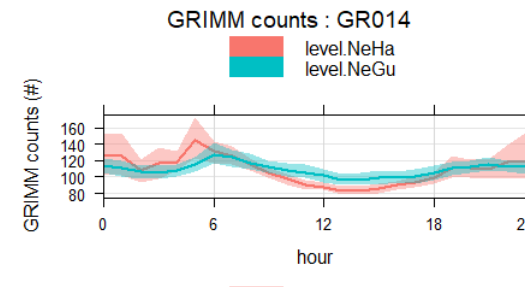
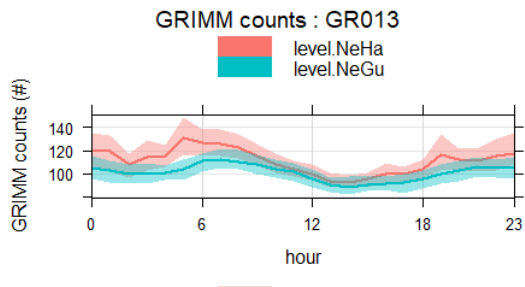
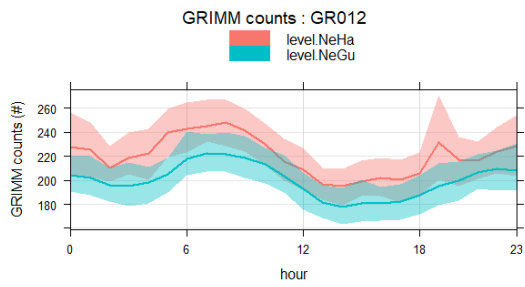
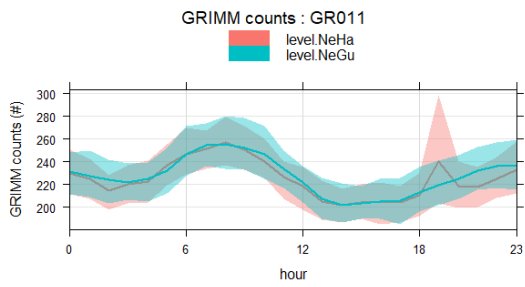
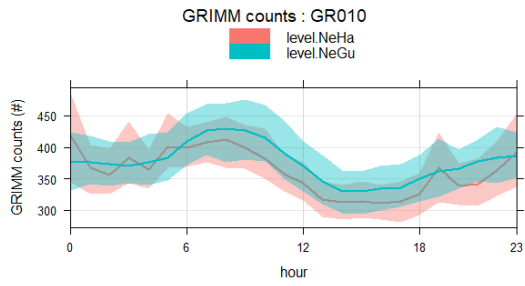
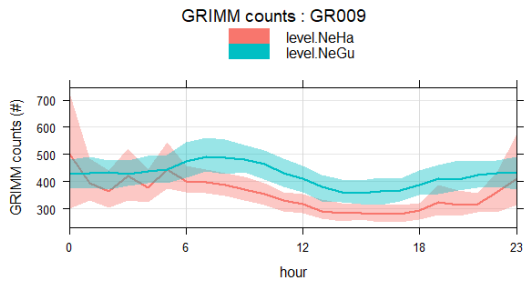


