

RIVM rapport 722108025

**Evaluatie ammoniak emissiereducties met  
behulp van metingen en modelberekeningen**

J.A. van Jaarsveld, A. Bleeker, N.J.P. Hoogervorst

Maart 2000

Dit onderzoek werd verricht in opdracht en ten laste van Directoraat-Generaal Milieubeheer, in het kader van project 722108, “Verzuring”, mijlpaal “Evaluatie emissieberekeningen ammoniak aan de hand van metingen t.b.v. toetsing beleidsvoortgang”.

## Abstract

Ammonia emissions in the Netherlands are estimated using a method in which statistical information on the number of animals is combined with emission factors per animal species, stable type and type of manure application in the field. In the Netherlands' Environmental Balance of 1997 the ammonia emissions were concluded to have been reduced by 35% between 1990-1997. However, in the measurements of ammonia concentrations no trend was observed. The measurements were interpreted using the atmospheric transport model, OPS, as an aid to identifying the reasons for these discrepancies. The ammonia concentrations were calculated by OPS, taking into account the estimated emissions of ammonia and its transport and deposition for the measurement period 1993-1997. The ammonia concentration for this period was thus concluded to be relatively high due to lower rainfall and a lower conversion from ammonia to ammonium aerosol. The latter is caused mainly by the decreasing SO<sub>2</sub> concentrations. In view of these two effects, the ammonia concentration could have been reduced in this period by 12%. An optimization of the comparison between measurements and model calculations by adjusting the ammonia emissions shows an increase in the emissions by manure application in the field as leading to the best results. The factor by which manure application emissions should be increased falls somewhere between 2 and 8, with 3 being a typical value. A better comparison between measurements and modelling results can also be obtained by decreasing the deposition velocity of ammonia. By applying this combination of measurements and modelling it can be concluded that only 45-70% of the foreseen reduction in ammonia by abatement measures has taken place in the period 1993-1997. Explaining the remaining differences between measurements and modelling results will require more research into a) ammonia emissions from manure application in the field, b) spatial distribution of ammonia concentrations over the Netherlands and c) the dry deposition process of ammonia, particularly for dominant land-cover types.

# Inhoud

<b>1. Inleiding</b> .....	<b>7</b>
<b>2. Ammoniak in de atmosfeer</b> .....	<b>8</b>
2.1 <i>NH<sub>3</sub> emissie processen</i> .....	9
2.2 <i>Dispersie en transport</i> .....	9
2.3 <i>Droge depositie van NH<sub>3</sub></i> .....	10
2.4 <i>Natte depositie van NH<sub>3</sub></i> .....	11
2.5 <i>Afbraak van NH<sub>3</sub> door vorming van NH<sub>4</sub></i> .....	11
<b>3. Metingen</b> .....	<b>13</b>
3.1 <i>NH<sub>3</sub>- concentraties</i> .....	14
3.2 <i>NH<sub>3</sub> droge depositie</i> .....	20
3.3 <i>NH<sub>4</sub>-aërosolconcentraties</i> .....	20
3.4 <i>NH<sub>x</sub> natte depositie</i> .....	21
3.5 <i>NH<sub>x</sub> trends uit metingen</i> .....	22
<b>4. Modelbenadering</b> .....	<b>24</b>
4.1 <i>Het TREND/OPS model</i> .....	24
4.1.1 OPS model APV3 versie .....	25
4.1.2 Uitbreidingen OPS model .....	25
4.2 <i>Gebruikte emissies</i> .....	28
4.2.1 Ruimtelijke verdeling van emissies .....	28
4.2.2 Buitenlandse emissies .....	29
4.3 <i>Gebruikte meteorologische gegevens en andere data</i> .....	29
<b>5. Resultaten</b> .....	<b>31</b>
5.1 <i>Vergelijking van modelresultaten met metingen</i> .....	31
5.1.1 Beschrijving van de ruimtelijke verdelingen .....	31
5.1.2 Beschrijving van veranderingen in de tijd .....	34
5.2 <i>Factoren die absolute emissie-concentratierelaties bepalen</i> .....	34
5.3 <i>Kwantificering van trends in emissie-concentratie relaties</i> .....	35
5.3.1 Invloed chemie op NH <sub>x</sub> tijdreeksen .....	36
5.3.2 Invloed chemie en meteorologie op NH <sub>x</sub> tijdreeksen .....	36
5.3.3 Andere factoren die invloed hebben op trends in NH <sub>3</sub> concentraties .....	37
5.4 <i>Schatting van de trend in ammoniakemissies in Nederland</i> .....	39
5.5 <i>Invloed aanwendingsemissies versus stalemissies</i> .....	40
5.5.1 Optimalisatie emissiesoorten op basis van ruimtelijke verdelingen .....	42
5.5.2 Optimalisatie emissiesoorten op basis van verspreidings-eigenschappen .....	43

---

5.5.3	Optimalisatie van emissiesoorten op basis van seizoensverloop .....	44
5.5.4	Conclusies uit de optimalisatie van emissiesoorten.....	46
<b>6.</b>	<b>Herziening van berekeningsmethodiek NH<sub>3</sub> emissies .....</b>	<b>47</b>
6.1	<i>Verbeteringen van de berekeningsmethodiek landbouwemissies</i> .....	47
6.1.1	Algemeen .....	47
6.1.2	Uitrijden van mest.....	48
6.1.3	Emissies door melkvee.....	50
6.1.4	Emissies uit stallen.....	50
6.2	<i>Emissies van niet-landbouwbronnen</i> .....	51
<b>7.</b>	<b>Conclusies en aanbevelingen .....</b>	<b>53</b>
	<b>Literatuur.....</b>	<b>57</b>
	<b>Bijlage 1 Schatting van mestaanwendingsactiviteit .....</b>	<b>60</b>
	<b>Bijlage 2 Verzendlijst.....</b>	<b>62</b>

## Samenvatting

Ammoniakemissies worden in Nederland bepaald volgens een methode waarbij statistische gegevens over de veestapel worden gecombineerd met emissiefactoren per diersoort, staltype en gebruikte mestaanwendingstechniek. In de Milieubalans van 1997 is geconstateerd dat aldus verkregen ammoniakemissies in de periode 1990-1997 met 35 % dalen. In de gemeten concentraties van ammoniak in de buitenlucht wordt echter geen daling waargenomen. Daarnaast wordt geconstateerd dat modelberekeningen op basis van deze emissies in de jaren tachtig beter overeenstemden met metingen (binnen ca.15 %) doch in de jaren negentig een flinke onderschatting laten zien.

Van deze discrepantie is reeds eerder melding gemaakt in publikaties en heeft ertoe geleid dat de ministeries van VROM en LNV de Tweede Kamer daarover hebben geïnformeerd. Dit rapport doet verslag van het onderzoek dat sindsdien is uitgevoerd om de verschillen in kaart te brengen en de oorzaken te verklaren. De gevolgde werkwijze bestaat uit een analyse van de diverse metingen, een nadere analyse van relevante atmosferische processen en daaruit volgend een betere modelbeschrijving en tenslotte - uit de combinatie van metingen en modelberekeningen - een analyse van hoe het gat tussen metingen en emissies kan worden gesloten. Het hier toegepaste en verbeterde model is het OPS-model.

De kern van het onderzoek wordt gevormd door het gegeven dat ammoniakconcentraties weliswaar de meest directe afspiegeling vormen van ammoniakemissies, maar toch niet één op één kunnen worden gekoppeld aan deze emissies. Weersomstandigheden bepalen niet alleen de mate waarin ammoniak in de lucht verdunt, maar ook de snelheid waarmee ammoniak uit de lucht wordt verwijderd via natte en droge depositie. Tegelijkertijd kent de snelheid waarmee ammoniak uit mest verdampt een koppeling met dezelfde weersomstandigheden. Deze koppeling is voor emissies uit stallen minder sterk dan voor emissies uit aanwending van mest. Dit alles zorgt voor een jaar tot jaar variatie in ammoniak-concentraties die trends in emissies niet snel zichtbaar doet maken. Belangrijk is ook het gegeven dat de vorming van ammonium uit ammoniak indirect afhankelijk is van de niveaus van zwaveldioxide- en stikstofdioxideconcentraties in de buitenlucht.

Door de geringere afhankelijkheid van stalemissies van de weersomstandigheden blijken deze emissies relatief sterker door te werken op ammoniakconcentraties dan emissies uit aanwending van mest. In 1997 vormden de stal- en opslagmissies ca. 60% van de totale Nederlandse emissies en veroorzaakten ca. 80% van de ammoniakconcentraties (op de 8 meetpunten van het LML), emissies uit aanwending van mest vormden 17% van het totaal en veroorzaakten slechts 10% van de concentraties. Aangezien de emissiedaling in de periode 1990-1997 van 35% vooral betrekking heeft op aanwendingemissies, zou de doorwerking hiervan op de ammoniakconcentraties maximaal ca. 20% hebben kunnen zijn.

De periode waarop het onderzoek zich heeft geconcentreerd is 1993-1997, omdat voor deze periode een consistente set metingen beschikbaar was. In de beschouwde periode waren de jaren 1995, 1996 en 1997 betrekkelijk droge jaren met relatief lage windsnelheden t.o.v. 1993. Hierdoor was de concentratie van ammoniak relatief hoog. Dit gecombineerd met een verminderde omzetting onder invloed van dalende SO<sub>2</sub> concentraties zorgt ervoor dat, ondanks een constant niveau van gemeten ammoniakconcentraties, in de periode tussen 1993 en 1997 zich toch een emissiedaling van 12% kan hebben voorgedaan. Deze daling heeft dan wel

betrekking op de landelijke schaal met de huidige verhouding tussen stal- en aanwendingsemissies.

Op basis van de verspreidingseigenschappen van verschillende emissiesoorten (stal, aanwending, kunstmest, buitenland en overig), de ruimtelijke verdeling over Nederland en de temporele verdeling over het jaar is geanalyseerd bij welke verandering van emissies de overeenstemming tussen metingen en modelberekeningen optimaal is. In alle gevallen blijkt dat verhoging van emissies van het type aanwending tot een betere overeenstemming leidt. De verhogingsfactoren die hier uit volgen liggen in het bereik van 2 tot 8, met een factor 3 als de meest waarschijnlijke. De beste potentiële kwantificering kon gemaakt worden op basis van het seizoensverloop van ammoniakconcentraties omdat deze sterk gerelateerd zijn aan mestuitrijactiviteiten. De verhogingsfactor die hier uit volgt heeft het bereik van 1.3-4 met de indicatie dat de verhogingsfactor kleiner is in de jaren 1994 - 1995 en groter in de jaren 1996 - 1998.

Een betere overeenstemming met metingen kan bij enkele van de uitgevoerde optimalisaties ook worden gevonden wanneer wordt verondersteld dat de droge depositiesnelheden in droge en warme situaties veel lager is dan tot nu toe aangenomen of zelfs negatief (emissie) is. Dit aspect dient nader te worden onderzocht.

In een door DLO en RIVM uitgevoerd onderzoek naar verbetering van de methodiek van emissieberekening, komt naar voren dat met name de berekening van aanwendingsemissies aanpassing behoeft (RIVM-notitie LLO/1058/99). Het resultaat van deze aanpassing leidt ruwweg tot een verdubbeling van de emissie door aanwending in 1997. Modelberekeningen op basis van deze aanpassing leiden tot een daling van  $\text{NH}_3$  concentraties in de periode 1990-1997 met ongeveer 10%. Hiermee wordt dus slechts een deel van het verschil tussen berekende en gemeten waarden verklaard.

Naast het verschil in trends, ligt de berekende concentratie sinds 1984 systematisch ruwweg 15% onder de gemeten concentratie. Ook de natte depositie wordt op deze manier systematisch onderschat met ongeveer 20%. Mogelijke verklaringen hiervoor zijn a) er is een overschatting van de in het model gebruikte droge depositiesnelheden voor gras en bouwland en b) de buitenlandse emissies zijn onderschat.

Vooralsnog kan worden gesteld dat het ammoniakbeleid tot minder emissiereductie heeft geleid dan tot nu toe werd aangenomen. Uit de combinatie van metingen en modelberekeningen kan worden geconcludeerd dat in de periode 1993-1997 slechts 45-70% van de eerder berekende reductie heeft plaatsgevonden.

Een verdere verklaring van nog resterende verschillen tussen metingen en berekeningen vereist nader onderzoek naar emissies van mest en met name van die van tengevolge van aanwending. In termen van de atmosferische processen bevat het droge depositieproces nog grote onzekerheden. Systematische monitoring van de droge depositiesnelheden voor dominante landgebruiksoorten (gras) zou daarvoor een oplossing bieden. Daarnaast zouden gerichte ammoniakconcentratiemetingen moeten worden uitgevoerd om de situatie in delen van Nederland beter in kaart te brengen.

# 1. Inleiding

De rol van atmosferisch ammoniak in de verzuring en vermisting van natuurgebieden is reeds begin jaren tachtig onderkend. Emissies uit de landbouw werden als de voornaamste bron van dit atmosferisch ammoniak aangewezen. Dit heeft geleid tot het Plan van aanpak bestrijding van ammoniak emissies van de landbouw (LNV en VROM, 1990), het Bestrijdingsplan Verzuring (VROM, 1989), diverse NMP's en de Interimwet Ammoniak en Veehouderij (VROM en LNV, 1994). De in deze plannen geformuleerde maatregelen in combinatie met implementatiegraden en autonome (volume)ontwikkelingen in de landbouw zouden in 1995 een emissiedaling hebben opgeleverd van 37% ten opzichte van 1990 (Milieubalans, RIVM, 1997).

De ultieme toetsing van de doeltreffendheid van maatregelen is een waarneembare vermindering van schadelijke effecten op ecosystemen. Voorbeelden: toenemende bosvitaliteit, terugkeer soortenrijkdom enz. Omdat veel van deze effecten pas met vertraging zichtbaar worden is dit niet een geschikte weg om er terugkoppeling richting beleid op te baseren. In de keten -emissie, verspreiding, depositie, effecten- geven waarnemingen in het deel verspreiding een directer zicht op hoe emissies zich ontwikkelen. De keten is voor ammoniak gegeven in Figuur 1.

Het Landelijk Meetnet Luchtverontreiniging (LML) is opgezet mede om trends in atmosferische concentraties te volgen en van daaruit de gevolgen van gevoerd emissiebeleid waar te nemen. De NH<sub>3</sub> waarnemingen in dit meetnet welke eind 1992 zijn gestart lieten medio 1997 nog geen daling zien. Deze constatering heeft geleid tot een eerste onderzoek van deze en andere meetdata in combinatie met op de officiële emissies gebaseerde verspreidingsberekeningen (Erisman, Bleeker en van Jaarsveld, 1998). Uit de resultaten wordt geconcludeerd dat de veronderstelde emissiedaling veel minder moet zijn geweest.

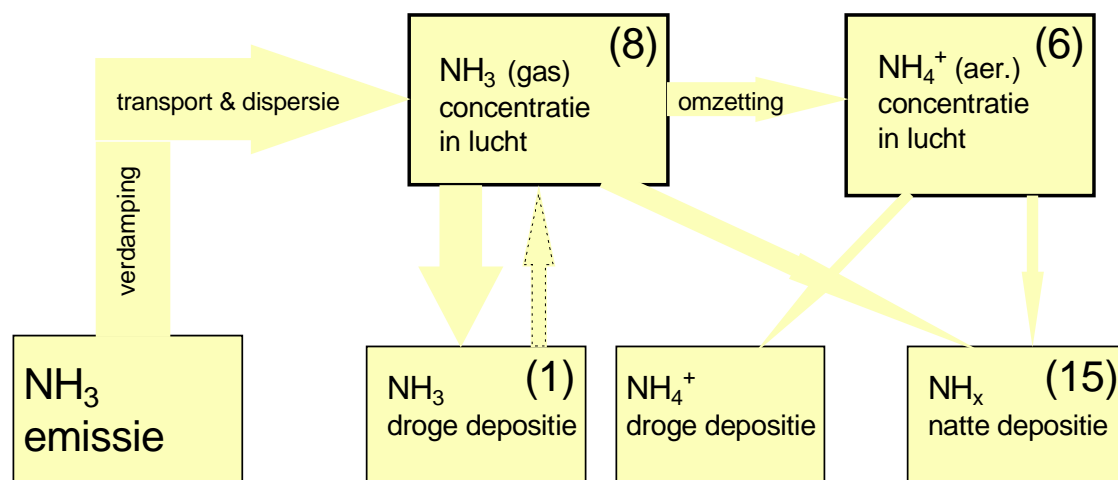
Dit rapport richt zich op een analyse van de geconstateerde verschillen tussen verwachtingen en werkelijkheid. Het gebruik van recente meetgegevens kan daarbij eerdere conclusies bevestigen of harder maken. Een belangrijk onderwerp in dit rapport is ook de modellering van het proces tussen emissie en depositie en de rol van niet-lineairiteiten daarin. Er vanuitgaande dat eerdere conclusies over emissiedalingen juist zijn, zal uit het geheel van metingen, emissies en modellering worden getracht aanwijzingen te vinden waar en in welke mate huidige aannamen te kort schieten. De werkwijze is als volgt: eerst wordt een korte beschrijving gegeven van de belangrijkste atmosferische processen en hun belang in relatie tot veranderingen in de tijd. Daarna worden achtereenvolgens de metingen en de modelbenadering toegelicht. Vervolgens wordt de vergelijking tussen metingen en modelberekeningen geëvalueerd en wordt getracht oorzaken aan te wijzen en zo mogelijk te kwantificeren. Als laatste wordt een overzicht van de herziening van de berekeningsmethodiek van ammoniakemissies gegeven.

## 2. Ammoniak in de atmosfeer

Vrijwel alle stoffen die vanaf de aarde in de atmosfeer worden gebracht zullen daar vroeg of laat ook weer naar terugkeren, hetzij in dezelfde chemische vorm hetzij in een andere. De atmosfeer functioneert in deze niet alleen als een transportmedium maar ook als een reactievat waarin stoffen reageren met andere stoffen welke tenslotte via reinigingsprocessen als wolkenvorming en neerslag weer op aarde worden gedeponereerd. Atmosferische eigenschappen als temperatuur, windsnelheid, zonnestraling en neerslag grijpen in op alle fasen van het atmosferische verblijf. In Figuur 1 zijn de onderdelen van de keten, -emissie, dispersie, transport, omzetting en depositie-, van ammoniak schematisch aangegeven. De dikte van de pijlen geeft hierbij bij benadering het belang van de paden weer. Ammoniak verdampt vanuit mest en wordt met de wind meegevoerd. Tijdens dit transport treedt er omzetting op naar ammoniumzouten ( $\text{NH}_4^+$ ). Tegelijkertijd verdwijnt er ammoniak naar de bodem via droge depositie (continu) en natte depositie (discontinu). Een deel van wat is gedeponereerd kan onder bepaalde condities weer verdampen (re-emissie).

Door het uitvoeren van metingen kunnen de concentratieniveaus in de compartimenten worden bepaald en kan van daaruit inzicht worden verkregen in de bepalende processen. Het aantal meetpunten van het Landelijk Meetnet Luchtverontreiniging (LML) in de diverse compartimenten is in de figuur tussen haakjes weergegeven.

Wanneer we inzicht willen verkrijgen in de emissies van ammoniak in een gebied, dan vormen ammoniakconcentraties de meest directe maat volgens de keten in Figuur 1. Het is echter zo dat gemeten ammoniakconcentraties het evenwicht aangeven tussen enerzijds emissies en emissieprocessen en anderzijds verliesprocessen als omzetting en depositie. Gezien de dynamiek in deze processen is het moeilijk om ammoniakconcentratie-veranderingen te interpreteren als emissieveranderingen. Het gebruik bij de interpretatie van een verspreidingsmodel met daarin opgenomen de relevante processen en dynamiek is daarom onontkoombaar. Op deze manier kunnen ook de metingen in de andere compartimenten in samenhang worden gebruikt.



*Figuur 1. De emissie, dispersie, transport, omzetting en depositie keten voor ammoniak en daaruit gevormd ammonium. De dikte van de pijlen geven bij benadering de omvang van de diverse routes. Het aantal meetpunten van het Landelijk Meetnet Lucht (LML) voor de diverse compartimenten zijn tussen haakjes aangegeven*



## 2.1 NH<sub>3</sub> emissie processen

De vervluchtiging van ammoniak uit dierlijke mest wordt bepaald door de dampspanning van ammoniak, de diffusiesnelheid van ammoniak in lucht en de turbulentie intensiteit van de lucht en het concentratieverschil tussen ammoniak in de mest en ammoniak in de lucht direct boven de mest. De dampspanning is niet constant maar afhankelijk van vooral de temperatuur. De snelheid waarmee ammoniak kan ontwijken uit de mest wordt vooral bepaald door de mate waarin ammoniak vanuit de oppervlaktelaag wordt weggevoerd door turbulentie en advectie. Emissievariaties vinden dus plaats onder invloed van temperatuur en atmosferische turbulentie. Deze twee parameters hebben soms een hoge positieve correlatie b.v. op een zonnige dag in de zomer. De hoogste verdampingsemissies zijn dus te verwachten wanneer de zon het hoogst staat waardoor de emissies een typisch dag- en jaarverloop vertonen.

Omdat het klimaat in stallen anders is dan het buitenklimaat kent ammoniak dat uit stallen ontwijkt een gematigder variatie in tijd dan emissies uit mest dat op het land is uitgespreid.

De overige processen in de verspreidingsketen (dispersie, transport, droge depositie) worden voor een belangrijk deel door dezelfde meteorologische parameters gedreven als de emissie. Het is daarom zaak om de variaties in ammoniakemissies zo goed mogelijk in kaart te brengen en steeds mee te nemen als waarnemingen van concentraties en deposities worden beschouwd.

Naast autonome variaties in emissies kan ook het menselijk handelen leiden tot aan meteorologische factoren gerelateerde patronen in de emissie. Er zijn voorschriften die er op gericht zijn om geen ammoniak op het land uit te rijden wanneer het gewas dit niet op zal nemen. Dit is vooral in wintertijd waarin de ammoniakvervluchtiging laag is maar ook de atmosferische verdunning. Binnen dit systeem zal geen mest worden verspreid als het land onbegaanbaar is door langdurige regenval. Bovendien zal de mest vooral overdag worden aangewend wanneer verspreidingscondities goed zijn maar ook de verdampingscondities. Er is op voorhand niet te zeggen of voorschriften en de dagelijkse praktijk een gunstig effect hebben op emissies en verspreiding of niet. Pas na doorrekening van de gehele keten kan dit worden beoordeeld.

## 2.2 Dispersie en transport

Vergeleken met vele andere stoffen komt ammoniak op geringe hoogte in de atmosfeer (0-7 m). Op deze hoogte is de turbulentie en ook de windsnelheid aanmerkelijk lager dan op grotere hoogten waardoor de verdunning langzamer gaat en er dicht bij het emissiepunt hoge concentraties kunnen optreden. Hierdoor zal ook een relatief groot deel weer dichtbij in droge vorm deponeren. Door toenemende verticale menging nemen concentraties snel af met de afstand tot het emissiepunt. Een geringe bronhoogte betekent ook dat concentraties in de nabije omgeving van de bron 's nachts hoger zullen zijn dan overdag. 'Episoden' van verhoogde concentraties zijn sterk gerelateerd aan situaties waarbij lage windsnelheden optreden in combinatie met mestaanwendingsactiviteiten vooral bij hogere temperaturen. De invloed van grootschalig transport in deze situaties zoals bij stoffen als NO<sub>x</sub> en SO<sub>2</sub> is gering. Ondanks het 'lokale' effect van ammoniakconcentraties treedt er wel degelijk grootschalig transport van 'N' op, dat is wanneer ammoniak in ammonium (NH<sub>4</sub><sup>+</sup>) is omgezet. Dit ammonium kent een veel langere atmosferisch verblijftijd omdat met name de droge depositie ervan minder snel gaat. De buitenlandse invloed op niveaus van ammonium en ook op natte depositie is daarom veel groter dan op ammoniakniveaus.