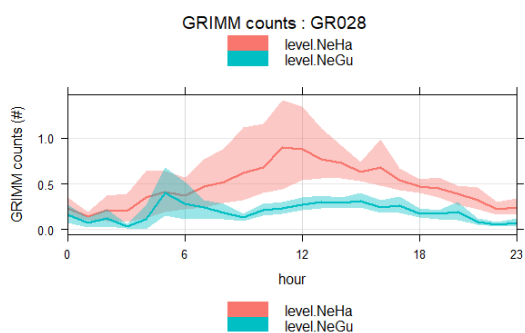
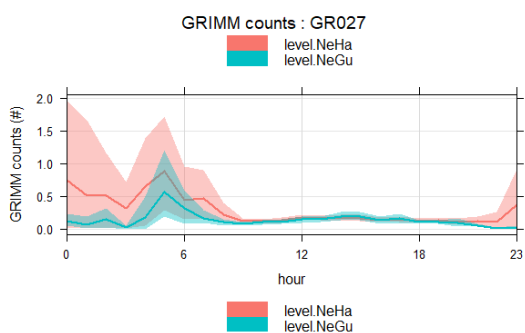
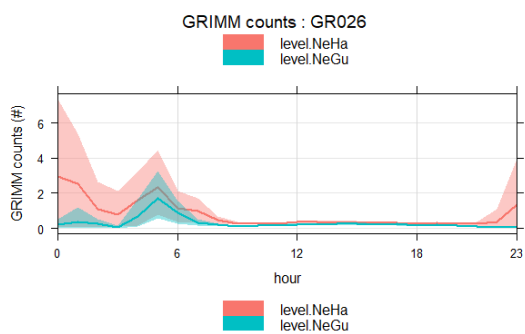
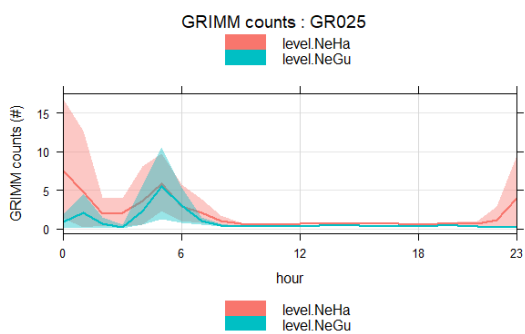
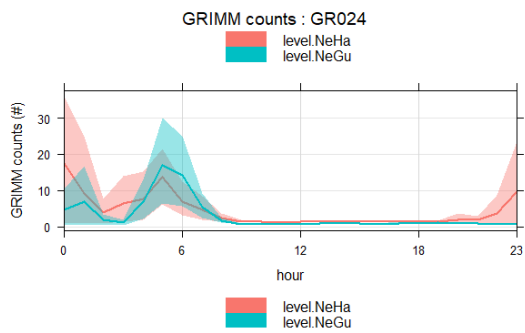
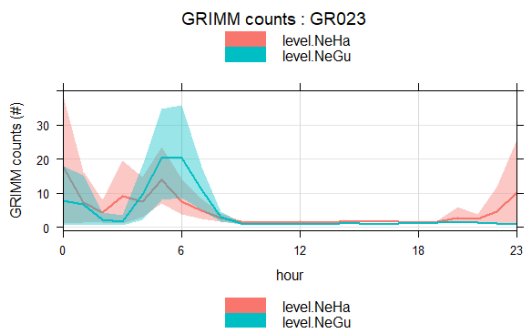
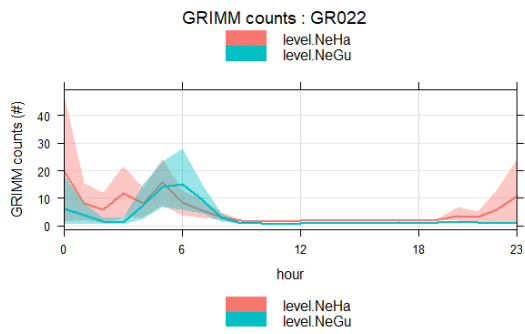
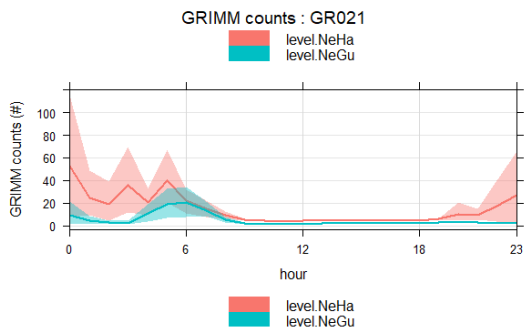
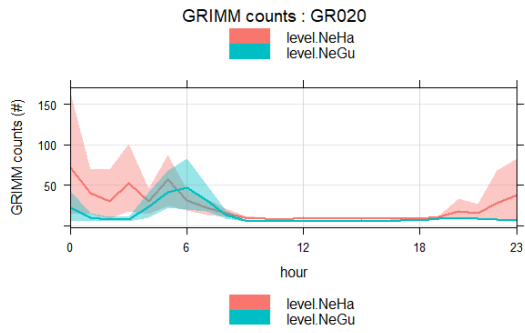
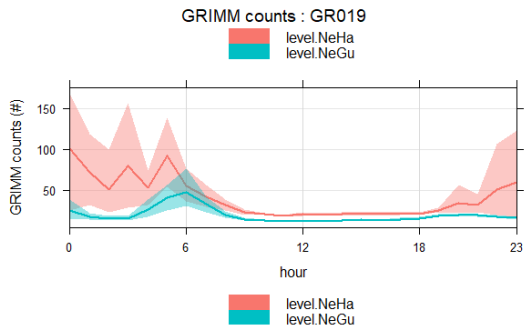