## 2.3 Droge depositie van NH<sub>3</sub>

Ammoniak lost goed op in water en heeft daardoor een relatief hoge depositiesnelheid boven water en vochtige oppervlakken. Omdat ammoniak op geringe hoogte wordt geëmitteerd is de droge depositie vooral op korte afstanden van het emissiepunt het belangrijkste verliesproces. Depositiesnelheden geëvalueerd uit metingen zijn door diverse auteurs gerapporteerd. De opname van ammoniak door diverse plantensoorten blijkt nogal verschillend te zijn. In de context van dit onderzoek is het vooral van belang wat de variaties in de tijd zijn en vooral ook of depositiesnelheden mogelijk een functie zijn van concentraties in de lucht of van eerdere belastingen met stikstof. De droge depositieflux kan worden beschreven door:

$$F = (C_a(z) - C_s) * V_d(z) \qquad V_d(z) = 1 / (R_a(z) + R_b + R_c)$$

hierin is  $F$  de depositieflux ( $\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$ ),  $V_d(z)$  de droge depositiesnelheid ( $\text{m s}^{-1}$ ),  $C_a(z)$  de atmosferische concentratie op hoogte  $z$  ( $\text{g m}^{-3}$ ),  $C_s$  de concentratie in evenwicht met die in het blad of de bodem.  $R_a(z)$ ,  $R_b$ ,  $R_c$  zijn respectievelijk de aërodynamische weerstand over de hoogte  $z$ , de laminaire grenslaagweerstand en de oppervlakte weerstand (in  $\text{s m}^{-1}$ ). Deze laatste is vooral een eigenschap van de plant, de andere zijn voornamelijk door de meteorologische toestand bepaald. In tot nog toe gebruikte modellen wordt  $C_s$  simpelweg als nul verondersteld, er vanuit gaande dat de stof onmiddellijk in de plant of bodem reageert met een andere stof of onmiddellijk oplost in water. In feite komt dat erop neer dat bij de interpretatie van fluxmetingen het effect van  $C_s \neq 0$  verdisconteerd werd in  $R_c$ . In diverse publikaties wordt gesteld dat  $C_s$  niet nul is maar een substantiële - min of meer constante - waarde kan hebben, het zogenaamde canopy compensatiepunt (Farquhar *et al.*, 1980; Schjørring, 1991; Sutton *et al.*, 1993). Het compensatiepunt wordt daarbij gedefinieerd als die atmosferische concentratie waarbij de verticale flux van richting verandert, *i.e.*, er treedt (her)verdamping of emissie op i.p.v. depositie. Het bestaan van een compensatiepunt - al dan niet constant - impliceert dat de plant bij lage atmosferische concentraties gaat emitteren.

Metingen van compensatiepunten laten tot op heden een grote spreiding zien. Waarden variëren tussen 2 en 8  $\mu\text{g m}^{-3}$  (Plantaz, 1998). Een relatie met temperatuur wordt algemeen waargenomen. Ook een relatie met de N-bemestingstoestand van de bodem is gevonden (Schjørring *et al.*, 1995.). Een en ander betekent wel dat de invloed van droge depositie op luchtconcentraties lager is in emissiearme gebieden dan in emissierijke gebieden. Bovendien impliceert het bestaan van compensatiepunten dat de daling van ammoniakconcentraties bij lager wordende emissies enigszins gecompenseerd wordt.

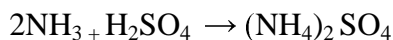
Wederzijdse beïnvloeding van de droge depositie van NH<sub>3</sub> en SO<sub>2</sub> via pH koppeling (co-depositie) is theoretisch aannemelijk en op laboratoriumschaal ook aangetoond (Adema *et al.*, 1986; van Hove *et al.*, 1989), maar experimentele bevestiging voor buitenlucht-omstandigheden is moeilijk te vinden (Sutton *et al.*, 1993; Plantaz, 1998; Flechard *et al.*, 1999). Ook dit fenomeen kan leiden tot lagere depositiesnelheden in recente jaren, omdat SO<sub>2</sub> concentraties sterk zijn gedaald (zie Figuur 12).

## 2.4 Natte depositie van NH<sub>3</sub>

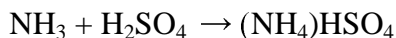
Een belangrijk deel van de in de lucht aanwezige ammoniak zal via natte depositieprocessen verdwijnen. De bijbehorende depositieflux kan moeilijk afzonderlijk worden gemeten maar wel als som van de natte depositie van NH<sub>3</sub> en NH<sub>4</sub><sup>+</sup> (tezamen aangeduid als NH<sub>x</sub>). De opname van ammoniak in wolken- of regenwaterdruppels is een efficiënt proces dat meer wordt geremd door de fysieke toetredingssnelheid van ammoniak dan door evenwichtsverzadiging van de druppels. Een verandering van de natte depositiesnelheid door de jaren als gevolg van veranderingen in concentraties van andere stoffen is dan ook niet te verwachten. De emissieverdeling van ammoniak over Nederland wordt vrij direct teruggevonden in de gemeten natte depositie van NH<sub>x</sub>. Een en ander geeft aan dat de natte depositie van ammoniak vooral via directe opname in vallende regendruppels geschiedt (wash-out) en minder in wolken (rain-out). De ruimtelijke verdeling van natte NH<sub>x</sub>-depositie geeft ook aan dat vooral atmosferisch NH<sub>3</sub> de natte NH<sub>x</sub> depositie bepaalt en minder het atmosferisch NH<sub>4</sub><sup>+</sup>.

## 2.5 Afbraak van NH<sub>3</sub> door vorming van NH<sub>4</sub>

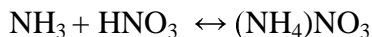
Nadat ammoniak in de lucht is gekomen via directe emissie vanuit stallen of via verdamping vanuit opgeslagen of op het land verspreide mest zijn concentraties van ammoniak de eerste en meest directe maat voor de sterkte van de emissies. De ammoniakconcentraties in de lucht worden echter mede beïnvloed doordat ammoniak reageert met zwavelzuur via:



of:



Een ander deel van NH<sub>3</sub> zal reageren met salpeterzuur in de lucht en ammoniumnitraat vormen:

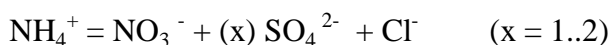


Een minder belangrijke afbraak van NH<sub>3</sub> is de vorming van ammoniumchloride:



De laatste twee reacties zijn evenwichtsreacties waarbij het evenwicht afhankelijk is van temperatuur en relatieve vochtigheid (Seinfeld, 1986). De reactie met zwavelzuur domineert; de andere reacties worden pas van belang als er geen zwavelzuur meer is.

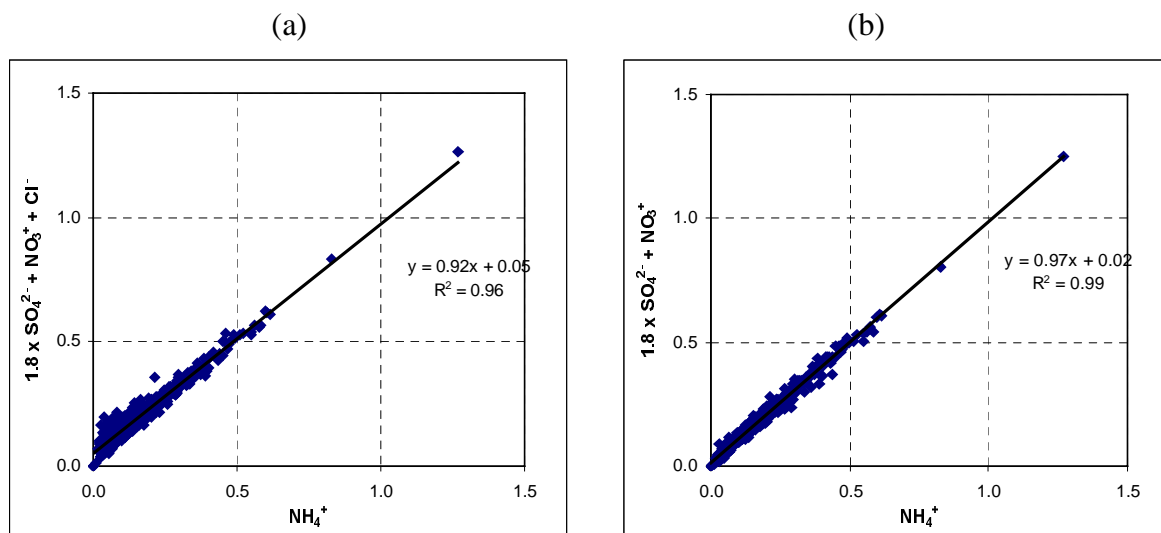
Bovenstaande reacties suggereren dat de produktie van NH<sub>4</sub><sup>+</sup> in de atmosfeer vooral wordt bepaald door de aanwezigheid van H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> en HNO<sub>3</sub> en niet door de hoogte van NH<sub>3</sub> concentraties. Dit wordt bevestigd door de verhoudingen van NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> en NO<sub>3</sub><sup>-</sup> aërosolconcentraties die in de atmosfeer wordt aangetroffen. Volgens bovenstaande moet op molaire basis gelden:



In Figuur 2a wordt deze stelling getoetst aan de hand van aërosolmetingen van het LML op het station Vredepeel (zie Figuur 3 voor de ligging van het station). Het blijkt dat wanneer  $x = 1.8$  wordt genomen de beste relatie wordt gevonden ( $r^2 = 0.96$ , ofwel 96 % van de dagelijkse variatie

van  $\text{NH}_4$  wordt hiermee verklaard). Het is echter aannemelijk dat niet alle  $\text{Cl}^-$  dat in het gemeten aërosol voorkomt gebonden is aan  $\text{NH}_4^+$  maar ook aan b.v.  $\text{Na}^+$  (zeezout). Als het  $\text{Cl}^-$  uit de vergelijking wordt weggelaten dan is de overeenkomst nog beter (Figuur 2b). Vergelijkbare uitkomsten worden voor alle 5 stations waar  $\text{NH}_4^+$  wordt gemeten verkregen. Ook de variatie van jaar tot jaar is gering.

De conclusie uit bovenstaande is dat trends in metingen van  $\text{NH}_4^+$ -concentraties niet representatief zijn voor trends in  $\text{NH}_3$ -concentraties (en/of emissies) maar meer de trend in de precursors van  $\text{H}_2\text{SO}_4$  en  $\text{HNO}_3$  aangeven. Deze precursors zijn vooral  $\text{SO}_2$  en  $\text{NO}_2$  concentraties en veranderingen daarin moeten daarom in een trendbeschouwing van  $\text{NH}_3$  worden meegenomen.

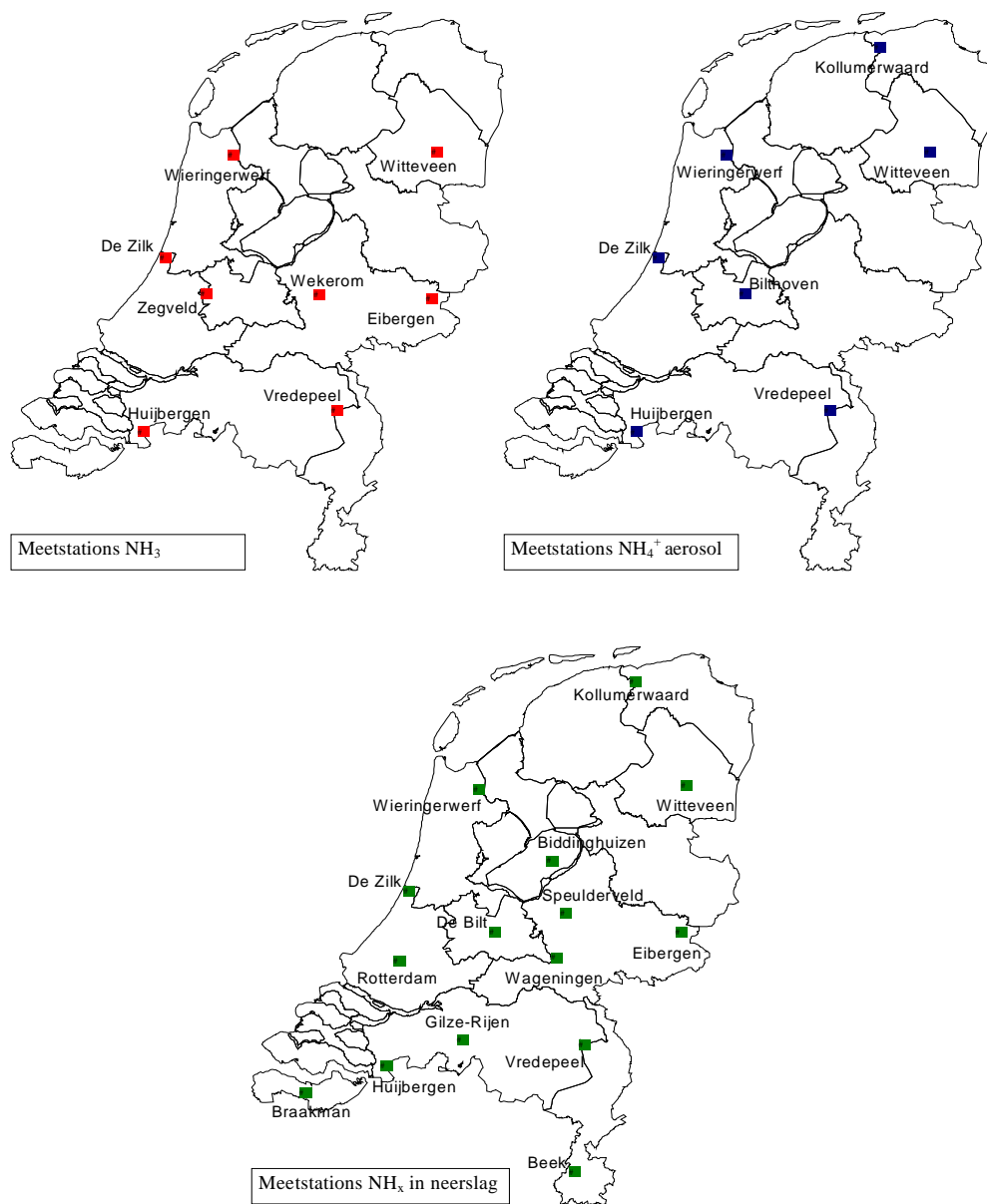


Figuur 2. Vergelijking van daggemiddelden gemeten  $\text{NH}_4^+$ -aërosolconcentraties met sulfaat-, nitraat- en chlorideconcentraties volgens (a)  $\text{NH}_4^+ = 1.8 \text{SO}_4^{2-} + \text{NO}_3^- + \text{Cl}^-$  en (b)  $\text{NH}_4^+ = 1.8 \text{SO}_4^{2-} + \text{NO}_3^-$  (in  $\mu\text{mol m}^{-3}$ ). Station Vredepeel, periode 1994-1996.

Vanuit de keten emissie-verspreiding -depositie geredeneerd vormen  $\text{NH}_3$ -luchtconcentraties de meest directe maat voor het evalueren van  $\text{NH}_3$ -emissies. Deze concentraties worden echter ook beïnvloed door meteorologische omstandigheden, veranderingen in omzettingssnelheden en depositiesnelheden. Waarnemingen in het volgende deel van de keten (volgproducten, droge en natte depositie) zijn daarom onontbeerlijk om de ontwikkelingen in de  $\text{NH}_3$ -emissies te evalueren. Wanneer echter gekeken moet worden naar de invloed van regionale en/of nationaal verspreide bronnen dan is de  $\text{NH}_3$ -luchtconcentratie de meest voor de hand liggende om dat deze in Nederland voor ongeveer 90% wordt veroorzaakt door Nederlandse bronnen. De invloed van buitenlandse emissies op de  $\text{NH}_4$ -aërosol concentraties en op de natte depositie is in de orde van 50%, dus deze metingen zijn minder geschikt om lokale veranderingen te indiceren.

### 3. Metingen

Een absolute eis die gesteld moet worden aan metingen om trends in de tijd af te leiden is dat de methodiek en/of de calibratie ervan niet is gewijzigd in de betreffende periode. Eigenlijk moet zo'n gebruiksdoel al vanaf de opzet van de metingen bekend zijn opdat ingrepen goed worden gedocumenteerd en het effect ervan gekwantificeerd. Metingen uitgevoerd door bij voorbeeld verschillende meetgroepen kunnen daarom niet zonder meer naast elkaar worden gezet in trendanalyses, ondanks het feit dat alle metingen binnen dezelfde nauwkeurigheidsgrens vallen. In Figuur 3 zijn de plaatsen aangegeven waar in het kader van het LML, lokaties zijn ingericht voor het meten van ammoniak, ammonium en natte depositie. Tabel 1 geeft een overzicht van de codes waarmee de meetstations verder in dit rapport worden aangeduid. In dit hoofdstuk worden de meetresultaten geanalyseerd vooral met betrekking tot veranderingen in de tijd.



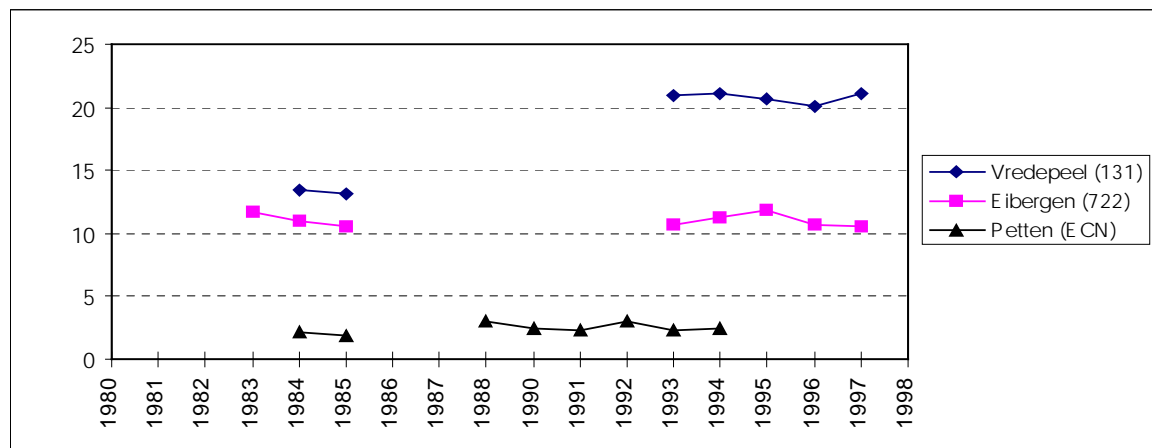
Figuur 3. NH<sub>x</sub>-meetlokaties van het Landelijk Meetnet Luchtverontreiniging (LML).

Tabel 1. Meetstations  $NH_x$  componenten van het Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit in 1994

Stations-code	Stationsnaam	X-coord. (km)	Y-coord. (km)	$NH_3$ conc.	$NH_4^+$ conc.	$NH_x$ natte dep.	$NH_3$ droge dep.
131	Vredepeel	182.4	325.1	X	x	x	
235	Huijbergen	83.6	383.3	X		x	
444	De Zilk	95.2	479.1	X	x	x	
538	Wieringerwerf	132.2	535.2	X	x	x	
633	Zegveld	117.4	461.3	X			
722	Eibergen	238.5	456.6	X		x	
738	Wekerom	176.9	458.2	X			
922	Witteveen	241.4	536.9	X	x	x	
934	Kollumerwaard	214.3	594.4		x	x	
627	Bilthoven	141.9	549.1		x		
628	De Bilt	140.6	456.9			x	
134	Beek	182.4	325.1			x	
631	Biddinghuizen	170.8	495.7			x	
318	Braakman	40.8	368.5			x	
231	Gilze-Rijen	123.5	397.5			x	
434	Rotterdam	90.1	440.9			x	
732	Speulderveld	177.7	476.0			x	
724	Wageningen Speuld	173.0 173.0	442.8 442.8			x	x

### 3.1 $NH_3$ -concentraties

Metingen van ammoniakluchtconcentraties in Nederland worden al sinds begin jaren tachtig uitgevoerd (Erisman *et al.*, 1998). Diverse methoden zijn daarbij gebruikt met wisselende kwaliteit. Voor een beperkt aantal plaatsen is een langere meetserie beschikbaar welke getoond worden in Figuur 4. De metingen t/m 1985 werden uitgevoerd door IMOU/ECN (Erisman *et al.*, 1988) met behulp van een filtertechniek. Uit deze vergelijking blijkt dat de concentratie op de lokatie Eibergen (722) in de loop der jaren op hetzelfde niveau gebleven is. De concentratie op het meetpunt Vredepeel (131) heeft een opmerkelijke sprong gemaakt. De oorzaak hiervan moet vooral gezocht worden in de problemen die er waren in de beginjaren met lekkende filters zoals Erisman *et al.* (1988) in hun rapportage aangeven. Een harde referentie voor ammoniakconcentraties voor de jaren tachtig ontbreekt daardoor.



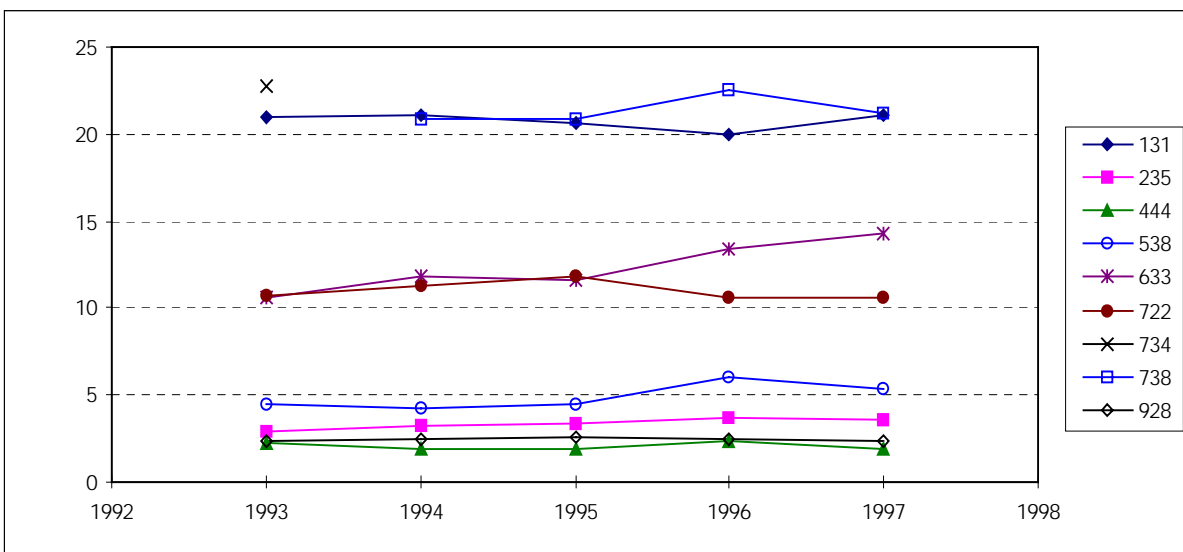
Figuur 4. Meerjarige meetseries van  $NH_3$ -luchtconcentraties voor drie lokaties. De metingen t/m 1985 zijn uitgevoerd door IMOU/ECN en de Petten meetserie door ECN. Overige meetpunten: LML.

Voor de analyse zoals in deze studie bedoeld komen eigenlijk alleen de metingen in aanmerking welke in september 1992 zijn gestart. Dit zijn metingen uitgevoerd met behulp van roterende natte denuder systemen welke zijn ontwikkeld door ECN. Tot 1996 waren dit de AMANDA systemen, daarna de AMOR systemen (Wyers *et al.*, 1993). De metingen worden continue uitgevoerd op uurbasis.

Door het zeer lokale karakter van ammoniakemissies en daardoor ook de ammoniakconcentraties is het praktisch onmogelijk om met metingen een volledig ruimtelijk beeld van ammoniakconcentraties te krijgen. Gekozen is daarom al in een vroeg stadium voor een combinatie van meten op een beperkt aantal plaatsen en het modelleren van de ruimtelijke verdeling waarbij de metingen vooral dienen voor validatie en/of ijking van de modelberekeningen (Buijsman *et al.*, (1998)). De meetlokaties zijn zodanig gekozen dat zowel concentraties in typische emissiegebieden gemeten worden als de concentraties in gebieden met lage lokale emissies. Ook de landelijke dekking is daarbij enigszins in aanmerking genomen (oost-west, noord-zuid). De representativiteit van de meetlokaties voor hun directe omgeving (5x5km) is gecontroleerd via speciale meetcampagnes (Boermans en Erisman, 1991). De meetlocatie Witteveen blijkt inmiddels ongeschikt als representatief station omdat het temidden van een bosje staat dat in de loop der jaren flink is gegroeid. Dit station zal m.i.v. januari 2000 worden verplaatst naar het nabijgelegen Valthermond. In 1993 is het station Lunteren (734) verplaatst naar het nabijgelegen Wekerom (738). In het zelfde jaar is het station Leiduin (540) vervangen door De Zilk (444). De resultaten van deze stations mogen als uitwisselbaar beschouwd worden.

### *NH<sub>3</sub>- concentraties per meetpunt*

In Figuur 5 zijn de jaargemiddelde ammoniakconcentraties per meetstation weergegeven. De twee stations in de gebieden met hoge emissie (De Peel: 131 en de Gelderse vallei: 738) geven nagenoeg dezelfde concentraties. Lage concentraties worden gevonden in de gebieden met lage emissies met als laagste het kuststation De Zilk (444). Enkele stations vertonen een concentratiestijging in recente jaren 738, 633, 538, andere een lichte daling: 722, 928. Opvallend is dat de jaargemiddelde concentraties weinig variëren terwijl uur- tot uurvariaties relatief groot zijn (de verhoudingen tussen 98 percentielen en gemiddelden zijn vergelijkbaar met die van veel andere stoffen). De jaar tot jaar concentratievariaties voor de meeste andere luchtverontreinigende stoffen zijn veel groter dan die voor ammoniak (RIVM/LML, 1996).

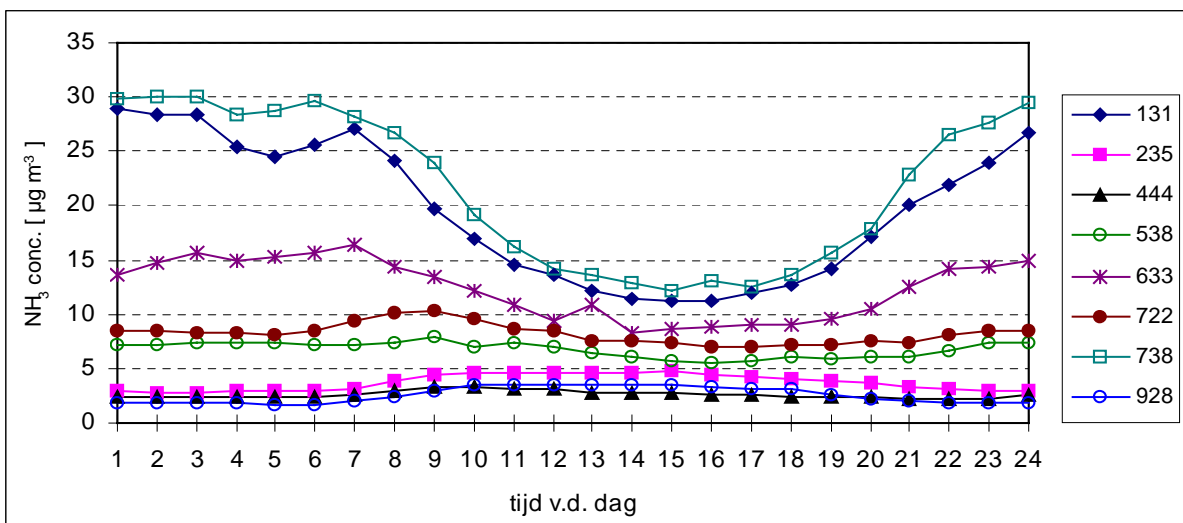


Figuur 5. Jaargemiddelde ammoniakconcentraties per LML meetstation.

Qua verspreidingskarakteristiek lijkt ammoniak op stoffen als  $\text{NO}_2$  of in zijn algemeenheid op stoffen die op geringe hoogte worden uitgeworpen zoals door het verkeer. Een kenmerkend verschil is echter dat de atmosferische verblijftijd van ammoniak veel korter is dan van de meeste andere stoffen waardoor er nauwelijks sprake is van grootschalig transport. Dit grootschalig transport blijkt juist sterk afhankelijk te zijn van typische (persistente) weercondities en daarmee voor stoffen als  $\text{SO}_2$  en  $\text{NO}_2$  verantwoordelijk te zijn voor de jaar tot jaar variaties (Van Jaarsveld, 1990). Mogelijk worden voor ammoniak de meteorologische invloeden op de jaargemiddelde concentraties (ten dele) gecompenseerd door variaties in emissies veroorzaakt door dezelfde meteorologische variabelen. Dat wil zeggen; de emissies zijn groter in omstandigheden dat ook de verspreiding groter is en *vice versa*.

#### Dagverloop $\text{NH}_3$ -concentraties

De invloed van de meteorologie op (kortdurende) ammoniakconcentraties volgt uit Figuur 6 waar het gemiddelde dagverloop over 1996 per meetstation is uitgezet. Opvallend is hier dat de stations met de hoogste concentraties (131 en 738) de grootste dag-nacht variatie vertonen waarbij de nachtelijke concentraties het hoogst zijn. De stations die verder van emissierijke gebieden afliggen vertonen precies het tegengestelde verloop en met een veel kleinere amplitudo. Deze typische dagverlopen komen ook voor in andere jaren (Acharya, 1994).



Figuur 6. Gemiddeld dagverloop in 1996 van  $\text{NH}_3$ -concentraties

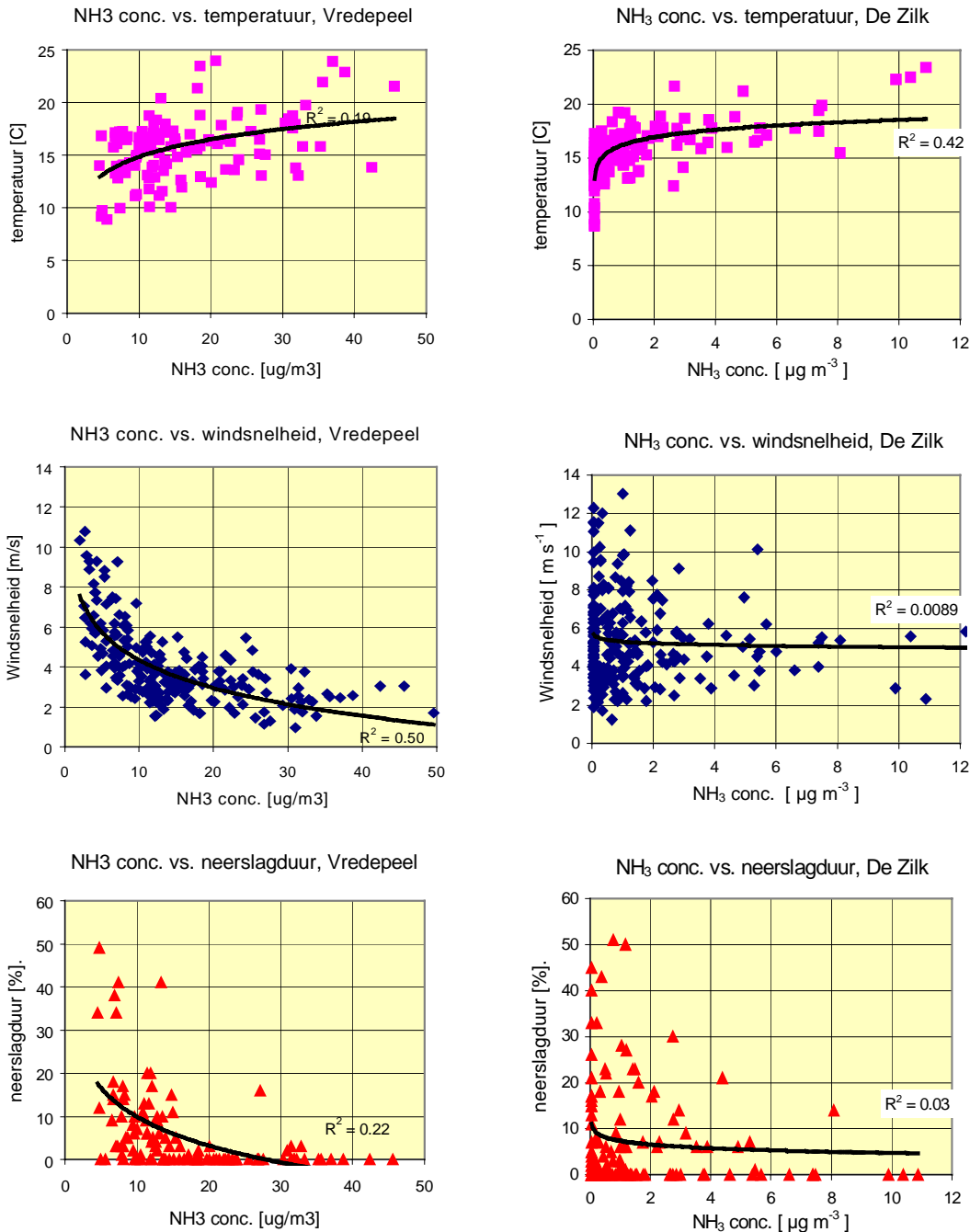
De concentratieverlopen zijn het gevolg van het verloop in de processen van emissie, verspreiding in de zin van verdunning en droge depositie. De verdunning van op lage hoogte geëmitteerde ammoniak is verreweg het grootst overdag. Op de meetpunten waar veel nabijgelegen bronnen (131, 738) zijn speelt de atmosferische verdunning in de atmosfeer de belangrijkste rol. Dit wordt nog versterkt doordat de emissie op deze plaatsen vooral uit stallen komt welke dag en nacht worden geventileerd waardoor de variatie in de emissie relatief klein is. De aanwendingsemissies zijn relatief laag omdat in die gebieden een mestoverschot heerst waardoor deze mest naar elders wordt getransporteerd.

De meetpunten met lage concentraties liggen verder van de primaire bronnen. Hier leveren aanwendingsemissies een relatief grotere bijdrage. Door de temperatuur en windsnelheidsafhankelijkheid van aanwendingsemissies is de nachtelijke emissie veel lager dan overdag. Dit effect overheerst kennelijk de beperkte verdunning die in de nacht plaats vindt.



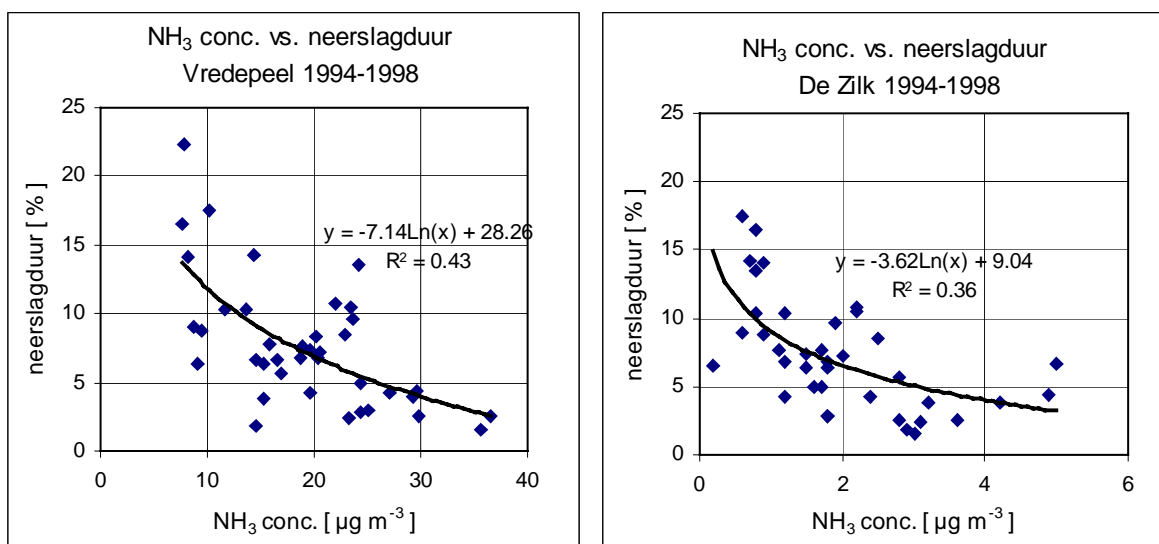
### Relatie meteoparameters en concentraties in hoog en laag belaste meetpunten

De karakteristieke verschillen tussen hoog en laag belaste meetpunten worden geïllustreerd in Figuur 7 waar daggemiddelde concentraties zijn uitgezet tegen een drietal parameters waarvan verwacht mag worden dat ze van invloed zijn: windsnelheid als een maat voor de verdunning, temperatuur als een maat voor verdampingsemissies en neerslagduur als een maat voor situaties met lage aanwendingsemissies. Gekozen is hier voor de periode buiten het typische uitrijseizoen opdat de hier gezochte relaties niet door toevallige handelingen worden verstoord. Uiteraard vertonen de parameters onderlinge afhankelijkheden maar het gaat hier om karakteristieke verschillen.



Figuur 7. Relatie tussen daggemiddelde NH<sub>3</sub>-concentraties en temperatuur, windsnelheid en neerslagduur voor een hoog- en laagbelast station. Gegevens over de periode april 1998 tot juli 1998.

Duidelijk is dat concentraties sterk negatief met windsnelheden zijn gecorreleerd in het hoog belaste gebied. Verdunning is hier dominant. In het laag belaste gebied is er geen correlatie met windsnelheid. In dit gebied speelt verdunning geen grote rol meer. Daarentegen is hier de correlatie met temperatuur relatief hoog hetgeen duidt op een belangrijkere rol van aanwendingsemissies. Voor de op afstand van bronnen gelegen stations geldt ook dat er een verticale concentratiegradient ontstaat tengevolge van droge depositie aan het aardoppervlak. Deze gradient kan 's nachts, wanneer er een stabiele atmosferische opbouw heerst, substantieel zijn. Verdere uitsplitsing van de metingen naar stabiele en niet stabiele situaties bevestigt dit. Neerslag zal aanwendingsemissies (tijdelijk) reduceren en ook ammoniak uit de lucht verwijderen via natte depositie. Bovendien wordt algemeen aangenomen dat droge depositie naar natte oppervlakken efficiënter verloopt. Perioden met neerslag gaan daarom gepaard met lage ammoniakconcentraties. Deze stelling blijkt - wanneer dit op dagbasis wordt bekeken - alleen duidelijk op te gaan voor het hoogbelaste meetpunt. Wanneer wordt uitgegaan van maandgemiddelden dan blijkt de stelling voor beide meetpunten waar te zijn (zie Figuur 8). Het is echter niet mogelijk om de gevonden correlaties ook als causale verbanden aan te merken. Bekend is dat perioden met veel neerslag gepaard gaan met hogere windsnelheden. Een combinatieparameter met daarin windsnelheid en neerslag levert dan ook weinig hogere correlaties met ammoniakconcentraties op dan de afzonderlijk parameters.

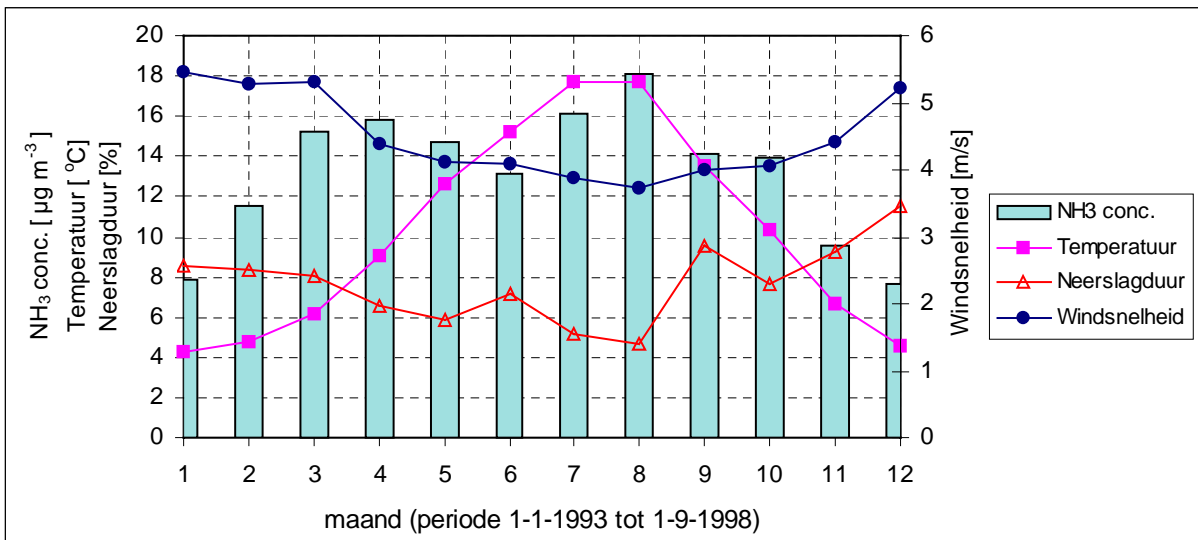


Figuur 8. Afhankelijkheid van maandgemiddelde NH<sub>3</sub> concentraties van de duur van de neerslag voor een hoog- en laagbelaste station. Periode 1994-1998, exclusief de maanden februari, maart en april.

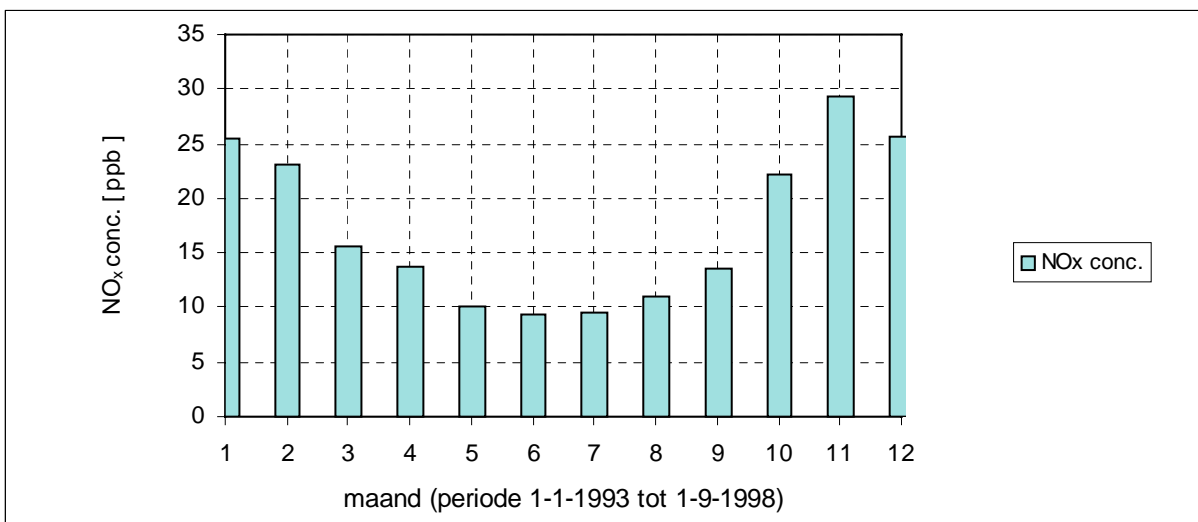
Het moge duidelijk zijn dat het op de juiste wijze beschrijven van de combinatie van emissievariatie met verdunningsvariatie in het toe te passen verspreidingsmodel van groot belang is. De hier geconstateerde variaties kunnen daarbij dienen ter verificatie. Anderzijds bevatten de dagverloopgegevens ook mogelijk informatie over de verhouding stal emissies en aanwendingsemissies. Het uitsplitsen van de metingen naar typische atmosferische stabiliteitstoestanden zal daarbij wellicht nog meer informatie geven. Dit komt in het hoofdstuk over combinatie meting en model aan de orde.

### Seizoensverloop van $NH_3$ -concentraties

Doordat met name het uitrijden van ammoniak aan regels is gebonden, mag verwacht worden dat het resultaat daarvan is terug te vinden in de luchtconcentraties. Bogaard en Duyzer (1997) hebben dit fenomeen onderzocht aan de hand van de meetgegevens van 1996 voor de meetpunten Vredepeel en Wekerom en concluderen dat inderdaad een duidelijke verhoging is in het voorjaar welke wordt gerelateerd aan een verhoogde uitrij-activiteit. Daarnaast is er een piek in de maanden juli en augustus welke toegeschreven wordt aan temperatuur effecten van zowel uitrij- als stalemissies. In Figuur 9 is de concentratie van de acht meetpunten per maand uitgezet, gemiddeld over de periode 1993-1998. Tegelijkertijd zijn er ook maandgemiddelde temperaturen, windsnelheden en neerslagduren aangegeven. De resultaten tonen aan dat de voorjaarspiek structureel is maar dat de hoogste gemiddelde concentratie in augustus wordt gevonden. In deze maand blijken meteorologische invloeden dominant te zijn: de temperatuur is het hoogste, de windsnelheid het laagste en de neerslagduur het kortst.



Figuur 9.  $NH_3$ -concentraties gemiddeld over alle LML-meetpunten en gemiddeld per maand. Maandgemiddelden temperatuur, neerslagduur en windsnelheid zijn ook aangegeven.



Figuur 10. Als Figuur 8 maar nu voor  $NO_x$ .

In Figuur 10 is ter vergelijking het lange termijn gemiddelde maandverloop van  $\text{NO}_x$  uitgezet.  $\text{NO}_x$  komt ook voornamelijk uit lage bronnen maar vertoont duidelijk hogere concentraties in de winter, t.g.v. hogere emissies gedurende de winter. Duidelijk is dat de emissie van  $\text{NH}_3$  in de zomermaanden relatief hoog moet zijn en/of dat de depositie dan laag moet zijn.

### 3.2 $\text{NH}_3$ droge depositie

Droge depositie is het belangrijkste verliesproces voor ammoniak in de atmosfeer (zie Figuur 1). De effectiviteit van droge depositie is sterk afhankelijk van het type bodem/gewas. Het meten van droge depositie heeft zich tot nog toe vooral geconcentreerd op het bepalen van de input naar voor verzuring gevoelige eco-systemen (bos, heide). In termen van massabalansen zijn gewassen als gras echter veel belangrijker omdat het in veel grotere oppervlakken voorkomt.

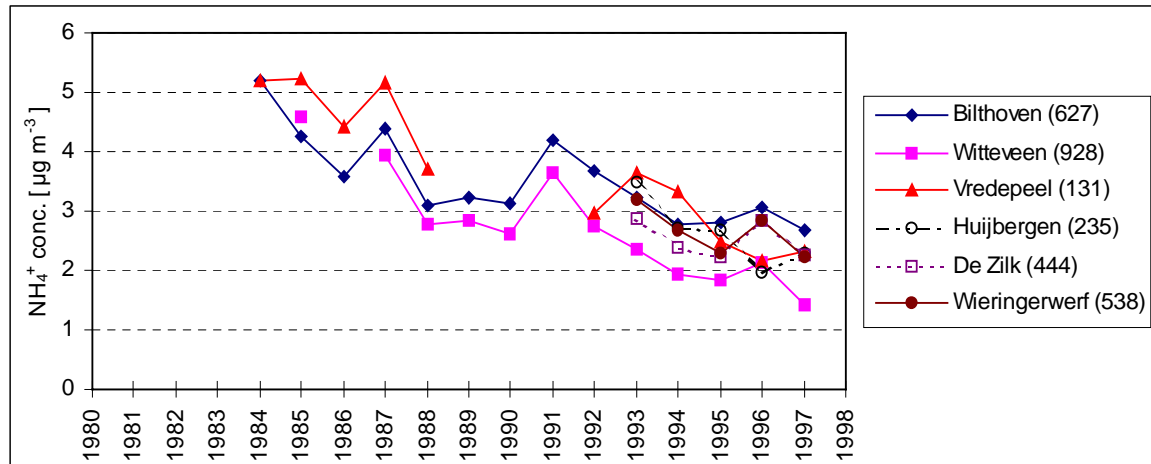
Monitoring van droge depositie van ammoniak vindt plaats op het meetpunt Speuld sinds 1993 (Erisman *et al.*, 1993). Op basis van geanalyseerde gegevens voor de jaren 1993 t/m 1995 kan gesteld worden dat de gemeten droge depositie geen daling laat zien. Gegevens voor latere jaren komen binnenkort beschikbaar. Met nadruk dient nogmaals gesteld te worden dat dit slechts één ecosysteem (bos) betreft. Niettemin hebben dit soort metingen de potentie om veranderingen in de tijd (ook tengevolge van  $\text{NH}_3$ - $\text{SO}_2$  co-depositie) zichtbaar te maken.

Zogenaamde doorvalmetingen worden ook gebruikt om een indicatie van droge depositie te geven. Bij doorvalmetingen in bos wordt doorvalwater opgevangen. Dit water bevat voor een belangrijk deel ook - van bladeren afgespoelde - droge depositie en kan als zodanig ook een indicator zijn voor veranderingen in de tijd. Inderdaad wordt op het meetpunt Ysselstein (L) een aanzienlijke daling waargenomen (Boxman, 1998). Deze daling is echter voor een belangrijk deel toe te schrijven aan droge depositie van ammoniumaërosol die voor bossen relatief hoog is en waarvan de luchtconcentraties de afgelopen jaren sterk zijn afgenomen (zie Figuur 11). Vanwege het belang van het droge depositieproces en de beperkte beschikbare informatie verdient het aanbeveling om hier meer inspanning in te plegen.