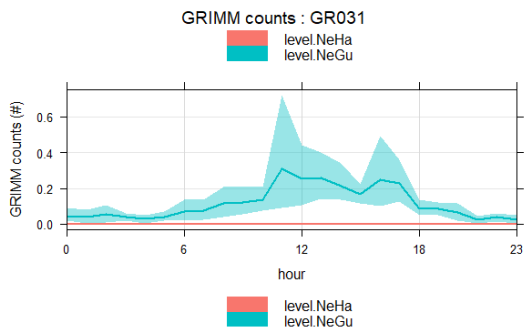
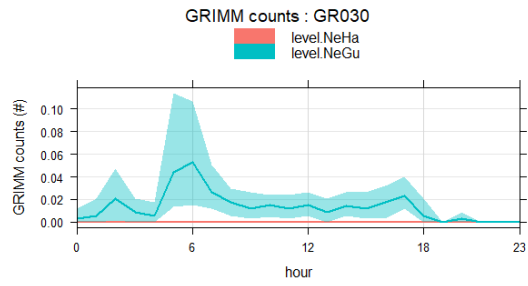
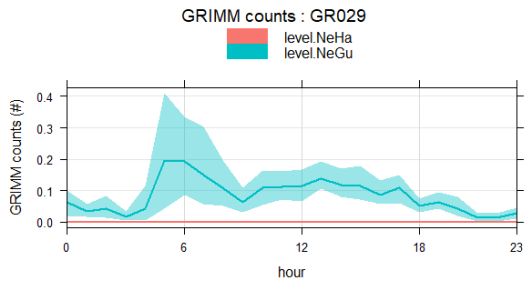


Bijlage 6. Gemiddeld dagpatroon van fijnstof deeltjesaantallen in 31 GRIMM deeltjesgrootteklassen voor de meetlocaties NeHa (rood) en NeGu (blauw)

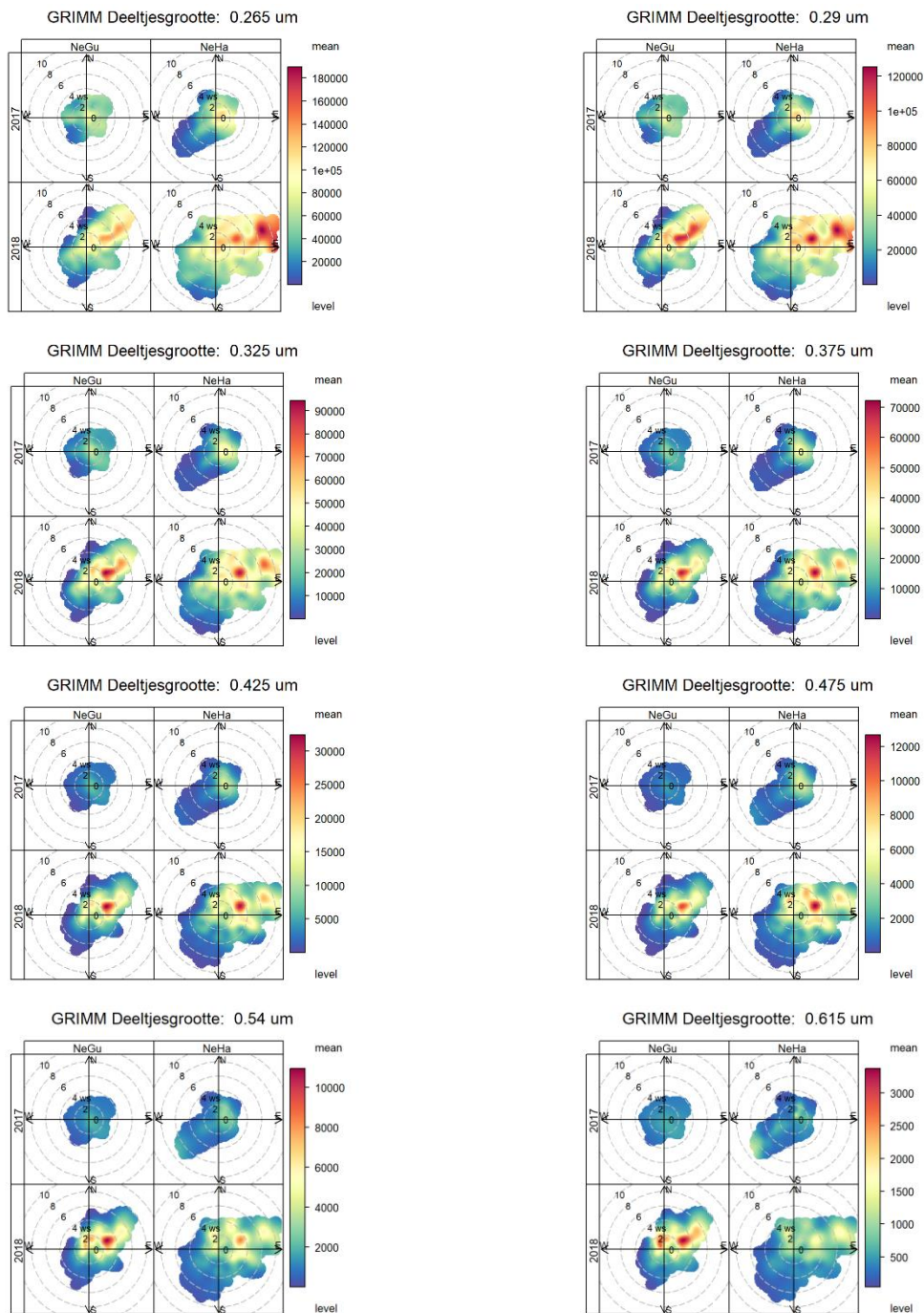


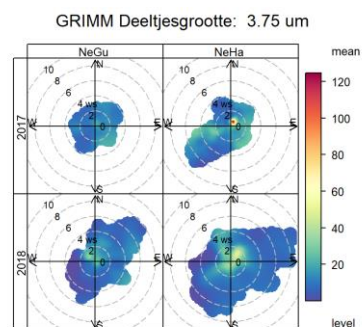
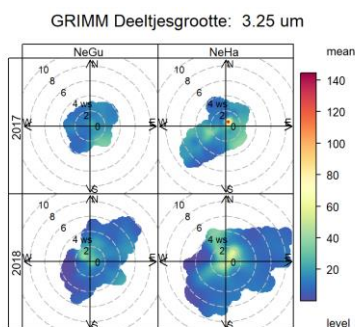
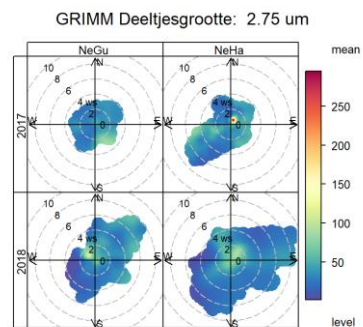
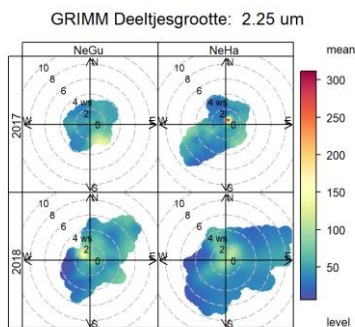