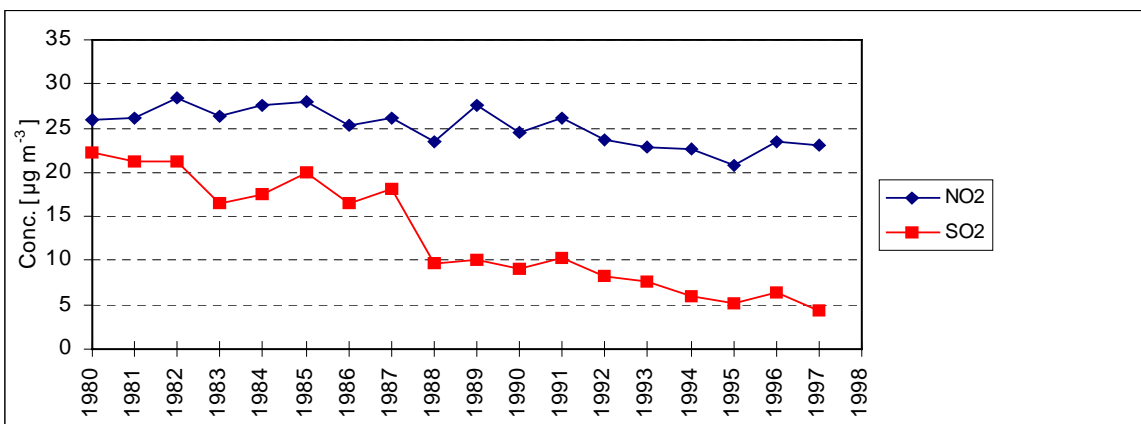
### 3.3 $\text{NH}_4$ -aërosolconcentraties

Ammoniumaërosolconcentraties (lvs methode, daggemiddelden) werden gemeten op vijf stations in 1993 en zeven stations in de jaren daarna (voor lokaties zie Figuur 3). Oudere metingen werden anders behandeld voor wat betreft blancocorrecties en daardoor niet direct bruikbaar in de huidige analyse. Om toch nog enigszins vergelijkbare gegevens te hebben voor de periode vóór 1993 zijn uiteindelijk niet de gemeten ammoniumconcentraties genomen maar is de relatie gehanteerd  $\text{NH}_4^+ = 1.8 \times \text{SO}_4^{2-} + \text{NO}_3^-$  (op molaire basis). Deze relatie beschrijft de ammoniumconcentratie in de periode 1993-1997 zeer goed (zie Figuur 2). Niettemin moet de aldus verkregen pre-1993 data als indicatief beschouwd worden.

De grote daling van ammoniumconcentraties zijn vooral toe te schrijven aan de daling van  $\text{SO}_2$  en - in mindere mate -  $\text{NO}_2$  concentraties. Het oorzakelijk verband is beschreven in paragraaf 2.4. De daling van  $\text{SO}_2$  en  $\text{NO}_2$ -concentraties in Nederland worden geïllustreerd in Figuur 12.



Figuur 11. Verloop van ammoniumaërosolconcentraties



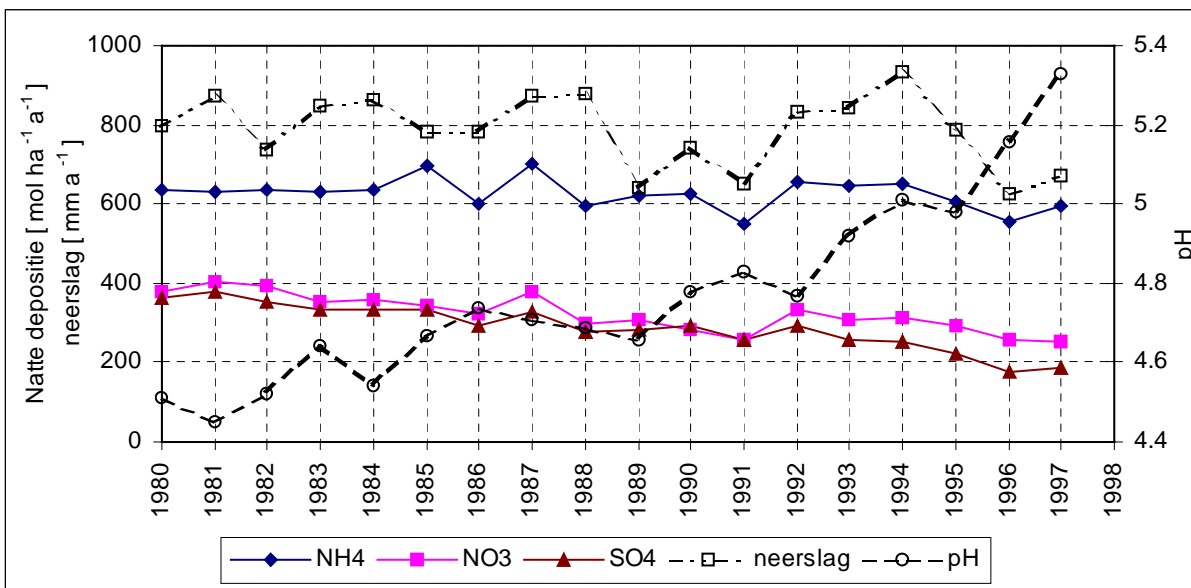
Figuur 12. Trend in SO<sub>2</sub> en NO<sub>2</sub>-concentraties in Nederland.

### 3.4 NH<sub>x</sub> natte depositie

Natte depositie van ammonium wordt sinds vele jaren gemeten op een aantal (13-21) stations in Nederland. In 1988 is de zogenaamde 'wet only' vanger in gebruik genomen, daarna zijn geen wijzigingen meer gepleegd in meetopstellingen en/of analysemethode. Het natte depositiepatroon over Nederland vertoont in grote lijnen eenzelfde ruimtelijk beeld als de ammoniakconcentraties, hetgeen aangeeft dat natte depositie voor een aanzienlijk deel ook door lokale ammoniakemissies wordt beïnvloed. Natte depositie wordt sterk beïnvloed door ruimtelijke en temporele variaties in neerslaghoeveelheden. In Figuur 13 is het verloop van de natte depositie gegeven voor de belangrijkste verzurende componenten. Tevens is aangegeven de zuurgraad en de hoeveelheid neerslag. Op de metingen van vóór 1988 zijn de gebruikelijke correcties voor droge depositie in de vanger toegepast (0.75, 0.75 en 0.85 voor resp. NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> en NO<sub>3</sub><sup>-</sup>). Verder zijn op een consistente manier uitbijters uit de metingen verwijderd, voornamelijk op basis van de ionenbalans.

Uit Figuur 13 blijkt dat de ammoniumdepositie niet is veranderd. De SO<sub>4</sub>-depositie daalt in de loop der jaren wel, maar veel minder sterk dan SO<sub>2</sub> concentraties uit Figuur 12. NO<sub>3</sub><sup>-</sup> daalt wel maar minder sterk dan SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>. De pH waarde stijgt wel duidelijk: van ca. 4.5 in 1980 tot ca. 5.3 in 1997. Uit Figuur 13 blijkt ook dat depositie en hoeveelheid neerslag in een bepaald jaar gecorreleerd zijn. Wanneer niet de depositie maar de concentratie in het regenwater als indicator voor veranderingen wordt genomen dan ontstaat een ander tijdsgedrag. Ook dan is er echter een

vrij sterke correlatie met neerslaghoeveelheden. Een betere trendindicator zou uit een combinatie van beide moeten bestaan. Dit zou nog nader onderzocht moeten worden.



Figuur 13. Trend in natte depositie van de belangrijkste zuurvormende componenten, zuurgraad (pH) en neerslag. Gegevens zijn gemiddelden van alle meetstations van het Landelijk Meetnet Regenwater.

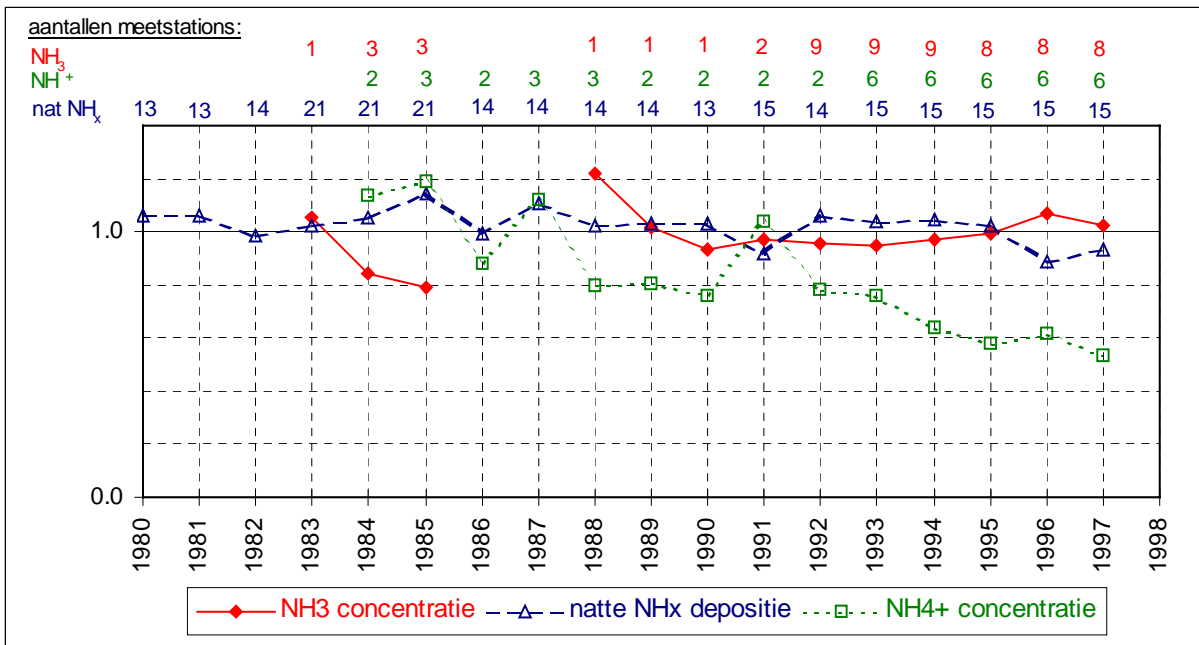
### 3.5 NH<sub>x</sub> trends uit metingen

In Figuur 14 zijn trends in ammoniak- en ammoniumconcentraties en de natte depositie ervan uitgezet op basis van alle beschikbare metingen. Hiertoe zijn de individuele metingen per meetstation eerst gedeeld door hun lange termijn gemiddelde waarde waardoor de diverse stations voor wat betreft hun veranderingen vergelijkbaar worden. Laag- en hoogbelaste stations tellen hierdoor ook even zwaar mee. Het aantal stations waarop de trendlijnen zijn gebaseerd is sterk variabel, met name in de periode vóór 1993. In deze periode moeten de ammoniak- en ammoniumtrendlijnen vooral als indicatief gezien worden.

Uit de tijdreeksen kan geconcludeerd worden dat voor ammoniakconcentraties en voor natte depositie er geen sprake is van enige structurele verandering. De trendlijnen vertonen vanaf 1990 wel een duidelijke (negatieve) correlatie. Dit is vooral het gevolg van competitieve processen (zie paragraaf 2.4). Alleen de ammoniumaërosolconcentraties dalen aanzienlijk. Zoals eerder betoogd is deze daling het gevolg van dalende SO<sub>2</sub> en NO<sub>2</sub> concentraties en daarom zijn deze concentraties nog het minst gevoelig voor veranderingen in ammoniakemissies in Nederland dan andere NH<sub>x</sub>-concentraties.

Wanneer ammoniakemissies in Nederland in de periode 1990-1996 met 35% zouden zijn gedaald (Milieubalans, RIVM (1997)) dan zou zich dit – onder aanname van een één op één relatie tussen emissie en concentratie - moeten uiten in een concentratiedaling van ongeveer 33 % (buitenlandse emissies constant en de relatieve invloed van alle emissiesoorten gelijk verondersteld). Voor de periode 1993-1996 zou dit 22 % moeten zijn (gelijke daling in alle jaren). Op basis van enkel metingen kan gesteld worden dat er geen emissiedaling was. Pas na nadere kwantificering van de emissie- concentratie - depositie relatie en de veranderingen daarin

in de betreffende periode kan er worden bepaald welke emissiedaling er mogelijk wel is geweest. Dit komt aan de orde in hoofdstuk 4 en 5.



Figuur 14. Het relatieve verloop van natte depositie en concentraties van ammoniak en ammonium in Nederland (metingen per meetstation relatief t.o.v. het meerjariggemiddelde van het meetstation). Het gemiddelde van alle aanwezige stations per jaar is weergegeven.

## 4. Modelbenadering

Het zichtbaar worden van systematische veranderingen in metingen ten gevolge van veranderingen in emissies of atmosferische processen is sterk afhankelijk van hoe meteorologische factoren invloed hebben op de concentratie van stoffen. Deze invloed is voor alle hierboven genoemde type metingen verschillend en daarom is de ene meting meer geschikt als indicator van veranderingen dan de andere. Een mogelijkheid om tijdreeksen van metingen van meteorologische ruis te ontdoen is de invloed daarvan te beschrijven met een verspreidingsmodel. Het model TREND (thans OPS genoemd) is oorspronkelijk ontwikkeld voor dit doel. De methodiek is gebruikt om bijvoorbeeld SO<sub>2</sub> en NO<sub>x</sub> emissietrends af te leiden uit metingen van luchtconcentraties. Voor beide stoffen kon zowel het absolute concentratieniveau in Nederland als ook het verloop over de jaren 1980-1993 worden verklaard uit absolute niveaus en veranderingen in emissies in binnen en buitenland (Van Jaarsveld, 1995). Voor ammoniak wordt hier dezelfde methodiek toegepast waarbij het model in generieke zin (m.n. transport en dispersie) als gevalideerd mag worden beschouwd aan de hand van SO<sub>2</sub> en NO<sub>x</sub>-verspreidingscases.

Het doel van het modelleren van ammoniakconcentraties en -deposities is tweeledig. Ten eerste is de ruimtelijke variatie van ammoniakconcentraties zo groot dat het ondoenlijk is met metingen alléén een landsdekkend beeld te verkrijgen. Ten tweede - en eigenlijk belangrijker - is dat de kwantitatieve relatie tussen emissie en depositie gevonden en beschreven moet worden om het mogelijk te maken de gevolgen van bepaalde ingrepen te voorspellen. De toets voor het laatste is dat voor de huidige situatie de gemeten niveaus in lucht kunnen worden verklaard uit de huidige kennis van bronnen en emissies.

### 4.1 Het TREND/OPS model

Zoals al eerder is opgemerkt is het model dat voor de beschrijving van ammoniak-concentraties wordt gebruikt een generiek atmosferisch transport en depositiemodel dat gevalideerd is m.b.v. stoffen als SO<sub>2</sub> en NO<sub>x</sub> waarvoor zowel veel en goede metingen beschikbaar zijn en ook de emissies goed bekend zijn. Dit laatste geldt vooral voor SO<sub>2</sub>.

Ammoniak kent echter een aantal specifieke eigenschappen die de modellering ervan bijzonder maakt:

- a. ammoniak is in principe een verdampingsprodukt waardoor de uitstoot ervan zeer afhankelijk is van meteorologische factoren.
- b. De emissiehoogte is over het algemeen zeer laag waardoor de verspreiding sterk wordt beïnvloed door lokale omstandigheden (zoals terreinruwheid, obstakels).
- c. De droge depositiesnelheid is in het algemeen hoog, dit in combinatie met de geringe transporthoogte doet een aanzienlijk deel van de emissie al in de nabijheid van de bron neerslaan.
- d. ammoniak wordt relatief snel omgezet in ammonium. De omzettingssnelheid is mede afhankelijk van concentraties van SO<sub>2</sub> en NO<sub>2</sub>. Deze afhankelijkheid kon in het bestaande modelconcept niet worden meegenomen.

Het TREND model is voor ammoniak geschikt gemaakt door Asman en van Jaarsveld (1992). Een uitgebreide validatie en gevoeligheidstests zijn uitgevoerd. In die periode konden de toenmalige niveaus met de toenmalige schattingen van emissies goed worden beschreven. Nadien



zijn er verschillende studies uitgevoerd naar de gevoeligheid van bepaalde parameters (Acharya, 1994; Heuberger *et al.*, (1995), Bogaard en Hofschreuder, 1996).

#### 4.1.1 OPS model APV3 versie

Het OPS model is in 1994 in het kader van het APV3 gemoderniseerd. Resultaten van het depositie-onderzoek zoals uitgevoerd in Speuld zijn in 1994 in het model verwerkt in de vorm van parametrisaties voor depositiesnelheden. Daarmee werd aansluiting verkregen met parameters die ook in het Dutch Empirical Acid Deposition Model (DEADM) (Erisman, 1992) worden gebruikt. De omzettingssnelheid voor ammoniak werd teruggebracht van ca. 30 %/h naar 10 %/h, enerzijds om dat de oude parametrisatie was gebaseerd op te hoge waarden van ammoniumaërosolconcentraties en anderzijds omdat SO<sub>2</sub> concentraties sterk zijn gedaald sinds 1980. Naast deze specifieke ammoniakparametrisaties werd tevens de benadering van lokale verspreiding gemoderniseerd met een methodiek die ook in het meer specifieke korte afstandsmodel SLAM (Boermans en van Pul, 1993) wordt toegepast. Tot slot werd een 5 x 5 km detaillering van een aantal eigenschappen ingevoerd zoals terreinruwheid en landgebruik met een koppeling naar dispersie, transport en depositiesnelheden. Het resultaat van was dat ammoniakconcentraties in emissierijke gebieden met ongeveer 15% stegen en dat ammoniumconcentraties met ongeveer 20% daalden vergeleken met de eerste versie van het model. Depositiehoeveelheden veranderden daarentegen nauwelijks.

De conclusie voor het APV3 onderzoek was dat met de toen gebruikte emissies (schattingen voor 1991/1992) de toen gemeten niveaus redelijk tot goed konden worden verklaard (binnen ca. 15%).

#### 4.1.2 Uitbreidingen OPS model

Mede naar aanleiding van de geconstateerde verschillen tussen modelberekeningen en metingen (Erisman *et al.*, 1998) is het OPS model op een aantal punten aangepast. Uitgangspunt daarbij was de stelling dat een goede modelanalyse van de huidige situatie alleen dan mogelijk is wanneer het model de situatie en omstandigheden waarin de metingen zijn gedaan kan verdisconteren. Dit heeft vooral betrekking op het afstemmen van de ruimtelijke representativiteit van de metingen en die van het model maar ook betrekking op de mate waarmee het model veranderingen in de tijd van de chemische samenstelling van de atmosfeer in rekening kan brengen. De belangrijkste uitbreidingen worden hier kort beschreven.

##### *Concentratieafhankelijke NH<sub>3</sub> omzetting*

Zoals in Hoofdstuk 2 beschreven is de omzetting van ammoniak afhankelijk van de concentraties van zwavelzuur en salpeterzuur in de lucht. Deze concentraties zijn weer gerelateerd aan SO<sub>2</sub> en NO<sub>2</sub>-concentraties. De vorming van ammonium is gesimuleerd met behulp van een één-dimensionaal model met daarin de relevante chemische reacties zoals toegepast in het MPA model (De Leeuw *et al.*, 1990) en droge depositie. Dit model wordt gerund op basis van actuele meteorologische gegevens en gevoed door achtergrondsconcentraties van SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>, NH<sub>3</sub>, O<sub>3</sub> en OH-radikalen. De omzettingssnelheid volgt dan uit de productie van ammoniumsulfaat en ammoniumnitraat over een langere periode gedeeld door het gemiddelde ammoniakniveau. Deze berekeningen zijn uitgevoerd voor een groot aantal concentratiecombinaties van SO<sub>2</sub>, NO<sub>2</sub> en NH<sub>3</sub>. De aldus gegenereerde omzettingssnelheid zijn vervolgens via een regressieanalyse omgezet in een parametrisatie voor deze snelheid,  $K_{NH_3}$ :

$$K_{NH_3} = 0.67 + 1.4 C_1 + 10.7 C_2 + 3.1 (C_2)^4 - 0.29 (C_2)^6 \quad (4.1).$$

Hierin is  $C_1$  de verhouding in achtergrondconcentraties  $NO_2/NH_3$  (ppb/ppb) en  $C_2$  de verhouding  $SO_2/NH_3$  (ppb/ppb). De achtergrondconcentraties zijn als velden bij het OPS model opgenomen met een resolutie van 10 x 10 km en beslaan een groot deel van West-Europa. De velden zijn gegenereerd met behulp van het OPS model zelf voor de jaren 1984 en 1994 en worden bij gebruik voor een specifiek jaar 'geschaald' aan de hand van gemeten concentraties van het LML. Op deze wijze zijn de jaarlijkse concentraties voor de periode 1980 tot heden in het model beschikbaar.

Landelijk gemiddelde omzettingssnelheden komen op deze manier uit op ca. 15 %  $h^{-1}$  in 1984 en ca. 5%  $h^{-1}$  in 1997.

#### *Meteoafhankelijkheid van ammoniakemissies*

De verdampingssnelheid van ammoniak uit mest wordt voor een belangrijk deel bepaald door de temperatuur van de mest en de snelheid waarmee het gevormde gas van het oppervlak wordt weggevoerd. Dit laatste is afhankelijk van de windsnelheid en de atmosferische stabiliteit. De verspreiding van ammoniak in de atmosfeer maar ook de verwijdering uit de atmosfeer via depositie is aan dezelfde parameters gerelateerd. Het is dus belangrijk de emissiesnelheid in het verspreidingsmodel ook van deze parameters te laten afhangen. In het OPS model worden hiertoe twee soorten onderscheiden: stalgerelateerde emissies en buitenemissies. Tot de laatste worden gerekend: aanwendingsemisies, weide-emisies en emissies uit kunstmest. Het meteoregime voor deze buitenemissies is veel sterker dan voor stalgerelateerde emissies omdat a) de temperatuur van de mest gelijk kan worden gesteld aan de buitentemperatuur en de variatie in deze dus volgt en b) de atmosferische stabiliteit een grote rol speelt. De relaties tussen eerder genoemde parameters en de emissiesterkte is afgeleid met behulp van het één-dimensionale uitwisselingsmodel 'DEPASS' (van Jaarsveld, 1996) dat op zijn beurt weer is gevalideerd aan de hand van mestaanwendingsproeven op bouwland (Van der Molen *et al.*, 1990a,b). De volgende correctiefactor voor de emissiesterkte,  $EC_{aanw}$ , is afgeleid die de verdampingsvariëaties t.o.v. het jaargemiddelde beschrijft:

$$EC_{aanw} = 1 + 1.55 \cdot 10^{-5} \left[ (100 / Ra)^{0.8} (T + 23)^{2.3} \right]^{1.25} \quad (4.2)$$

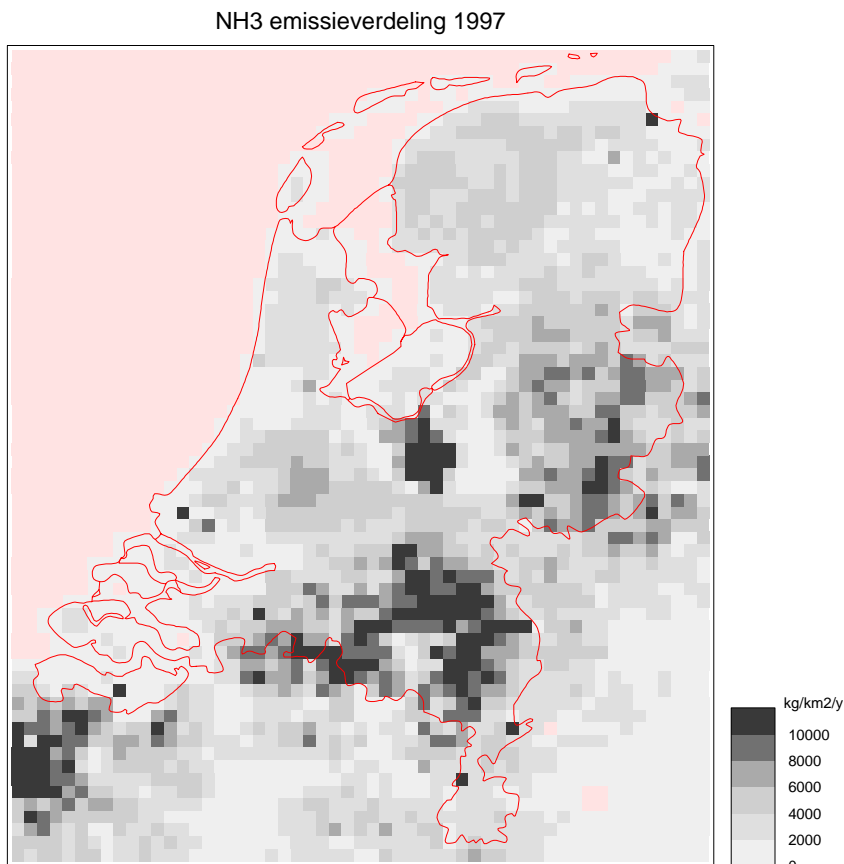
Hierin is  $T$  de buitentemperatuur in graden Celcius en  $Ra$  de aerodynamische weerstand (in s/m) over de onderste 4 m van de atmosfeer. In de aerodynamische weerstand zit in principe het effect van de windsnelheid en stabiliteit verwerkt. De op deze wijze bepaalde emissiecorrectiefactor is ongeveer 1.8 tijdens instabiele omstandigheden (mooi weer overdag) en 0.07 bij zeer stabiel weer (onbewolkte nacht met weinig wind). Gemiddeld varieert deze factor van ca. 0.4 in januari tot ca. 1.5 in juli. Dit betekent dat er van de zelfde hoeveelheid mest ongeveer 3-4 keer zoveel verdampst in juli dan in januari.