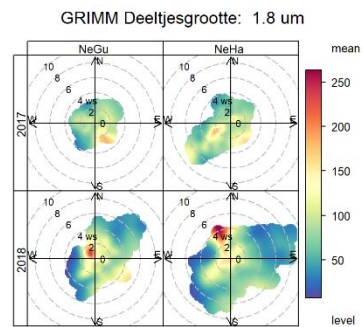
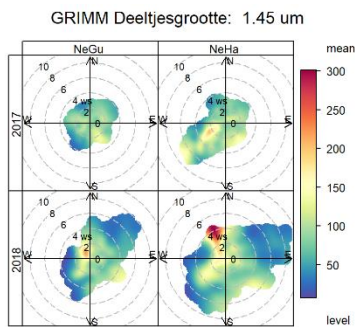
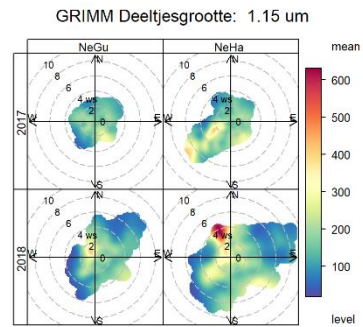
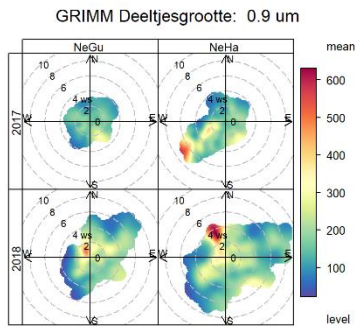
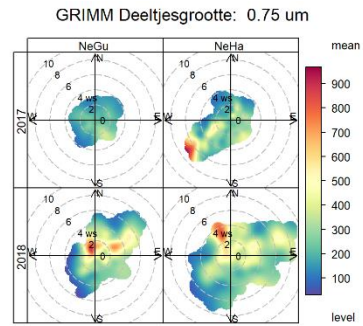
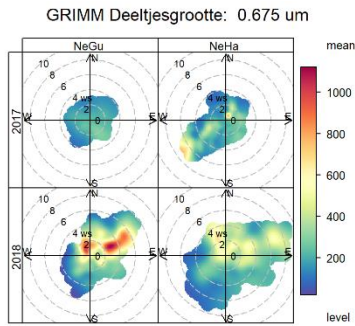


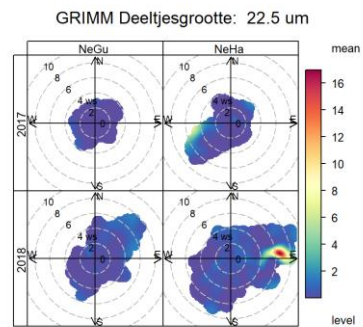
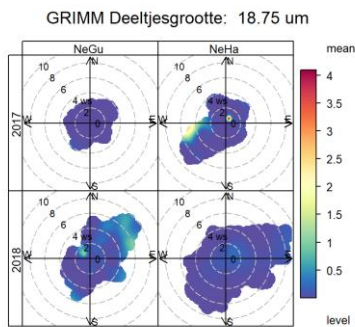
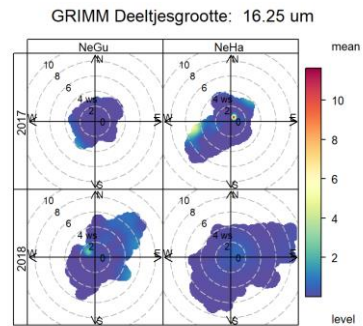
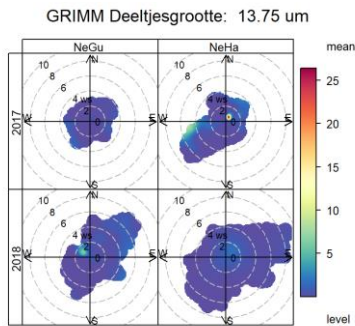
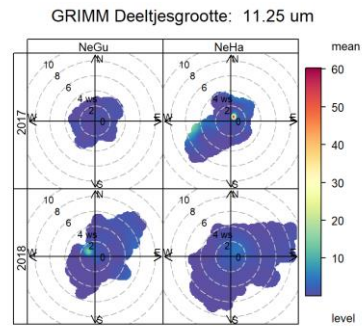
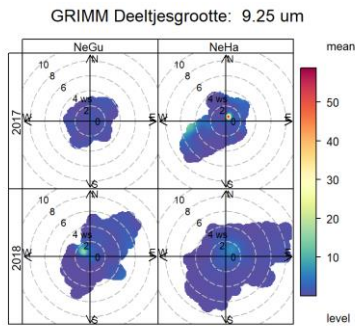
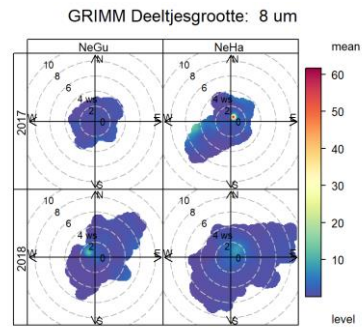
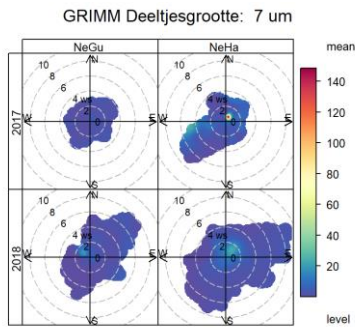
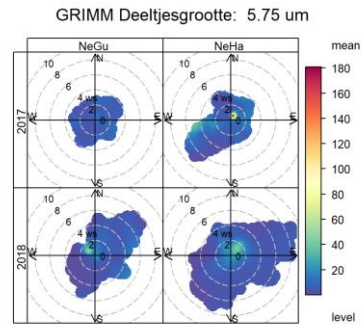
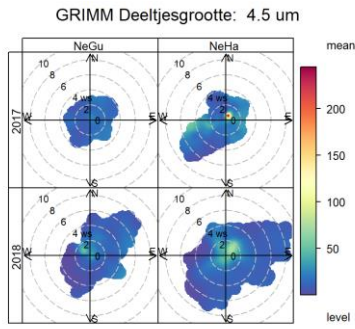




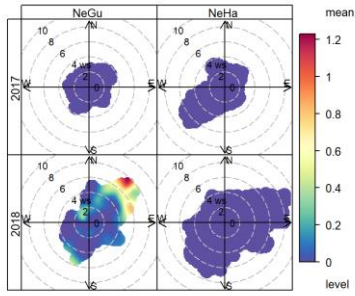
Bijlage 7 Polarplots van fijnstof deeltjesaantallen in 31 GRIMM deeltjesgrootteklassen voor de meetlocaties NeHa en NeGu



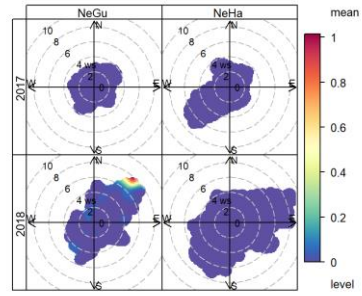




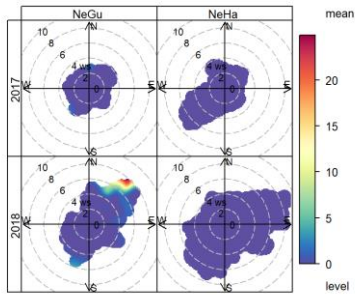
GRIMM Deeltjesgrootte: 27.5 μm



GRIMM Deeltjesgrootte: 31 μm



GRIMM Deeltjesgrootte: 34 μm



Bijlage 8. Detailplots tijdsreeksen 4-uurs endotoxine concentraties