Naast een correctiefactor voor aanwendingsemisies welke in principe verdampingsvariëaties beschrijft t.o.v. jaargemiddelden is er nog een activiteitscorrectiefactor aan te geven. Dit is van groot belang als het model gebruikt wordt op maandbasis omdat er een seizoensvariatie is in het uitrijden van mest. Deze correctie kan nog achteraf worden aangebracht en is daarom niet in het model opgenomen. In Bijlage 1. is deze correctiefactor beschreven.

Voor stalgerelateerde emissies is een afhankelijkheid gekozen op basis van metingen van Kroodsma et al. (1993) en Groot Koerkamp en Elzing (1996). De correctiefactor voor stalgerelateerde emissies,  $EC_{stal}$ , is:

$$EC_{stal} = 1 + 0.04 * (T - T_{gem}) \quad (4.3)$$

$T_{gem}$  is de jaargemiddelde buitentemperatuur. De gemiddelde correctiefactor voor stalemissies is ca. 1.3 in juli en 0.7 in januari. Dit betekent dat er van de zelfde hoeveelheid mest ongeveer 2 keer zoveel verdampt in juli dan in januari. Stalemissies zijn dus aanzienlijk minder meteoafhankelijk dan aanwendingsemissies. De factor 0.04 in Vergelijking 4.2 is in feite gebaseerd op relaties met binnentemperatuur in een mechanisch geventileerde rundveestal. In de huidige studie is verondersteld dat de binnen en buitentemperatuur relatief evenveel variëren hetgeen wellicht tot een overschatting van het temperatuureffect leidt. Bovendien is er verder geen onderscheidt gemaakt tussen koeien-, varkens- en kippenstallen, noch tussen natuurlijk en kunstmatig geventileerde stallen mede ook omdat dit onderscheidt in de emissiebestanden niet is gemaakt. Ook de afhankelijkheid van de ventilatiesnelheid met windsnelheid is niet opgenomen. Omdat uit de berekeningen blijkt dat de uitkomsten gevoelig zijn voor de meteoafhankelijkheid van de emissies, is het aan te bevelen om deze met behulp van experimenteel onderzoek nader te kwantificeren.



Figuur 15. Verdeling van ammoniakemissies over Nederland

## 4.2 Gebruikte emissies

De ammoniak emissies die in de berekeningen zijn toegepast zijn voor wat betreft landbouwemissies gebaseerd op stikstofuitscheidingsgegevens voor landbouwhuisdieren berekend door het CBS welke samen met gegevens over emissiefactoren, penetratiegraden van staltypen, mestopslag en mestaanwendingsstechnieken de invoer vormen voor de mest-en ammoniakmodellen van het Landbouw-Economisch Instituut (LEI-DLO). De berekeningsmethodiek is beschreven in van der Hoek (1994). Gegevens over emissies van industriële processen en schattingen van de emissies van huishoudens (mensen en hun huisdieren) completeren de jaartotale ammoniak emissies in Nederland.

### 4.2.1 Ruimtelijke verdeling van emissies

Uit een onderzoek naar regionale ammoniakconcentratieverdelingen met behulp van passieve samplers is gebleken dat het huidige model de ruimtelijke verdeling van de gemeten concentraties goed kan benaderen wanneer de ammoniakemissies met groot ruimtelijk detail (b.v. 500 x 500 m vlakken, aangevuld met individuele bronnen) voorhanden zijn (Bogaard en Hofschreuder, 1996; Bleeker *et al.*, 1998). Wanneer dezelfde berekeningen worden gedaan met de emissies geaggregeerd naar 5000 x 5000 m vlakken, dan blijken de individuele waarnemingen veel minder goed te worden gereproduceerd. Om deze problemen zoveel mogelijk te vermijden zijn bestanden gegenereerd met 500 x 500 m resolutie. Met nadruk moet er op gewezen worden dat de basis van deze emissieverdeling nog steeds wordt gevormd door emissies op gemeenteschaal. De verbetering heeft dus alleen betrekking op de toekenning van emissies aan landbouwgronden t.o.v. niet-landbouw- of natuurterreinen. In Figuur 15 is de verdeling van de totaalemmissies over Nederland weergegeven.

*Tabel 2. Ammoniakemissies voor de relevante categorieën voor de jaren 1980-1997 zoals gebruikt bij de berekeningen. De cijfers zijn afkomstig uit MB95, MB96, MB97 en MB98*

	weiden	stallen	opslag	aanwending	kunstmest	som dierlijke mest	som land- tuinbouw	en	overige emissies	totaal NL
1980	13.8	75.0	1.8	113.7	11.8	204.3	216.1			
1981					11.7	210.6	222.3			
1982					11.6	214.3	225.9			
1983					11.1	215.7	226.8			
1984	15.4	79.6	2.2	120.5	11.6	217.8	229.4			
1985	15.7	83.2	2.5	125.0	12.3	226.4	238.7	16.7		255.4
1986					12.1	230.7	242.8			
1987	16.1	84.8	3.7	126.5	12.2	231.1	243.3			
1988	15.0	83.7	4.6	106.8	11.1	210.1	221.2	11.7		232.9
1989	15.0	82.3	4.8	104.7	10.8	206.8	217.6	11.7		229.3
1990	15.8	83.7	5.2	104.9	10.0	209.5	219.5	11.7		231.2
1991	16.1	86.0	5.5	104.4	9.7	211.9	221.6	11.7		233.3
1992	15.4	85.2	5.8	57.8	9.5	164.2	173.7	11.7		185.4
1993	15.5	88.4	6.2	64.5	9.5	174.5	184.0	11.7		195.7
1994	14.2	85.3	5.9	45.3	9.0	150.8	159.8	11.7		171.5
1995	14.4	86.2	4.0	26.3	9.9	131.0	140.9	11.4		152.3
1996	14.9	86.5	4.1	25.6	9.5	131.1	140.6	11.4		152.0
1997 v	14.2	86.8	4.1	25.4	9.4	130.5	139.9	11.5		151.4

## 4.2.2 Buitenlandse emissies

Buitenlandse emissiegegevens welke nodig zijn om de totale concentraties en deposities in Nederland te kunnen berekenen zijn overgenomen uit ECE-EMEP rapportages (EMEP, 1998). Deze gegevens zijn - waar mogelijk - gebaseerd op door landen verstrekte informatie.

In Tabel 2 zijn de totaalemissies voor een aantal west-europese landen vermeld. De ruimtelijke verdeling van de emissies is gebaseerd op het werk van Asman (1992) en betreft emissies op de schaal van gemeenten in België en op de schaal van 'Kreisen' in Duitsland. Overige landen kennen een ruimtelijke resolutie van 75\*75 km. De verdeling van de emissies in de grensgebieden met Nederland is zichtbaar in Figuur 15. Met name in West-Vlaanderen zijn de ammoniakemissies van een vergelijkbare dichtheid als die in Noord-Brabant. De ontwikkeling van emissies in vooral België en Duitsland is van invloed op de situatie in Nederland. Uit Tabel 3 blijkt echter dat de veranderingen sinds 1985 niet groot zijn.

Tabel 3. Ammoniakemissies in omliggende landen voor de jaren 1985, 1990 en 1996.

	NH <sub>3</sub> emissie [kton a <sup>-1</sup> ]		
	1985	1990	1996
België	89	104	97
Luxemburg	7	7	8
Duitsland (W+O)	588+269	557+212	523+128
Verenigd Koninkrijk	320	320	320
Frankrijk	700	700	668
Denemarken	126	122	99

## 4.3 Gebruikte meteorologische gegevens en andere data

### *Meteorologische basisgegevens*

De meteorologische basisgegevens die gebruikt zijn voor deze studie zijn afkomstig van het KNMI. Het betreft uurlijkse metingen van windsnelheid, windrichting, temperatuur, globale straling, relatieve vochtigheid, neerslagduur en neerslagintensiteit op een zestiental hoofdstations. Omdat oude resultaten van het OPS model vooral waren gebaseerd op meteorologische waarnemingen uit het LML en in 1993 op waarnemingen van het KNMI is overgegaan is onderzocht wat dit voor verschillen opleverde. Hoewel de verschillen binnen de 10% blijven zijn - ter wille van de consistentie - alle nieuwe resultaten gebaseerd op KNMI waarnemingen, ook die van de periode vóór 1993. In het nieuwe OPS model worden bij een bepaalde bron-receptor combinatie automatisch de meest nabije waarnemingen gebruikt.

### *Ruwheidslengte en landgebruik*

De basis van de landgebruiks- en terreinruwheidsgegevens die in het OPS model wordt gebruikt is de LGN86 landgebruikskaart (resolutie 25 x 25 m). Per landgebruikstype wordt een karakteristieke ruwheidslengte gekozen op basis van literatuurgegevens. Daarna vindt een ruimtelijke aggregatie plaats waarbij de ruwheidslengten logaritmisch worden gewogen. In de oude benadering (OPS-APV3 versie) werd een aggregatie naar 5000 x 5000 m vakken toegepast welke dezelfde detaillering als de emissies had. De lokale ruwheidslengte op meetstations kan sterk afwijken van die van het 5000 x 5000 m vlak. Dit heeft consequenties voor zowel lokale dispersie als droge depositie, resulterend in soms substantiële concentratieverschillen. Om een goede vergelijking met de meetstations mogelijk te maken is in deze studie uitgegaan van een

---

aggregatieniveau van 1000 x 1000 m. Meer detaillering heeft ook het voordeel dat met het model meer lokale effecten op droge depositie in kaart kunnen worden gebracht.

## 5. Resultaten

### 5.1 Vergelijking van modelresultaten met metingen

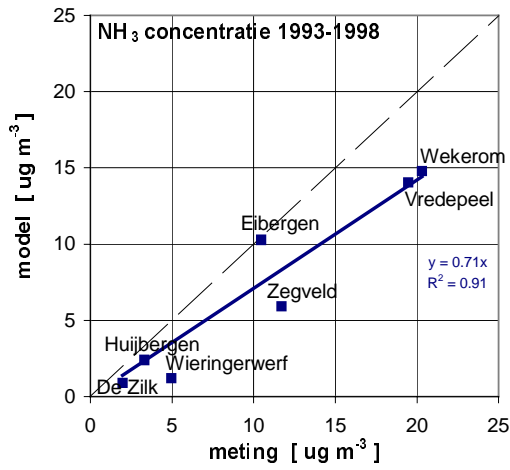
Het voordeel van een universeel transport en verspreidingsmodel als OPS is dat belangrijke basisfuncties van het model kunnen worden gevalideerd aan de hand van stoffen waarvoor veel en kwalitatief goede metingen en emissiegegevens voorhanden zijn. Aspecten als dispersie en transport als functie van meteorologie zijn gevalideerd aan de hand van SO<sub>2</sub> en NO<sub>x</sub> metingen uit het LML (Van Jaarsveld, 1995). In het onderhavige geval kan dus worden geconcentreerd op de typische aspecten van ammoniakverspreiding. Omdat de absolute emissieniveaus van ammoniak op voorhand al ter discussie staan is het, bij de beoordeling of het model de werkelijkheid kan beschrijven, noodzakelijk om onderscheid te maken tussen een vergelijking op basis van absolute niveaus en een op relatieve niveaus. Dit laatste kan weer worden gesplitst in de beschrijving van de (relatieve) ruimtelijke verdelingen ofwel ruimtelijke gradiënten en de beschrijving van (relatieve) niveaus als functie van de tijd.

#### 5.1.1 Beschrijving van de ruimtelijke verdelingen

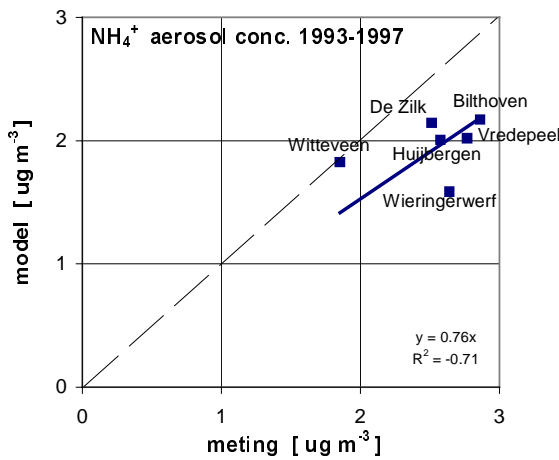
In Figuur 16 zijn concentraties van ammoniak en ammoniumaërosol en natte depositie van ammonium per meetlocatie vergeleken met modelresultaten voor dezelfde lokaties. Om vooral te concentreren op het vermogen van het model de ruimtelijke verdelingen weer te geven zijn de metingen en modelresultaten eerst gemiddeld over de totale periode waarvoor metingen beschikbaar zijn. Uit Figuur 16a blijkt dat de grote ammoniakconcentratie-verschillen tussen de meetpunten goed in door het model gerepresenteerd worden. Ongeveer 90 % van de ruimtelijke verschillen worden verklaard. Door de lange middelingstijd kunnen de gevonden verschillen als systematisch worden gekenmerkt. Deze systematische verschillen kunnen worden veroorzaakt door de beperkte lokale representativiteit van de gebruikte emissiebestanden, immers de landbouwemissies zijn alleen op gemeenteniveau opgenomen, niet op bedrijfsniveau. Dit soort ruimtelijke aspecten zijn duidelijk naar voren gekomen uit een recente TNO/RIVM/ECN studie naar regionale ammoniakconcentraties (Duyzer *et al.*, 1998); Bleeker *et al.*, 1998)).

Het meetpunt Eibergen valt op omdat daar systematisch hogere concentraties worden berekend en Zegveld met systematisch (enigzins) lagere concentraties. Duidelijk valt op dat de gemeten concentratie in Wieringerwerf veel hoger is (factor 4) dan de berekende waarde. Opvallend daarbij is dat de ammoniumaërosolconcentratie (Figuur 16b) maar met name ook de natte depositie (Figuur 16c) op dit meetpunt aanzienlijk hoger is dan berekend. Dit moet betekenen dat de lokale of regionale emissie van ammoniak in dit gebied hoger moet zijn dan aangenomen. In het betreffende gebied liggen niet veel veeveeltbedrijven. Uitsplitsing van de gemeten concentraties naar windrichting levert ook geen aanwijzing op van een specifieke lokale ammoniakbron. De verklaring ligt mogelijk in een veel grotere invloed van mestaanwending in dit akkerbouwgebied. De relatief hoge concentraties in het voorjaar op dit meetpunt wijzen ook in deze richting.

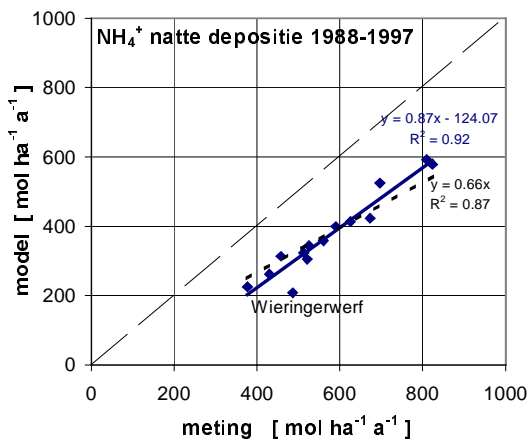
Uit Figuur 16b blijkt dat de landelijke verschillen in ammoniumaërosolconcentraties klein zijn, de meeste concentraties liggen binnen 10% van het landelijk gemiddelde. Uitzondering vormt het meetpunt Witteveen dat lagere concentraties geeft. Zoals al eerder is betoogd is dit meetpunt niet representatief voor het betreffende gebied omdat het in de loop der tijden



(a)



(b)



(c)

Figuur 16. Vergelijking van modelresultaten met LML metingen illustrerend de mate waarin het model de ruimtelijke verdeling van ammoniak en ammonium beschrijft. Daartoe zijn zowel metingen als modelresultaten gemiddeld over de totale periode waarvoor data beschikbaar is. De stippellijnen in de figuren geven de ideale overeenkomst weer.

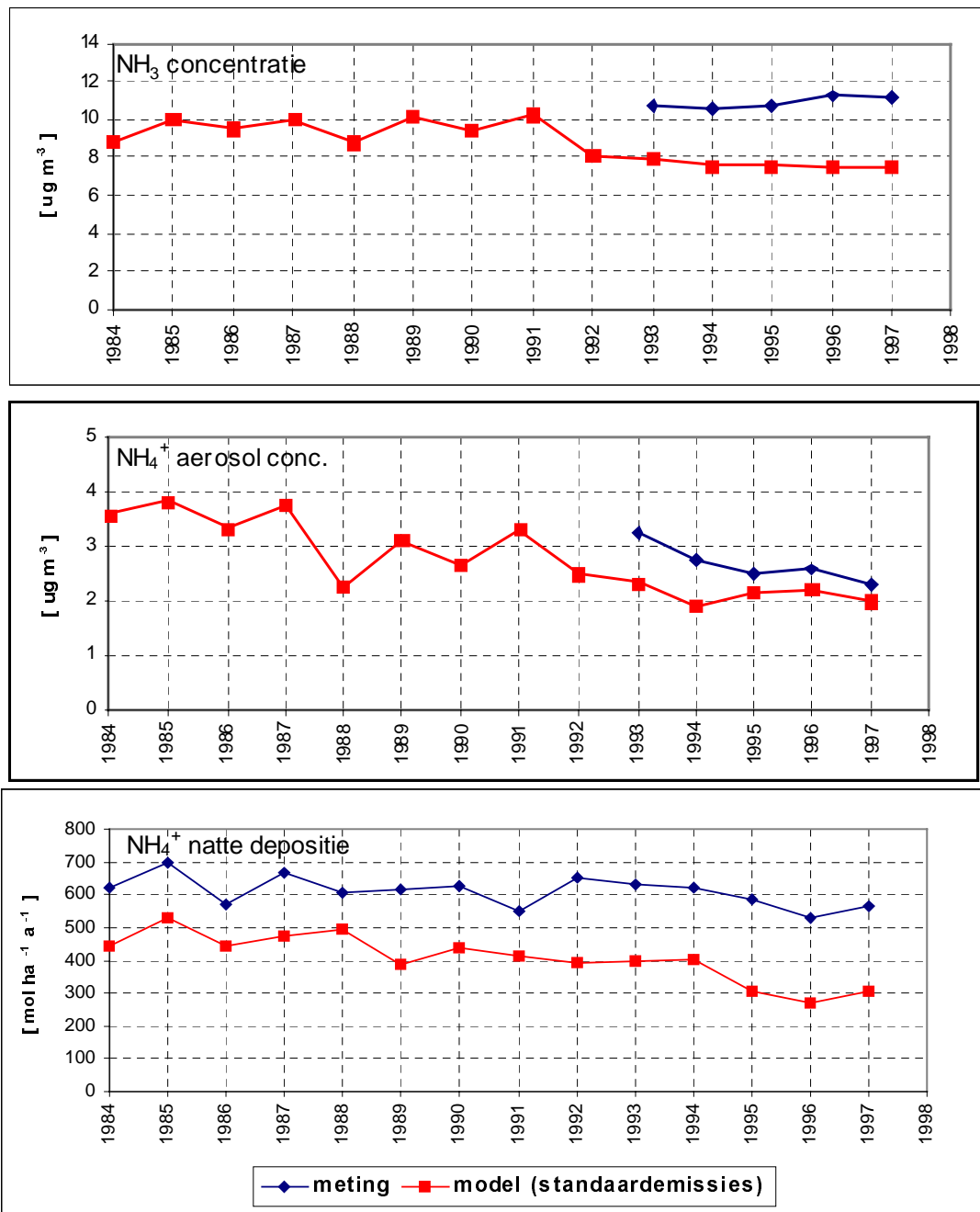


nagenoeg is overgroeid door bomen. Om deze reden is het ook in de ammoniakvergelijking niet opgenomen.

De stelling dat ammoniumaërosolconcentraties sterker zijn gerelateerd aan sulfaat- en nitraataërosolconcentraties dan aan ammoniakconcentraties lijkt door de concentratieverdeling van ammonium te worden bevestigd.

De ruimtelijkeverdeling van natte depositie wordt uitstekend beschreven (Figuur 16c).

Uit Figuur 16c blijkt ook dat de natte depositie vooral wordt bepaald door de natte depositie van ammoniak (hoogste waarden op stations Vredepeel en Eibergen, laagste waarden op De Zilk). De regressielijn in Figuur 16c heeft een richtingscoëfficiënt die dicht tegen de één ligt maar een duidelijke negatieve off-set heeft. Dit betekent dat voor alle meetpunten de concentratie met eenzelfde waarde worden onderschat. Waar dit aan ligt is niet geheel



Figuur 17. Vergelijking van trends in metingen en berekeningen van de concentraties van ammoniak en ammoniumaërosol en natte depositie. Meet- en modelresultaten gemiddeld over alle meetpunten.

zou dit aan een niet geheel correct gemodelleerde achtergrondconcentratie kunnen liggen of dat de berekende ammoniumaërosol invloed te laag is.

### 5.1.2 Beschrijving van veranderingen in de tijd

In Figuur 17 is het verloop van de concentraties van ammoniak en ammoniumaërosol en natte depositie gegeven op jaarbasis voor de periode dat er (relatief) betrouwbare meetgegevens zijn. Hier zijn de metingen en ook de modelresultaten steeds gemiddeld over alle stations (het station Witteveen is alleen meegenomen bij de natte depositie).

Uit deze figuur blijkt dat het model steeds aanzienlijk lagere concentraties en deposities berekend dan er is gemeten. De jaar tot jaar veranderingen worden door het model wel redelijk gevolgd. Zelfs in de periode toen er nog geen emissie maatregelen waren getroffen (1987) onderschat het model de natte depositie metingen met ongeveer 20%. De berekende ammoniakconcentraties in de periode tot 1992 zijn aanzienlijk hoger dan die in de periode daarna maar bereiken de gemeten niveaus van 1993-1997 niet. Opvallend hierbij is dat de berekende ammoniakconcentratie in de periode 1993 t/m 1997, veel minder daalt dan de 23% emissiedaling in diezelfde periode (zie Tabel 2). Verderop in dit hoofdstuk zal blijken dat de verspreidingscondities in deze periode zodanig zijn geweest dat de verlaging van de emissies voor een aanzienlijk deel werd gecompenseerd. Bovendien blijkt de categorie aanwending – waarvoor verreweg de grootste emissiedaling is berekend - relatief minder door te werken in ammoniakconcentraties dan de overige emissies.

In tegenstelling tot de ammoniakconcentraties dalen de gemeten (en ten dele ook de berekende) ammoniumaërosolconcentraties wel in de periode 1993-1997. Zoals al eerder betoogd wordt de concentratie van ammonium in aërosol vooral bepaald door de mate waarin  $\text{SO}_2$  wordt geoxideerd en veel minder door de hoogte van de ammoniakconcentraties. Het ammoniumaërosolverloop in de tijd vertoont dus grote overeenstemming met  $\text{SO}_4^{2-}$  concentraties en daarmee ook met de alom dalende  $\text{SO}_2$  niveaus. De invloed van dit fenomeen op veranderende ammoniakconcentraties zal in dit hoofdstuk nader worden gekwantificeerd.

## 5.2 Factoren die absolute emissie-concentratierelaties bepalen

Op basis van de gegevens in Figuur 17 kan gesteld worden dat er voor alle jaren een onderschatting is van gemeten waarden. Dit geldt voor zowel ammoniakconcentraties, ammoniumconcentraties en natte depositie van ammonium. Er is dus sprake van een absolute onderschatting. De hoogte hiervan kan het beste worden bepaald aan de hand van de ammoniakconcentraties, omdat deze het minst worden beïnvloed door buitenlandse emissies. Helaas ontbreken betrouwbare gegevens voor de jaren 1984-1992. Wanneer wordt verondersteld dat de 1993 en 1994 meetgegevens ook representatief zijn voor de jaren tachtig dan kan gesteld worden dat de absolute onderschatting 10-15% bedraagt. Wanneer wordt uitgegaan van de natte depositie, dan is de onderschatting groter (15-20%). De invloed van buitenlandse emissies is hier echter aanmerkelijk groter (ca. 40%, zie Paragraaf 5.5; Tabel 5).

Het is onwaarschijnlijk dat de absolute verschillen tussen modelberekeningen en metingen worden veroorzaakt door meteorologische aspecten (verduunning, transport). Deze aspecten zouden namelijk ook bij berekeningen met stoffen als  $\text{SO}_2$  en  $\text{NO}_x$  tot soortgelijke verschillen moeten leiden en dat blijkt niet zo te zijn (van Jaarsveld, 1995). Meer specifieke aspecten van ammoniak in de richting van omzetting en natte depositie kunnen hier ook geen belangrijke oorzaken zijn van verschillen omdat de gemodelleerde ammoniumconcentraties en natte depositie in ongeveer dezelfde mate lager zijn dan de metingen.

Het belangrijkste verliesproces van ammoniak is droge depositie (zie Figuur 1). Dit proces is in veel mindere mate met metingen gekwantificeerd. Bovendien zijn de inzichten in dit proces voor wat betreft ammoniak aan het verschuiven van een éénrichtingsproces (depositie) naar een tweérichtingsproces (droge depositie afgewisseld met emissie). De droge depositie-metingen waarop de parameters in het OPS model zijn gebaseerd zijn vooral uitgevoerd voor natuurterreinen. In termen van verliezen is gras en bouwland echter van meer belang vanwege het veel grotere areaal in Nederland. Het is mogelijk dat de (effectieve) depositiesnelheid voor dit type terrein lager is dan de waarde in modellen gehanteerd. Suggesties in deze richting zijn bijvoorbeeld gedaan door Plantaz (1998). Het effect van een lagere depositiesnelheid op modelresultaten is berekend met OPS voor de aanname dat de oppervlakteweerstand  $R_c$  (zie Hoofdstuk 2.3) voor gras en bouwland tweemaal zo hoog is dan die in het gehanteerde parametrisatieschema. Dit brengt de volgende veranderingen teweeg (gemiddeld over de ammoniakmeetpunten):

NH <sub>3</sub> concentratie	+	14 %
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> concentratie	+	19 %
droge depositieflux NH <sub>x</sub>	-	2 %
natte depositieflux NH <sub>x</sub>	+	20 %
totale depositieflux NH <sub>x</sub>	+	2 %
effectieve depositiesnelheid	-	15 %

De belangrijkste conclusie hieruit is dat met een - niet extreme – depositiesnelheidsverlaging (15%) een aanzienlijke ammoniakconcentratieverhoging (14%) wordt berekend. Deze verhoging is groter in emissiearme gebieden (~ 17 %) dan in emissierijke gebieden (~ 13%). Opvallend is ook dat een verlaging van de depositiesnelheid relatief weinig invloed heeft op de totale depositieflux. Dit laatste is het gevolg van massabehoud immers het effect van de gereduceerde depositiesnelheid wordt deels gecompenseerd door de concentratietoename. De aldus verkregen veranderingen in modelresultaten zouden de vergelijking met metingen zoals in Figuur 16 en 17 verbeteren.

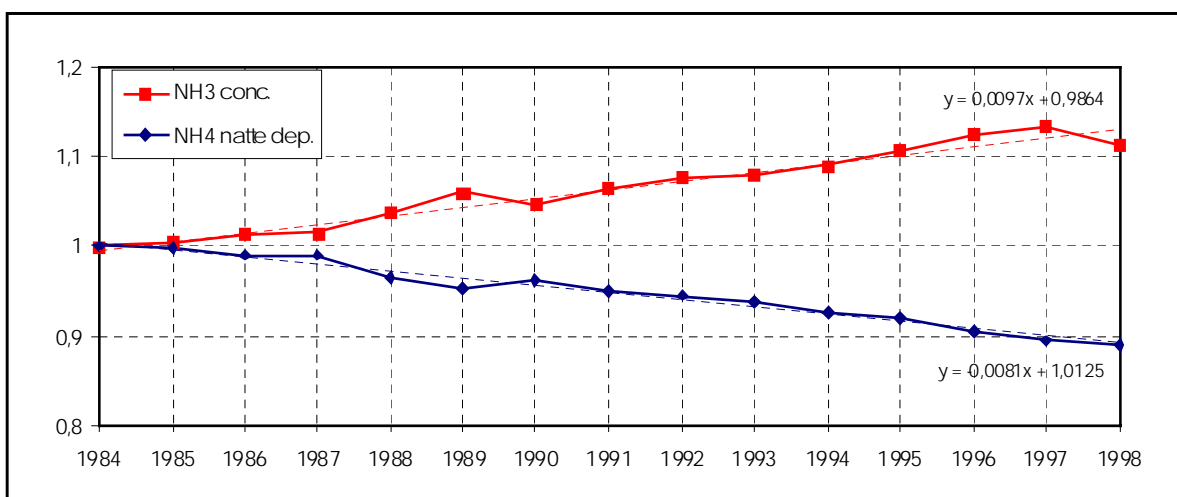
Absolute verschillen tussen metingen en berekeningen zouden dus voor een belangrijk deel te verklaren kunnen zijn met onzekerheden in droge depositiesnelheden. Dit gegeven zou via droge depositiemeetopstellingen nader moeten worden onderzocht.

### 5.3 Kwantificering van trends in emissie-concentratie relaties

Een verandering in emissies van ammoniak leidt niet noodzakelijkerwijs tot evenredige veranderingen in concentraties en/of deposities. Van belang in de context van dit onderzoek zijn vooral de veranderingen in relaties die structureel zijn of zich uitstrekken over aaneengesloten jaren. De relevante processen en de belangrijkste variabelen zijn in Hoofdstuk 1 al aangegeven. In deze paragraaf zullen de invloeden worden gekwantificeerd, voor zover dat deze processen ook in het OPS model zijn opgenomen. Van een aantal andere invloeden zal een orde van grootte schatting worden gegeven.

### 5.3.1 Invloed chemie op NH<sub>x</sub> tijdreeksen

De invloed van de veranderende chemische samenstelling van de atmosfeer op de ammoniak- en ammoniumniveaus in Nederland is bepaald door de verhouding te nemen tussen de resultaten zoals berekend in Figuur 17 en de resultaten voor dezelfde jaren welke ontstaan als precursorconcentraties SO<sub>2</sub> en NO<sub>2</sub> worden gefixeerd op het 1984 niveau. Figuur 18 geeft weer wat het verloop van de ammoniakconcentratie en de natte depositie is t.g.v. een veranderde omzetting t.g.v. veranderende precursorconcentraties. Dan blijkt het dat de ammoniakconcentratie gemiddeld met ongeveer 0.9% per jaar stijgt (bijna 5% in periode 1993-1997). Ammoniumaërosolconcentraties nemen door dit fenomeen vrij sterk af (gemiddeld -3.4% per jaar). Het effect op natte depositie is ook negatief (gemiddeld -0.8% per jaar). De gemiddelde omzettingssnelheid voor de beschouwde locaties daalt effectief van 14,6 %/uur in 1984 tot 5,6 %/uur in 1998.



*Figuur 18. De invloed van de veranderende chemische samenstelling van de atmosfeer op de omzetting van ammoniak. Aangegeven is de verhouding tussen de modelberekeningen in Figuur 17 en modelberekeningen onder aanname van constante precursorconcentraties van SO<sub>2</sub> en NO<sub>2</sub> op het niveau van 1984. Weergegeven zijn het verloop van de ammoniakconcentraties en de natte depositie relatief t.o.v. 1984.*

### 5.3.2 Invloed chemie en meteorologie op NH<sub>x</sub> tijdreeksen

De invloed van alle autonome processen (inclusief chemie) is bepaald op dezelfde wijze als die van de chemische samenstelling. Hier zijn de afzonderlijke jaren doorgerekend met de actuele meteorologie maar steeds met de emissies van 1993. De resultaten staan in Figuur 19. Opvallend in deze figuur is dat alle meteorologische situaties in de periode vanaf 1993 en tot en met 1997 zodanig waren dat er hogere ammoniakconcentraties worden berekend dan voor 1993. Voor de ammoniakconcentraties geeft dit een verandering in 1997 van ongeveer 12% t.ov. 1993. Er blijkt dus een aanzienlijke compensatie geweest te zijn voor de verwachte daling van ammoniakconcentraties onder invloed van de lagere emissies in de periode na 1993. Volgens Tabel 1 was de emissiedaling in 1997 23% t.ov. 1993. Ongeveer de helft van deze daling wordt dus door meteorologische veranderingen gecompenseerd. In 1998 zal de ammoniakconcentratie

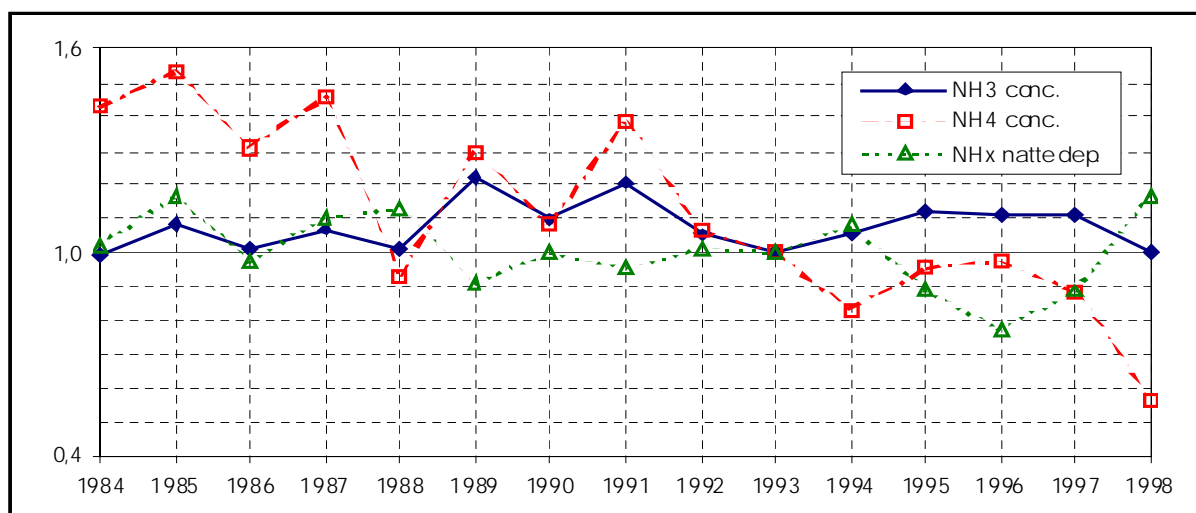
Tabel 4. Spreiding van jaargemiddelde concentraties en deposities ten gevolge van meteorologische invloeden en veranderingen in chemische omzettingen. De berekeningen zijn gebaseerd op emissies voor het jaar 1993.

	Standaarddeviatie van jaargemiddelden (in %) periode 1984 – 1998
NH <sub>3</sub> concentratie	6.6
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> concentratie	25.0
Droge depositie	4.5
Natte depositie	11.0
Totale depositie	4.3

volgens deze berekeningen wel duidelijk moeten dalen. Natte depositie blijkt sterker te variëren onder invloed van meteorologische condities. Met name de variatie in neerslaghoeveelheid is hier debet aan. De neerslaghoeveelheid was in de jaren 1995-1997 lager dan in 1993 (zie figuur 13). Ammoniumaërosolconcentraties variëren vrij sterk van jaar tot jaar. Dit heeft enerzijds te maken met de neerslagvariatie omdat aërosolen efficiënt door neerslag uit de atmosfeer worden verwijderd en anderzijds door verschillen in windrichtingfrequenties (bij oostenwind hogere precursorconcentraties). De systematische daling van ammoniumaërosolconcentraties weerspiegelt hier voornamelijk de daling in SO<sub>2</sub> concentraties in Europa.

De invloed van jaar tot jaar veranderingen is verder gekwantificeerd in Tabel 4. Het blijkt dat variaties in totale depositie aanzienlijk kleiner zijn veranderingen in concentraties. Dit komt enerzijds door (negatieve) correlaties tussen ammoniakconcentraties en droge depositiesnelheden en anderzijds door competitie tussen droge en natte depositieprocessen via massabehoud.

### 5.3.3 Andere factoren die invloed hebben op trends in NH<sub>3</sub> concentraties



Figuur 19. De invloed van meteorologische en chemische veranderingen op concentraties NH<sub>3</sub> en NH<sub>4</sub><sup>+</sup> en natte depositie. Het referentiejaar is 1993.

*Veranderingen in droge depositiesnelheden door NH<sub>3</sub>-SO<sub>2</sub> co-depositie*

Zoals uit Figuur 1 blijkt is droge depositie het belangrijkste verliesproces voor atmosferisch ammoniak. Systematische veranderingen in de droge depositiesnelheid van ammoniak kunnen daarom van grote invloed zijn op trends in ammoniakconcentraties. Metingen van depositiesnelheden van ammoniak zijn schaars en bovendien veelal te incidenteel om interpretatie in deze zin toe te laten. Anderzijds wordt er in laboratoriumproeven een relatie gevonden tussen depositiesnelheden van NH<sub>3</sub> en SO<sub>2</sub> waarbij de beïnvloeding geschiedt via de zuurgraad van (vocht op) bladoppervlakken (Adema *et al.*, 1986; van Hove *et al.*, 1989). Aangezien SO<sub>2</sub>-concentraties sterk zijn gedaald in de afgelopen 15 jaar zou ook de depositiesnelheid van ammoniak hierdoor gedaald kunnen zijn. Een (harde) empirische bevestiging van deze vorm van co-depositie is er (nog) niet.

De orde van grootte van het effect van co-depositie is in deze studie onderzocht. Hierbij is gebruik gemaakt van oppervlakteweerstandparametrisaties afgeleid uit de experimenten op de (heide) locatie Elspeetsche Veld (Erisman en Wyers, 1993) in combinatie met het weerstandsmodel beschreven in Erisman *et al.* (1994). Dit model gaat er van uit dat de wederzijdse beïnvloeding van NH<sub>3</sub> en SO<sub>2</sub> plaatsvindt als het bladoppervlak nat is. Erisman en Wyers definiëren oppervlakteweerstanden in deze situatie voor hoge en lage verhoudingen NH<sub>3</sub>/SO<sub>2</sub> zonder daarbij scherp te definiëren wat hoog en laag is. In de berekeningen zoals in deze studie uitgevoerd zijn, is verondersteld dat de verhouding NH<sub>3</sub>/SO<sub>2</sub> in 1984 laag was en in 1997 hoog (uit metingen volgt een verhouding van 0.5-3 in 1984 en 2-15 in 1997, afhankelijk van de locatie). In termen van depositiesnelheden in natte omstandigheden betekent dit ongeveer een halvering in 1997 t.o.v 1984. In termen van jaargemiddelde ammoniakconcentraties betekent dit een verandering van ongeveer 10% in gebieden met hoge ammoniakconcentraties tot 15% in gebieden met lage concentraties. De beperkte doorwerking op ammoniakconcentraties is het gevolg van het feit dat de ammoniakconcentraties in deze (natte)omstandigheden relatief laag zijn. Wanneer wordt aangenomen dat de verandering in depositiesnelheid in de periode van 1984-1997 geleidelijk heeft plaats gevonden dan zou dit voor de periode 1993-1997 een stijging van de ammoniakconcentratie betekenen van 3 tot 4.5 %. In termen van emissietrends is dit niet te verwaarlozen. Met nadruk dient echter gesteld dat dit indicatieve getallen zijn welke eerder aan de hoge dan aan de lage kant zijn.

*Veranderingen in droge depositie door hogere stikstofbemesting via NH<sub>3</sub> canopy compensatiepunt*

Een andere oorzaak van verminderde droge depositie in de afgelopen jaren kan gelegen zijn in effecten van verhoogde stikstofbeschikbaarheid op gras- en bouwland (Erisman en Monteny, 1999). Immers, bij gelijkblijvende bemesting (in kg/ha), zal bij het onderwerken van mest minder stikstof verdampen dan bij bovengrondse aanwending, waardoor er aanzienlijk meer stikstof beschikbaar is voor opname door het gewas. Dit kan leiden tot een hogere apoplast NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-concentratie zoals door Schørring (1997) is aangetoond voor koolzaad en gerst. De apoplast NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-concentratie bepaald de hoogte van het zogenaamde ammoniakcompensatie-punt. Dit is de ammoniakconcentratie in de lucht binnen de stomatale caviteiten waarbij geen netto-uitwisseling met de atmosfeer meer plaatsvindt (Schørring, 1997). Wanneer de afhankelijkheid van deze concentratie van de stikstofbeschikbaarheid ook voor gras en andere gewassen opgaat dan zou de droge depositie in grote delen van Nederland netto zijn gedaald in recente jaren en daarmee de ammoniakconcentratie gestegen.

Hoewel het compensatiepunt fenomeen als bewezen mag worden beschouwd, is het nog niet goed mogelijk om dit in zijn algemeenheid toe te passen in een verspreidingsmodel. Daarvoor ontbreken voor veel gewassoorten de relevante parametrisaties. Wel kan gezegd worden dat het compensatiepunt fenomeen vooral van invloed is in droge omstandigheden en bij hogere

temperaturen. Dit zijn inderdaad de omstandigheden waarin het model de gemeten concentraties meer onderschat dan in andere omstandigheden.

In principe kan de gevoeligheid van de emissie-concentratierelatie voor (veranderende) compensatiepunten worden getest door het invoeren in het model van (geschatte) compensatiepunten per landgebruikstype. Dit is echter een tamelijk omvangrijke actie die niet in deze studie uitgevoerd kon worden.

#### *Veranderingen in neerslagsamenstelling op natte depositie en luchtconcentraties van NH<sub>3</sub>*

In principe kan, net als de omzettingssnelheid van ammoniak naar ammonium, de opnamesnelheid van ammoniak in regenwater in de loop der jaren zijn veranderd met als gevolg een veranderende ammoniakconcentratie. De pH waarde van regenwater in Nederland nam bijvoorbeeld toe van 4.7 in 1988 tot 5.3 in 1997. De wateroplosbaarheid van ammoniak is echter zo hoog dat de opnamesnelheid van ammoniak in regendruppels (nog) niet wordt begrensd door verzadiging van de druppels maar vooral door de diffusiesnelheid van ammoniak in de lucht. Een veranderende invloed op ammoniakconcentraties is daarom niet te verwachten.

## 5.4 Schatting van de trend in ammoniakemissies in Nederland

Figuur 17 laat zien dat de berekende en gemeten trend in ammoniakconcentraties niet parallel loopt. Dit betekent dat de werkelijke emissiedaling minder groot is dan aangenomen. Op basis van de resultaten van de metingen en de kwantificering van een aantal invloeden eerder in dit hoofdstuk is het mogelijk te schatten welke relatieve emissieverandering wel heeft plaatsgevonden. Wederom wordt hier geconcentreerd op de periode 1993 t/m 1997 omdat daarvoor metingen beschikbaar zijn.

verandering in gemeten concentratie	+	6.3 %
invloed meteorologie	-	7 %
invloed chemie	-	5 %
<u>invloed co-depositie (niet in modelberekeningen opgenomen)</u>	-	<u>(0 .. 3) %</u>
netto verandering concentratie t.g.v. emissieverandering	-	(5.7 .. 8.7)%

De gevonden netto-daling van concentraties laat zich niet direct vertalen in emissiedaling omdat de emissie-concentratie relatie niet voor alle emissiesoorten dezelfde is (zie Tabel 5). Er wordt onderscheid gemaakt in twee hoofdgroepen: de groep stal + opslagmissies ( $E_{stal}$ ) en de groep overige Nederlandse emissies welke wordt gedomineerd door aanwendingsemissies ( $E_{mest}$ ) d.i. aanwending en weide + kunstmest. De relatieve emissie-concentratierelaties wordt aangeduid met resp.  $EC_{stal}$  en  $EC_{mest}$ . De werkelijke procentuele dalingen in de twee emissiegroepen in de periode 1993-1997 worden  $\Delta_{stal}$  en  $\Delta_{mest}$  genoemd.

De volgende vergelijking voor de gevonden netto-daling van concentraties kan nu worden opgesteld:

$$0.936 \times (E_{stal} \times EC_{stal} \times \Delta_{stal} + E_{mest} \times EC_{mest} \times \Delta_{mest}) / (E_{stal} + E_{mest}) = 5.7 \dots 8.7 \%$$

De factor 0.936 geeft de fractie van de concentraties in Nederland die worden veroorzaakt door Nederlandse bronnen. Er wordt dus van uit gegaan dat de buitenlandse emissies niet veranderen.  $E_{stal}$  en  $E_{mest}$  worden gegeven in Tabel 2 en bedragen 88.6 resp. 107.3 kton voor het

Tabel 5 Relatieve bijdragen van emissiesoorten aan concentraties en deposities in 1997. Waarden zijn berekend als gemiddelden voor 7 geselecteerde NH<sub>3</sub> meetpunten van het LML.

	Buitenlandse bronnen (in % van de totale bijdrage)		Nederlandse bronnen (in % van de Nederlandse bijdrage)			
			Stallen	Aanwending	Weide + kunstmest	Overig
emissie			60.0*	16.8*	15.7*	7.6*
NH <sub>3</sub> concentratie	6.4		80.8	9.7	7.7	1.9
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> concentratie	6.6		79.6	5.6	5.4	9.4
natte depositie	39.1		66.1	13.7	12.6	7.6
droge depositie	11.0		72.1	13.9	11.4	2.6
totale depositie	16.8		71.2	13.9	11.6	3.4

\* percentage van totale NH<sub>3</sub> emissie in Nederland

referentiejaar 1993.  $EC_{stal}$  en  $EC_{mest}$  worden gegeven in Tabel 5 en zijn resp. 80.8 / 60.0 en 9.7 / 16.8. Deze vergelijking met twee onbekenden is niet oplosbaar, wanneer er echter - conform Tabel 2 - van wordt uitgegaan dat de emissieverandering in de periode 1993 t/m 1997 bijna uitsluitend heeft plaatsgevonden in de aanwendingsemissies en dus  $\Delta_{stal}$  verwaarloosbaar klein gesteld kan worden dan volgt uit de vergelijking dat  $\Delta_{mest} = 19.3 \dots 29.4 \%$ .

Hiermee is een totale emissiedaling te berekenen van  $(0.193 \dots 0.294) \times 107.3 = 20.7 \dots 31.6$  kton. Wanneer dit wordt vergeleken met de 'geclaimde' emissiedaling van 44.3 kton in de periode 1993 t/m 1997 dan kan er gesteld worden dat deze daling slechts voor 47 .. 71 % is gerealiseerd. Gezien de onzekerheden in de metingen en modelberekeningen en het speculatieve karakter van de invloed van co-depositie is het wellicht juist om te stellen dat ongeveer de helft van de geclaimde reducties zijn gerealiseerd.

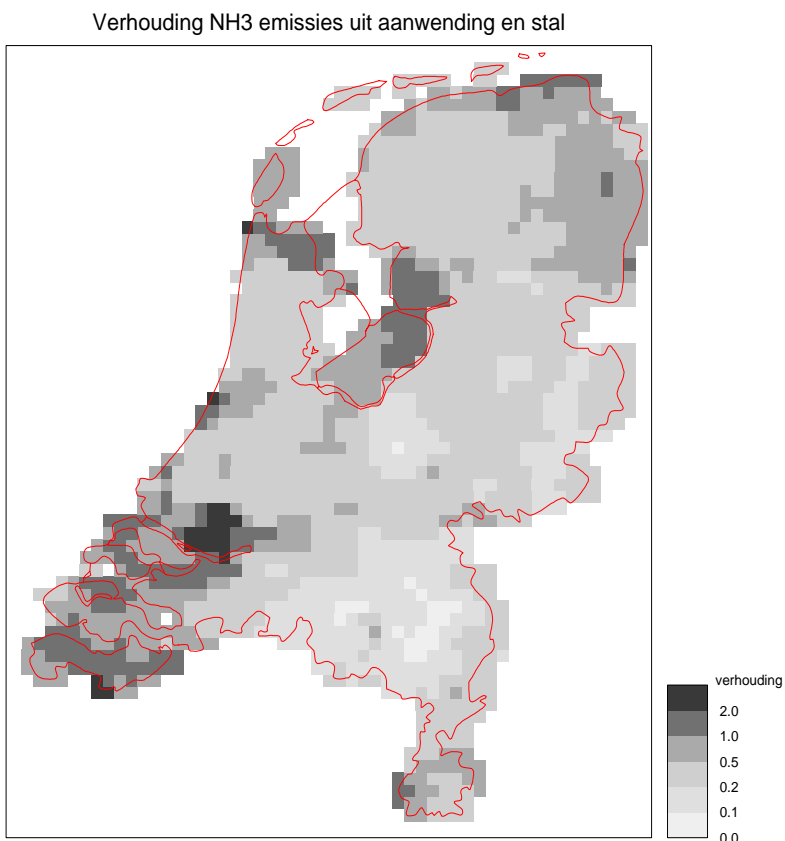
## 5.5 Invloed aanwendingsemissies versus stalemissies

De belangrijkste ammoniakemissiesoorten volgens Tabel 2 zijn de stallen en mestaanwending. Met name de laatste categorie zou vanaf 1987 sterk zijn gedaald door maatregelen waarvan het onderwerpen van mest de belangrijkste is. Al eerder is betoogd dat het emissiegedrag van stallen en aanwending sterk verschillend is. Dit resulteert in een verschillende doorwerking op luchtconcentraties en deposities. In Tabel 5 is het relatieve effect aangegeven. Uit deze gegevens blijkt dat de aanwending van mest als geheel in Nederland aanzienlijk minder doorwerkt in concentraties en deposities dan men op basis van de emissiebijdrage zou verwachten. Dit heeft vooral te maken met het feit dat emissie uit aanwending van mest sterker is gecorreleerd met (gunstige)verspreidingsomstandigheden dan stalemissies. De consequentie hiervan is wel dat luchtconcentraties van ammoniak minder gevoelige indicatoren zijn voor veranderingen in aanwendingsemissies (en emissies met soortgelijke meteo-afhankelijkheid) dan voor veranderingen in stalemissies. Aangezien de veronderstelde daling van emissies vooral de aanwendingscategorie betreft kan op basis van deze gegevens al op voorhand gesteld worden dat een evenredige daling van luchtconcentraties niet te verwachten is.

Ook de ruimtelijke verdeling van de emissiecategorieën verschilt sterk. Stalemissies zijn sterk gebiedsgebonden met zwaartepunten in NO-Brabant en de Gelderse Vallei.



Aanwendingsemissies zijn veel gelijkmatiger verdeeld over Nederland omdat de aanwending van mest zelf begrensd is via bemestingsnormen. In Figuur 20 is de verhouding tussen aanwendingsemissies en stalemissies geplot als functie van de locatie. De stelling is dat meetpunten als De Zilk en Wieringerwerf sterker worden beïnvloed door aanwendings-emissies dan meetpunten als Vredepeel en Wekerom. Bovendien is gebleken dat het concentratieverloop over de dag op deze meetpunten sterk verschilt (Zie Figuur 6). In het kader van de huidige vraagstelling is het interessant te onderzoeken hoeveel de emissiecategorieën bijdragen aan ammoniakconcentraties op verschillende meetpunten en of hieruit aanwijzingen gevonden kunnen worden of een van de emissiecategorieën wordt over- of onderschat. In de volgende paragrafen wordt gepresenteerd wat aan de emissies aangepast zou kunnen worden om een optimale vegelijking te verkrijgen tussen metingen en modelberekeningen van ammoniakconcentraties.



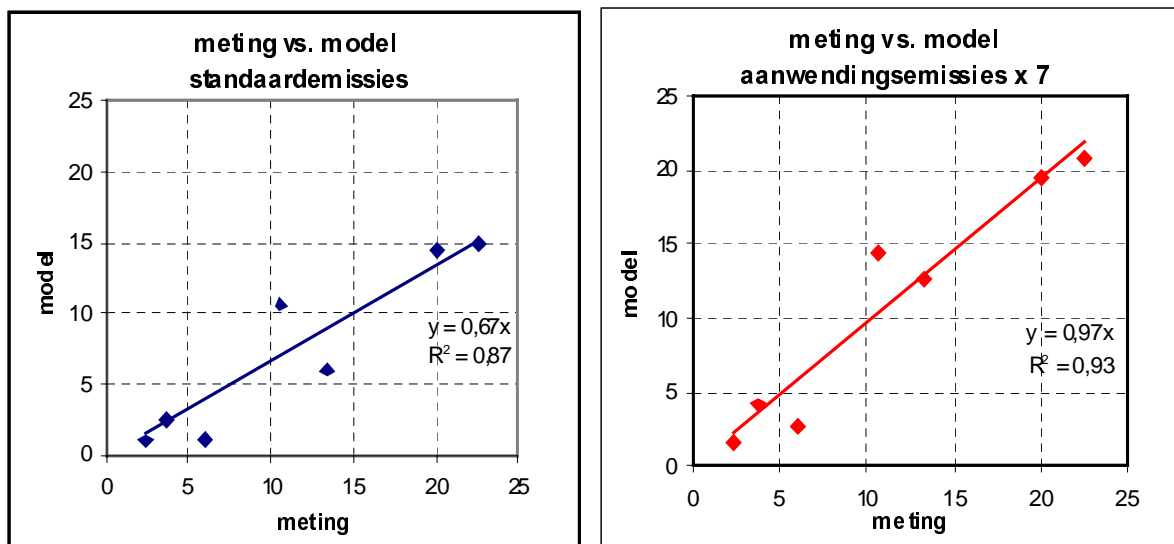
*Figuur 20. De verhouding van aanwendings- en stalemissies in Nederland.*

Tabel 6. Berekende  $NH_3$  concentraties voor de verschillende meetpunten en de procentuele bijdragen hieraan van een aantal emissiesoorten. Jaargemiddelden 1997.

meetstation	$NH_3$ concentratie. berekend	$NH_3$ bijdragen emissiesoorten:				
		stal	aanwending	Weide kunstmest	+ overig	buitenland.
	$\mu g\ m^{-3}$	%	%	%	%	%
Vredepeel	14.5	85.5	6.5	2.8	0.7	4.6
Huibergeren	2.7	37.0	12.6	9.6	6.7	34.0
De Zilk	0.8	50.0	12.5	4.3	18.1	15.1
Wieringerwerf	1.3	46.2	23.1	17.8	4.8	8.2
Zegveld	6.4	57.8	18.4	17.7	3.0	3.1
Eibergen	10.8	76.9	6.7	6.5	0.8	9.2
Wekerom	15.5	83.2	7.3	6.3	1.0	2.2

### 5.5.1 Optimalisatie emissiesoorten op basis van ruimtelijke verdelingen

Uit Tabel 5 blijkt dat stalemissies domineren maar dat de aanwendingsemissies in een aantal gevallen een behoorlijke bijdrage hebben. Wanneer de berekende concentraties worden vergeleken met de metingen dan is er ondanks de absolute onderschatting toch een goede correlatie. Er is vervolgens onderzocht in hoeverre de vergelijking met de metingen beter wordt als een van de genoemde categorieën worden verhoogd of verlaagd. Het blijkt dat verhoging van stalemissies wel leidt tot een betere absolute overeenkomst maar niet tot een betere ruimtelijke correlatie ( $R^2$  van de lineaire regressie gaat van 0.87 naar 0.86). Op dezelfde wijze leidt een verhoging van aanwendingsemissies wel tot een betere correlatie. Het resultaat



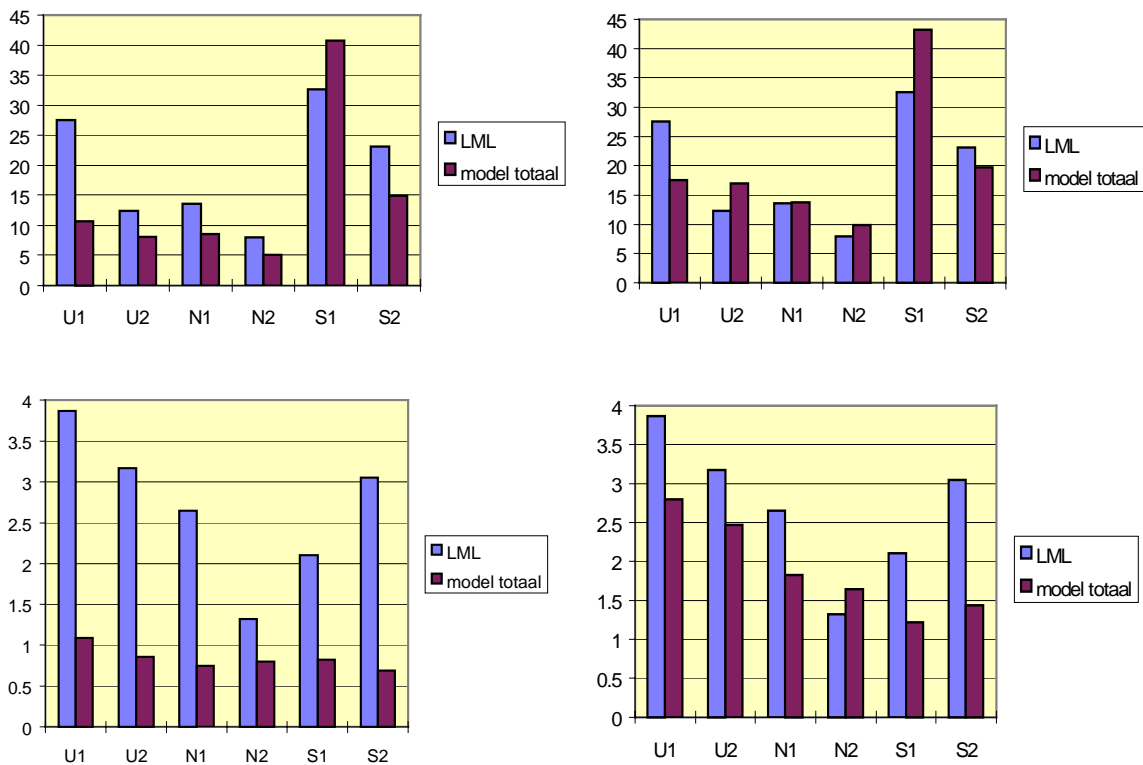
Figuur 21. Vergelijking tussen berekende ammoniakconcentraties en metingen voor 1996. Links het resultaat bij gebruik van de standaard emissies en rechts het resultaat na verhoging van de aanwendingsemissies met een factor 7.

is in Figuur 21 weergegeven. Optimale resultaten worden bereikt als de aanwendingsemissies een factor 7 worden verhoogd.  $R^2$  stijgt dan van 0.87 naar 0.93 en de lineaire regressiecoëfficiënt is nagenoeg 1. Voor 1997 worden vergelijkbare resultaten verkregen.

Bovenstaande is op zichzelf nog geen bewijs dat aanwendingsemissies veel te laag zijn, immers emissies met soortgelijke eigenschappen en gedrag in termen van de ruimtelijke verdeling en meteo-afhankelijkheid zoals weide-, verkeers-, natuurlijke, kunstmest- en huishoudelijke emissies kunnen in principe hetzelfde resultaat bewerkstelligen. In de huidige schattingen zijn deze emissies als som wel veel lager dan de aanwendingsemissies.

## 5.5.2 Optimalisatie emissiesoorten op basis van verspreidings-eigenschappen

Zoals al eerder aangegeven is de emissie t.g.v. aanwending van mest veel sterker afhankelijk van meteorologische omstandigheden dan emissies vanuit stallen. Hieraan gekoppeld is ook een ander verspreidings en depositiegedrag. Op basis van deze verschillen kan ook een optimalisatie worden uitgevoerd. Gekozen is om dit te doen op basis van de klasse-indeling voor atmosferische stabiliteit en mennghoogte zoals die in het OPS model worden onderscheiden t.w. 2 klassen voor onstabiele omstandigheden (U1 en U2), 2 klassen voor neutrale (N1 en N2) en twee klassen voor stabiele omstandigheden (S1 en S2). De klasse met index 1 heeft hierbij steeds de lagere mennghoogte. De metingen zijn vervolgens naar deze klassen ingedeeld m.b.v. de preprocessor van het OPS model. Vanwege de karakteristieke ruimtelijke verschillen in Nederland is de exercitie uitgevoerd voor de meetpunten Vredepeel en De Zilk. In Figuur 22 zijn de resultaten weergegeven.



Figuur 22. Vergelijking tussen gemodelleerde en gemeten ammoniakconcentraties in afhankelijkheid van atmosferische stabiliteit. Boven: meetpunt Vredepeel, onder meetpunt De Zilk. Links: standaardemissies; rechts: aanwendingsemissies maal factor 7.

*Opvallend is dat de hoogste concentraties onder verschillende atmosferische condities worden bereikt. Bij Vredepeel is dat gedurende de nacht bij weinig wind en onbewolkt weer. Bij het meetpunt De Zilk worden de hoogste concentraties bereikt bij overdag bij mooi weer en niet te hoge mennghoogte. Dit is in overeenstemming met wat Figuur 6 laat zien als typisch verschil voor de meetlocaties.*

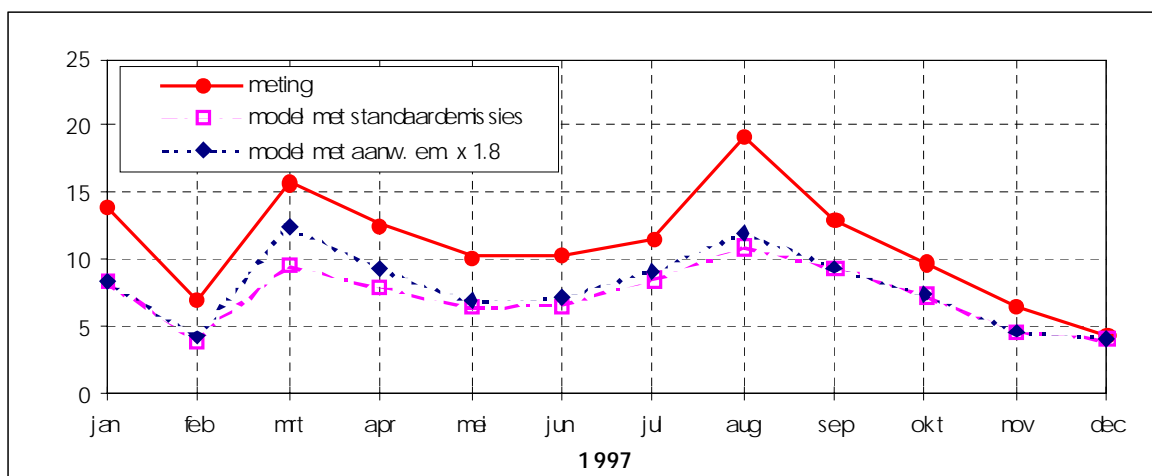
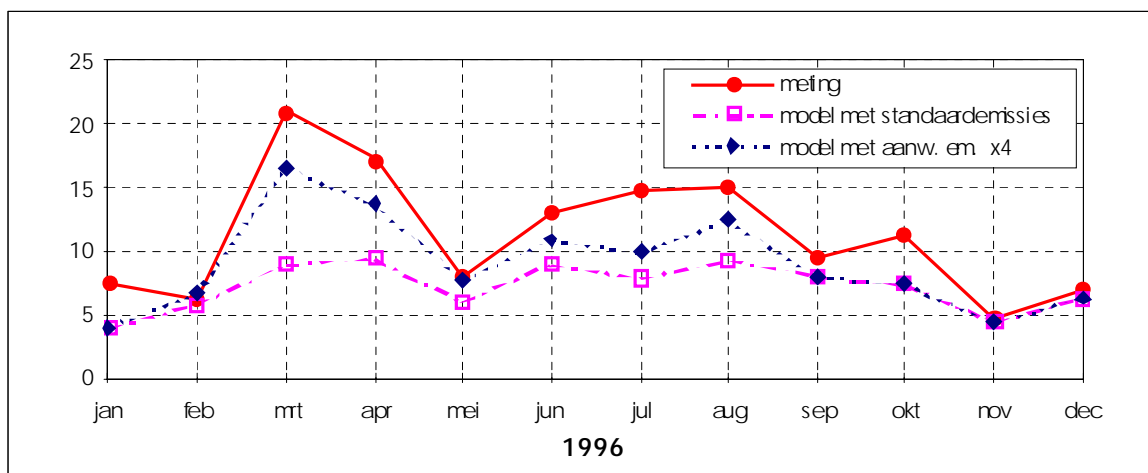
Ook bij deze vergelijking blijkt dat de beste overeenstemming wordt gevonden wanneer de aanwendingsemissies aanzienlijk worden verhoogd (factor 6 – 10). Dit is vooral het geval bij De Zilk om dat daar de relatieve bijdrage van aanwending toch al veel hoger is. Omdat het hier gaat om de invloed van atmosferische stabiliteit op de verspreiding van ammoniak kan in principe iedere brongroep met een soortgelijk emissiegedrag (m.n. meteoafhankelijke verdamping) als de mestaanwending als onderschat worden gekenmerkt. Hieronder vallen ook natuurlijke emissies. Een flink deel van de stabiliteitsafhankelijkheid van ammoniakconcentraties zou ook kunnen worden verklaard uit de aanwezigheid van zogenaamde ammoniakcanopy-compensatiepunten in vegetatie die relatief hoog zijn in warme omstandigheden en vooral van invloed zijn in droge omstandigheden (klassen U1 en U2 in Figuur 22). Er zijn niet genoeg gegevens bekend van canopy-compensatiepunten om dit effect te kwantificeren.

### **5.5.3 Optimalisatie van emissiesoorten op basis van seizoensverloop**

Van de ammoniakemissiesoorten uit de landbouwgroep kent met name de aanwending een typisch seizoensgedrag. De wettelijk toegestane uitrijperiode voor grasland begint op 1 februari. Een groot deel van de winteropslag wordt dan op het land gebracht als de omstandigheden dat toelaten. Bepalend in de voorjaarsperiode is de begaanbaarheid van het land voor tractoren met mesttanks. Dit leidt ertoe dat in het ene jaar al een flink deel in februari wordt uitgereden terwijl in een ander jaar dit pas medio maart of april mogelijk is. De ammoniakconcentratie metingen laten in het voorjaar meestal een duidelijke verhoging zien. Door nu de ammoniakconcentraties per maand te berekenen op basis van maandemissies en die te vergelijken met meetresultaten kan in principe de invloed van aanwendingsemissies worden gekwantificeerd. Probleem hierbij is dat de verdeling van mestuitrij-activiteiten over het jaar niet goed bekend is en bovendien ieder jaar weer anders. Daarom is een schatting gemaakt waarbij met name voor de maanden februari, maart en april de begaanbaarheid van het land is geschat op basis van de waterfractie in de toplaag van een bepaalde bodemsoort. Dit laatste is bepaald m.b.v. het DEPASS model (van Jaarsveld, 1996) welke op basis van gemeten hoeveelheden neerslag en andere meteorologische grootheden verdamping en verticaal watertransport berekent. De methodiek en de resulterende emissieverdelingen staan beschreven in Bijlage I.

Met de aldus verkregen emissieverdelingen zijn maandgemiddelde concentraties berekend voor een vijftal jaren vanaf 1994 en vergeleken met de metingen. Vervolgens is per jaar de aanwendingsemissie met een factor vermenigvuldigd, zodanig dat er een optimale correlatie tussen het maandverloop van metingen en berekeningen ontstond. Deze factor blijkt voor alle jaren groter dan 1 te zijn. Deze methodiek werkt het beste voor die jaren waarin het uitrijden in een betrekkelijk aaneengesloten periode plaatsvindt (1996, 1997). In Figuur 23 zijn als voorbeelden de jaren 1996 en 1997 weergegeven.

Dit soort optimalisatie geeft wellicht de meest specifieke informatie over de invloed en mogelijke onderschatting van aanwendingsemissies. Hoewel de factor van jaar tot jaar flink varieert is er wel steeds sprake van een aanzienlijke onderschatting die hoger is in de jaren



Figuur 23. Vergelijking tussen gemodelleerde en gemeten ammoniakconcentraties op maandbasis, voor en na optimalisatie van de aanwendingsemisies.

1996-1998 (1.8-4) dan in de jaren 1994-1995 (1.3-1.6). Met meer actuele uitrijactiviteitsverdelingen en onderscheid tussen bouwland en grasland is wellicht een kleinere bandbreedte te verkrijgen.

#### 5.5.4 Conclusies uit de optimalisatie van emissiesoorten

Verhoging van aanwendingsemisies geeft in alle gevallen een betere overeenstemming met metingen. In principe zou dit ook kunnen met andere broncategorieën die een soortgelijk emissiegedrag hebben echter deze zijn kleiner in omvang. De verhogingsfactoren liggen in het bereik van 2-8 met een factor 3 als mediane waarde voor de jaren 1996 en 1997. Gezien de sterke meteoafhankelijkheid van aanwendingsemisies kunnen de gevonden ophogingsfactoren niet eenduidig worden geïnterpreteerd als onderschattingsfactoren voor deze groep emissies.

De beste potentiële kwantificering kon gemaakt worden op basis van het seizoensverloop van ammoniakconcentraties omdat deze sterk gerelateerd zijn aan mestuitrijactiviteiten. De verhogingsfactor die hier uit volgt heeft het bereik van 1.3-4 met de indicatie dat de verhogingsfactor kleiner is in de jaren 1994 - 1995 en groter in de jaren 1996 - 1998.

## 6. Herziening van berekeningsmethodiek NH<sub>3</sub> emissies

### 6.1 Verbeteringen van de berekeningsmethodiek landbouwemissies

#### 6.1.1 Algemeen

In het rapport “Monitoring van nationale ammoniakemissie uit de landbouw, op weg naar een verbeterde rekenmethodiek” (Steenvoorden et al, 1999) wordt een groot aantal voorstellen gedaan voor verbetering van de berekening van de ammoniakemissies uit de landbouw. Het betreft aanbevelingen waarvan de effecten nog niet zijn gekwantificeerd en in een groot aantal gevallen extra onderzoek vergen.

Een belangrijk probleem voor een accurate kwantificering is, dat de ammoniakemissie uit mest in de stal en op het land een dynamisch proces is, dat in sterke mate afhankelijk is van onder andere de mestsamenstelling en klimatologische factoren, zoals temperatuur, windsnelheid en hoeveelheid neerslag die allen zeer variabel zijn in de tijd en per locatie. Bovendien is de omvang van de vervluchtiging afhankelijk van keuzen die de individuele boer maakt, zoals bijvoorbeeld ten aanzien van het voergebruik (samenstelling, hoeveelheid) en mest uitrijden (hoeveel, tijdstip, op welk gewas en op welke wijze). Voor een goede kwantificering van de ammoniakemissie moet eigenlijk met al deze factoren rekening worden gehouden. Op dit moment is dat niet mogelijk omdat ófwel dergelijke (detail)informatie niet beschikbaar is ófwel onderzoek nog niet is afgerond.

De volgende aanbevelingen zijn gedaan om te komen tot een grotere nauwkeurigheid van de emissieschattingen. De gevolgen voor de berekende emissie zijn deels onzeker. Het geschatte belang van het onderwerp voor de nationale emissies is aangegeven door middel van +++ (groot belang), ++ (minder belang) en + (gering belang).

- Het gedrag van boeren heeft op onderdelen een belangrijke invloed op de emissieschattingen, bijv. ten aanzien van de verdeling van mest over gewassen, de keuze van de methode van mestuitrijden, de per keer toegediende hoeveelheid mest en de netheid waarmee mest emissiearm wordt toegediend. Er zijn aanwijzingen dat vervluchtigingpercentages en penetratiegraden van de verschillende methoden van mesttoediening moeten worden bijgesteld. Belang: +++
- Omdat de bijdrage van melkvee aan de ammoniakemissie groot is, is het van belang om de nu gebruikte methode voor de berekening van emissies te verfijnen. Tot nu toe is gerekend met gewogen gemiddelde coëfficiënten voor melkkoeien en jongvee tezamen. Indien beide groepen worden gesplitst kan beter rekening worden gehouden met verschillen in rantsoen en in beweidingduur in de zomer. De berekening van de mestproductie door melkkoeien kan worden verfijnd. De verdeling van melkveemest over stal en weide kan worden verbeterd en de invloed van een toenemend vloeroppervlak per dier in stallen verdient een kritische beschouwing. Belang: ++
- Waar mogelijk de vervluchtigingpercentages (VP's) voor stallen minder generiek (nu vast percentage op jaarbasis) maken door bijv. meer rekening te houden met de invloed van het weer (VP per maand). Belang: +

- Het verfijnen van de berekeningsmethode door o.a. een verdere onderverdeling van diersoorten en een grotere regionale differentiatie ten aanzien van het voer (mineralengehalte in ruwvoer en krachtvoer, de hoeveelheid ruwvoer per dier). Belang: +
- De invloed van de grondsoort op vervluchtigingspercentages voor beweiding verdient nadere studie. Belang: +
- Aandacht is nodig voor de ammoniakemissie door gewassen, waarvoor tot nu toe geen bijdrage wordt meegenomen in de berekeningen. In de literatuur wordt een grote variatie gevonden, variërend van netto opname tot netto een kwantitatief belangrijke emissie. Belang: ++

## 6.1.2 Uitrijden van mest

Uit de analyse blijkt dat de verbetering van de uitrij-emissie van mest potentieel het grootste effect heeft op de schatting van de landbouwemissie als totaal. Bovendien wordt een groot deel van de trend in het emissieverloop verklaard door de aanscherping van regels voor onderwerken van mest.

De uitrij-emissie wordt berekend uit de volgende 4 variabelen:

1. de hoeveelheid stikstof in mest die wordt uitgereden;
2. het gehalte minerale stikstof (TAN) in de uitgereden mest;
3. het vervluchtigingspercentage (VP) van minerale stikstof (als  $\text{NH}_3$ ) per uitrij-methode;
4. de verdeling van uitgereden mest over uitrij-methoden.

Per variabele wordt de thans beschikbare kennis kort toegelicht.

### ad 1: stikstof in uitgereden mest

De hoeveelheid stikstof in uitgereden mest wordt berekend als het verschil tussen stikstof-excretie en stikstof-vervluchtiging uit stallen en mestopslag. Deze berekening kan op onderdelen nog worden verbeterd (zie Steenvoorden et. al., 1999), maar dat zal naar verwachting geen substantiële invloed hebben op de berekende hoeveelheden stikstof in uitgereden mest. Het effect op de  $\text{NH}_3$ -emissie is daarom waarschijnlijk klein.

### ad 2: gehalte minerale stikstof in uitgereden mest

Een hoger gehalte minerale stikstof (TAN) leidt tot hogere  $\text{NH}_3$ -emissies. In de berekeningen is verondersteld dat 50% van alle stikstof in uitgereden dunne mest bestaat uit TAN. Het TAN-gehalte is onder andere afhankelijk van de duur van de mestopslag. Als gevolg van de mestwetgeving (uitrijverbod) moet mest vanaf 1991 langer worden opgeslagen: 4-6 maanden in plaats van 1-2 maanden. Het TAN-gehalte in mest stabiliseert zich doorgaans in de eerste weken van opslag, maar het is mogelijk dat in de weken daarna nog extra TAN wordt gevormd. Bij mestvergisting (onder optimale condities) worden TAN-gehalten gevonden van 60%. Over TAN-gehalten in langdurig opgeslagen mest zijn echter (nog) geen kwantitatieve gegevens beschikbaar. Het effect van een hoger TAN-gehalte op de ammoniakemissies is waarschijnlijk klein.

De belangrijkste toename van de opslagduur heeft plaatsgevonden tussen 1991 en 1993. Daarom zal een mogelijke verhoging van het TAN-gehalte vooral gevolgen hebben voor het emissieniveau vanaf 1993 en vrijwel niet op de emissietrend vanaf 1993.

### ad 3: vervluchtigingspercentage per uitrij-methode

De huidige berekeningsmethode hanteert voor oppervlakkig uitrijden een vervluchtigingspercentage (VP) van 50% van de minerale stikstof in mest. Dit percentage is



afgeleid uit emissiemetingen eind tachtiger jaren (de Winkel, 1988). De VP's voor emissie-arme uitrij-methoden zijn begin jaren negentig vastgesteld op basis van een beoordeling van de toen beschikbare meetgegevens. Sindsdien zijn de resultaten beschikbaar gekomen van de DLO-veldmeetploeg, die begin jaren negentig actief was. Op dit moment worden die resultaten gezien als de best beschikbare waarden voor de VP's in de berekening van uitrij-emissies in de periode waarin het uitrijverbod van kracht was (vanaf 1991). De aanpassingen van de VP's leiden tot lagere waarden voor mestinjectie en zode-injectie op grasland en tot hogere waarden voor de sleepvoetenmachine op grasland en voor alle technieken op bouwland. De grootste toename treedt op bij oppervlakkig uitrijden, waarvoor de DLO-metingen een gemiddelde VP van 68% vonden. Het lijkt plausibel dat de emissie bij oppervlakkig uitrijden hoger is in de periode dat het uitrijverbod van kracht is. Door het uitrijverbod wordt mest namelijk uitgereden bij gemiddeld hogere temperaturen en hebben boeren minder gelegenheid om het tijdstip van uitrijden af te stemmen op verwachte neerslag. Toepassing van de nieuwe VP's zal leiden tot uitrij-emissies die hoger zijn dan de tot nu toe gerapporteerde niveaus.

De DLO-metingen (uitgevoerd onder proefveld-condities) kunnen alleen worden toegepast bij de berekening van uitrij-emissies wanneer ze representatief zijn voor de landbouwpraktijk. Voorlopig worden de DLO-gegevens hiervoor gebruikt omdat andere gegevens ontbreken. Voorlopig gaan IMAG-DLO, IKC-landbouw en RIVM er van uit dat de VP's onder praktijkomstandigheden 15% hoger zijn dan de gemeten waarden op de proefvelden. Hiermee worden emissies geschat die bijvoorbeeld ontstaan tijdens de aanvoer van mest, bij het keren op de kopakker, minder accuraat toedienen van mest etc.; emissies die bij de meetproeven doorgaans niet optreden. Nader onderzoek zal dit percentage moeten onderbouwen.

Het is onduidelijk of de tijdstippen van de DLO-metingen representatief zijn voor de tijdstippen (met bijbehorende klimatologische omstandigheden) waarop boeren hun mest uitrijden. Ook is onduidelijk of de recent geproduceerde machines (ook door individuele boeren) nog dezelfde eigenschappen hebben als de machines waarmee de DLO-metingen zijn uitgevoerd begin jaren negentig. De technologie van emissie-arm uitrijden is eigenlijk pas goed van de grond gekomen toen de metingen werden beëindigd. Het kan zijn dat de technologie is verbeterd (lagere VP's) maar het is ook mogelijk dat er gaandeweg minder strenge eisen zijn gesteld (hogere VP's). Er is dus nader onderzoek nodig naar de mate waarin de DLO-metingen representatief zijn voor praktijkomstandigheden. Een verdere verfijning van de VP's is mogelijk wanneer de invloed van klimatologische factoren (temperatuur, neerslag, wind) en van standplaatsfactoren (grondsoort, gewas) op de emissie is vastgesteld. Hiervoor is nog aanvullende analyse nodig van de verzamelde gegevens over emissiemetingen bij mestuitrijden.

#### ad 4: verdeling van mest over uitrij-methoden

De huidige berekeningsmethode maakt gebruik van gegevens uit een CBS-enquête uit 1995 naar het gebruik van uitrij-methoden voor mest. Die gegevens zijn op verschillende manieren te interpreteren en wijken deels af van het beeld dat deskundigen hebben over de verdeling van uitrij-methoden. Dat hangt mogelijk samen met onduidelijkheid over de terminologie die gehanteerd wordt bij het aanduiden van uitrij-methoden. Daarom wordt voorgesteld voorlopig te rekenen met 2 sets verdelingen. Voor een betrouwbare berekening van uitrij-emissies is het noodzakelijk dat gegevens over de verdeling van uitrij-methoden op een systematische manier verzameld gaan worden.

Volgens deskundigen is het gebruik van de effectiefste emissie-arme uitrij-methoden minder dan uit de CBS-enquête naar voren komt. Dat betekent dat de uitrij-emissies in de "deskundigen-variant" hoger zijn dan in de variant die is gebaseerd op "best available data".

### 6.1.3 Emissies door melkvee

De mate van ammoniakemissie bij melkvee wordt in belangrijke mate bepaald door de hoeveelheid ureum die via de urine wordt uitgescheiden. Daarnaast speelt in mindere mate de concentratie van ureum in de urine een rol. De hoeveelheid ureum die via de urine wordt uitgescheiden is sterk gecorreleerd met en de concentratie van N-verbindingen in de urine wordt sterk beïnvloed door het zoutgehalte (natrium en kalium). Tot nu toe is de berekening van de ammoniakemissie alleen gerelateerd aan de totale N-excretie in faeces en urine en zijn wijzigingen in de N-excretie lineair vertaald in ammoniakemissies. De belangrijkste componenten in het rantsoen van melkvee zijn gras en snijmaïs. De vervoeding van snijmaïs aan melkvee is in de periode 1990-1997 met 15-22.5% toegenomen. Deze wijziging heeft geleid tot een verminderde opname van N, Na en K. Als gevolg hiervan zou de hoeveelheid uitgescheiden ureum moeten dalen, maar concentratie van ureum in de urine in bepaalde mate moeten stijgen. Tegelijkertijd is in de periode 1990-1997 het K-gehalte van gras gestegen, waardoor de totale K-opname via het rantsoen ongeveer gelijk is gebleven. Er zijn geen meetgegevens waaruit het totale effect blijkt van de twee genoemde veranderingen op de totale ureumuitscheiding en de ureumconcentratie. De inschatting is dat de berekende emissie in 1997 maximaal enkele procenten (1-3%) te laag is geweest.

Daar staan aanwijzingen tegenover dat aannames over de verdeling van de mestproductie over stal en weide hebben geleid tot een te hoog berekende emissie. Er is gerekend met een te grote hoeveelheid in de stal uitgescheiden mest. Omdat de ammoniakemissie in de stal hoger dan in de weide heeft dit geleid tot een overschatting van de emissie. Bij de verdeling van mest over stal en weide zou rekening moeten worden gehouden met het tijdstip en de locatie van voeropname en door mest van jongvee anders te behandelen dan van melkvee. Deze veranderingen zouden leiden tot meer mest in de weide en dus tot minder ammoniakemissie.

### 6.1.4 Emissies uit stallen

In Tabel 7 wordt een overzicht gegeven van VP's en NH<sub>3</sub>-emissies van de belangrijkste gangbare staltypes, zoals deze gebruikt worden in de huidige rekenmethodiek en die uit metingen (IMAG-onderzoek) zijn af te leiden. Voor melkvee in een ligboxenstal gebruikt de methodiek hogere VP's dan uit metingen wordt afgeleid. Een correctie van die VP's zal leiden tot een verlaging van de berekende ammoniakemissie. De omvang van de vervluchtiging is in de huidige methodiek direct gekoppeld aan de N-excretie, waarbij bij rundvee gerekend wordt met een bezettingsgraad van de stal van 100%. Als de bezettingsgraad daalt, neemt het (besmeurde) vloeroppervlak per dier echter toe en daarmee ook de emissie. De VP van een ligboxenstal voor melkvee is berekend bij een emitterend oppervlak van 3,75 m<sup>2</sup> per koe. De bezettingsgraad in veel stallen is inmiddels 4,0 tot 4,25 m<sup>2</sup> per koe, waardoor de emissie per koe stijgt.

Bij de overige diersoorten vallen de VP's uit de rekenmethodiek binnen de marge die uit metingen wordt afgeleid. Een correctie van de VP's van melkvee-stallen zal leiden tot een verlaging van de berekende NH<sub>3</sub>-emissie. De trend wordt hierdoor vrijwel niet beïnvloed.

Een soortgelijke vergelijking kan worden gemaakt voor emissie-arme stallen. Dat is voor de verklaring van het NH<sub>3</sub>-gat echter nauwelijks relevant omdat het aantal emissie-arme stallen tot nu toe zeer beperkt is<sup>1</sup>. In de afgelopen jaren is door het uitrijverbod de opslagduur van de mest verlengd. Het is niet onwaarschijnlijk dat hierdoor een deel van de organisch gebonden N is

<sup>1</sup> Uit een inventarisatie t.b.v MB-98 bleek dat in de provincies Noord Brabant en Limburg maximaal 5% van alle varkens en kippen is gehuisvest in emissie-arme stallen. In de overige provincies en bij rundvee is dat aandeel vermoedelijk kleiner dan 1%.

omgezet in ammonium, dat gemakkelijk vervluchtigt. Er zijn echter geen meetgegevens beschikbaar over wijzigingen in de mestamenstelling.

*Tabel 7: Overzicht van vervluchtigingpercentages (VP) en NH<sub>3</sub>-emissie uit gangbare stallen, toegepast in de huidige rekenmethodiek en verkregen uit metingen.*

Diercategorie/ Staltype	VP		NH <sub>3</sub> -emissie	
	Rekenmeth. (% van N- excretie)	Metingen	Rekenmeth. (kg NH <sub>3</sub> per dierplaats)	Metingen
<b>Melkvee:</b>				
– ligboxenstal	14,6	10,4 <sup>a)</sup>	10,9	5,1 – 9,1
– grupstal	7,1	-	5,3	2,0 en 4,5
<b>Vleesvarkens:</b>				
– traditioneel (50% rooster)	16,1	15,8 – 18,3	2,5	2,2 – 3,4
<b>Leghennen:</b>				
– traditioneel	8,7	-	0,074	0,083
– voliëre	18,7	8,3 – 20,6	0,159	0,050 – 0,130
– emissie-arm	3,7	3,3 – 5,1	0,031	0,007 – 0,034
<b>Vleeskuikens:</b>				
– traditioneel	10,6	9,9 – 11,2	0,076	> 0,050

<sup>a)</sup> Afgeleid van een berekende VP van 9,4% voor 190 staldagen, gebaseerd op gemeten emissies en een N-excretie berekend op basis van N-opname minus N-melk (Smits et al., 1996). De VP van 10,4 heeft betrekking op het hele jaar, inclusief de stalemissie die in de weideperiode optreedt.

Bron: Steenvoorden et al., 1999.

## 6.2 Emissies van niet-landbouwbronnen

Ook de niet-landbouwemissies zijn tegen het licht gehouden. Voor de meeste bronnen leidt dat niet tot substantiële wijzigingen, met uitzondering van verkeer en vervoer. Hoewel de grootschalige compostering van GFT de laatste jaren flink is toegenomen, zijn de NH<sub>3</sub>-emissies beperkt gebleven omdat vrijwel overal luchtwassers worden toegepast.

In de Milieubalans is tot nu toe geen emissie aan verkeer en vervoer toegekend. De emissies voor personenauto's en bestelauto's zonder katalysator zijn laag en zijn te verwaarlozen op de totale emissie in Nederland. Echter de emissies van personenauto's en bestelauto's met katalysator zijn bijna een factor 100 hoger. Door de introductie van de katalysator is de verkeersemisatie gestegen tot circa 5 mln kg in 1997. Over de periode 1993-1997 is de toename circa 2 mln kg, ruim 1% van de totale ammoniakemissie.

In de buitenlandse emissiebestanden ontbreekt in een aantal gevallen de bijdrage van (enkele) niet landbouwbronnen. Ook de landbouwemissies van het buitenland kunnen hier en daar worden bijgesteld op basis van de meest recente emissiefactoren en veestapelcijfers. De invloed van de buitenlandse emissies op de gemeten ammoniakconcentratie is echter klein, zodat mogelijke verkeerd ingeschatte trendveranderingen in het buitenland slechts een zeer beperkte verklaring kunnen geven voor het ammoniakgat.

## 7. Conclusies en aanbevelingen

Onderstaande conclusies en aanbevelingen zijn gerangschikt naar de gekozen hoofdingeling van dit rapport.

### *Ammoniakconcentraties algemeen*

Ammoniakconcentraties in de buitenlucht zijn vrij direct gerelateerd aan ammoniak emissies en vormen daarmee de meest directe indicatoren voor ruimtelijke emissieverschillen en trends in emissies.

Wanneer gemeten ammoniakconcentraties in de buitenlucht als indicator worden genomen voor veranderingen in ammoniakemissies in Nederland dan moet voor de (veranderende) invloed van meteorologische omstandigheden en verliesprocessen (omzetting, droge en natte depositie) worden gecompenseerd.

Het belangrijkste verliesproces voor ammoniak in de atmosfeer is droge depositie. Informatie uit metingen zijn zeer beperkt. Systematische metingen hiervan worden in Nederland alleen voor één boslocatie (Speuld) uitgevoerd.

Omzetting van ammoniak in ammoniumaërosol is afhankelijk van niveaus van SO<sub>2</sub> en NO<sub>2</sub> concentraties in de buitenlucht.

### *Metingen in buitenlucht*

Ammoniakconcentraties zijn zeer sterk ruimtegebonden en kennen typische dagelijkse- en seizoensvariabiliteit. Jaar-tot-jaar variabiliteit blijken in de periode 1993 t/m/ 1997 gering te zijn. Jaargemiddelde concentraties zijn in 1997 ongeveer 6% hoger dan in 1993.

Ruimtelijke gradiënten van het ammoniumaërosol in Nederland zijn veel kleiner dan die van ammoniak en zijn kleiner geworden sinds de jaren tachtig.

Ammoniumaërosolconcentraties laten een systematische daling zien. Deze daling is vooral toe te schrijven aan de daling van SO<sub>2</sub> concentraties in binnen en buitenland. De som van secundair aërosolconcentraties (ammoniumsulfaat en -nitraat) is daardoor dalende (30% sinds 1990).

Gradiënten van de natte depositie van ammonium zijn groot en gerelateerd aan ammoniakemissies hetgeen aangeeft dat de directe opname van ammoniak in regendruppels domineert over de opname van ammoniumaërosol.

*Modellering van ammoniakverspreiding en –depositie*

Het is belangrijk onderscheid te maken tussen stalemissies en aanwendings/weide emissies vanwege hun verschil in afhankelijkheid van meteorologische parameters. Aanwendings/weide emissies zijn namelijk veel sterker beïnvloed door meteorologische condities dan de stalemissies.

Het OPS model is naar aanleiding van deze studie op een aantal punten verder ontwikkeld. De belangrijkste verbeteringen betreffen ruimtelijke detaillering, achtergrondconcentratie-afhankelijke ammoniakomzetting en meteoafhankelijke emissievariatie.

De ruimtelijke overeenkomst tussen modelberekeningen en metingen is in het algemeen goed. Meer dan 80% van de ruimtelijke variatie in jaargemiddelde ammoniakconcentraties wordt verklaard en meer dan 75% van natte depositie. Op basis van 5-jaarsgemiddelden wordt dit resp. 90 en 87%.

*Emissieberekeningsmethodiek*

Ammoniakemissies uit mest in de stal en op het land is een dynamisch proces dat in sterke mate afhankelijk is van onder andere mestsamenstelling en meteorologische factoren die zeer variabel zijn in de tijd en per locatie.

Ammoniakemissies zijn mede afhankelijk van keuzen die individuele boeren maken ten aanzien van voergebruik (samenstelling, hoeveelheid) en mest uitrijden (hoeveel, tijdstip, op welk gewas en op welke wijze). Op dit moment is het nog niet mogelijk met al deze factoren voldoende rekening te houden.

Herziening van ammoniakvervluchtigingspercentages op basis van recente meetgegevens leiden tot lagere waarden voor mestinjectie en zode-injectie op grasland en tot hogere waarden voor de sleepvoetenmachine op grasland en voor alle technieken op bouwland. Toepassing van de nieuwe percentages zal leiden tot aanwendingsemissies die hoger zijn dan tot nu toe gerapporteerd.

Heroverweging van de emissies van niet-landbouwbronnen leidt niet tot substantiële wijzigingen. Alleen de verkeersemmissies zijn gestegen tot naar schatting 5 mln kg in 1997 door de introductie van de katalysator. In de periode 1993-1997 is de toename ca. 2 mln kg, ruim 1 % van de totale ammoniakemissie.

*Resultaten uit combinatie metingen en modelberekeningen*

Het eerder geconstateerde gat tussen metingen en op emissieschattingen gebaseerde modelberekeningen wordt in dit onderzoek bevestigd. Voor het jaar 1997 zijn de berekende ammoniakconcentraties 35% lager dan de metingen. In de tachtiger jaren was deze onderschatting minder dan 15%.

Voor de meetlocatie Wieringerwerf worden systematisch veel lagere waarden gemodelleerd dan gemeten. Dit geldt voor zowel luchtconcentraties als natte depositie. Mogelijk zijn de emissies in dit gebied systematisch (veel) hoger dan berekend. Nader onderzoek b.v. met behulp van passieve meetmethoden zou moeten uitwijzen wat de schaal van dit probleem is.

Een mogelijke verklaring voor de absolute onderschatting van de ammoniakconcentraties in Nederland kan gevonden worden in overschatting van droge depositiesnelheden, met name die voor gras en bouwland.

Wanneer ammoniakconcentraties in de buitenlucht als indicator worden genomen voor veranderingen in ammoniakemissies in Nederland dan blijken meteorologische invloeden in de periode 1993-1997 ongeveer 7 % emissiedaling te maskeren.

De veranderende chemische samenstelling (m.n.  $\text{SO}_2$ ) van de atmosfeer doet de ammoniakfractie die wordt omgezet in ammoniumaërosol verlagen en leidt dus tot relatief hogere ammoniakconcentraties. Dit verschijnsel maskeert voor de periode 1993-1997 ongeveer 5% van de te verwachten daling in ammoniakconcentraties.

Emissies uit stallen werken relatief sterker door in ammoniakconcentraties dan emissies uit aanwending (factor 1.35 versus 0.58). Omdat de verwachte emissiereductie van 23 % tussen 1993 en 1997 bijna uitsluitend betrekking heeft op aanwendingsemissies is slechts een concentratiedaling van 13 % te verwachten.

Uit de combinatie metingen en modelberekeningen volgt voor het jaar 1997 een ammoniak (aanwendings) emissiedaling van 20-30 kton t.o.v. 1993. Dit is ruwweg de helft van wat de officiële emissiedaling was in dezelfde periode.

Het gemodelleerde dagverloop, het gemodelleerde maandverloop en de gemodelleerde ruimtelijk verdeling van ammoniakconcentraties kunnen aanmerkelijk beter met gemeten concentraties in overeenstemming worden gebracht wanneer aanwendingsemissies aanzienlijk worden verhoogd; factor 2-8 met factor 3 als beste schatting. Veranderingen in stalemissies brengen geen verbetering teweeg.

De beste potentiële kwantificering van de verhogingsfactor van aanwendingsemisies wordt verkregen op basis van het seizoensverloop van ammoniakconcentraties omdat deze sterk gerelateerd zijn aan mestuitrijactiviteiten. De verhogingsfactor die hier uit volgt heeft het bereik van 1.3-4 met de indicatie dat de verhogingsfactor kleiner is in de jaren 1994 - 1995 en groter in de jaren 1996 – 1998.

Het effect van lagere ammoniakemissies zou gedeeltelijk gecompenseerd kunnen zijn door lagere droge depositiesnelheden t.g.v. zogenaamde canopy compensatiepunten. Gezien de constante niveaus van ammoniak welke door de jaren zijn gemeten kan dit fenomeen nog nauwelijks een rol spelen bij het verklaren van toenemende discrepantie tussen metingen en modelberekeningen.

Het canopycompensatie-effect kan wel leiden tot ruimtelijke verschillen in netto droge depositiefluxen. Emissie-arme gebieden zouden daardoor een relatief lagere belasting krijgen. Er zijn nog onvoldoende gegevens beschikbaar om dit fenomeen voor alle relevante ecosystemen te parametriseren. Verder onderzoek van het depositieproces via metingen is hier nodig.

De beschikbare informatie over absolute niveaus en trends in droge depositie is zeer beperkt. Ook over de mate waarin wederzijdse beïnvloeding van SO<sub>2</sub> en NH<sub>3</sub> depositie plaatsvindt (zogenaamde co-depositie) is weinig bekend. Als eerste stap kan de gemeten depositiedata van de boslokatie Speuld nader worden geanalyseerd. Voor de massabalans in Nederland is echter de beschikbaarheid van soortgelijke informatie voor gras- en bouwland van essentieel belang.



## Literatuur

- Acharya, R.C. (1994) From emission to Concentration: Analysis of Ammonia Predictions by the OPS model. M.Sc Thesis H.H. 203, International Institute of Hydraulic and Environmental Engineering, Delft.
- Adema, E.H., Heeres, P. en Hulskotte, J. (1986) On the dry deposition of NH<sub>3</sub>, SO<sub>2</sub> and NO<sub>2</sub> on wet surfaces in a small scale windtunnel. Proceedings of the Seventh World Clean Air Congress, Sydney, Australië, p. 1-8.
- Asman, W.A.H. and Jaarsveld, J.A. van (1992) A variable-resolution transport model applied for NH<sub>x</sub> for Europe. *Atmospheric Environment* **26A**:445-464.
- Asman, W.A.H. (1992) Ammonia emission in Europe: updated emission and emission variations. Report No. 228471008, RIVM, Bilthoven, The Netherlands.
- Bleeker, A., van Jaarsveld, J.A. en Duyzer, J. (1998) Karakterisering van regionale concentratie-velden van ammoniak, 2e fase; Vergelijking gemeten concentraties en model-berekeningen. Rapport nr. 722108020, RIVM, Bilthoven, The Netherlands
- Boermans, G.M.F. and Erisman, J.W. (1991) Meetstrategieontwikkeling voor het representativiteits-onderzoek als onderdeel van het additioneel meetprogramma ammoniak; fenomenologie van NH<sub>3</sub> en meetritsimulaties. Report No. 222105001, RIVM, Bilthoven, The Netherlands.
- Boermans, G.M.F. and Pul, W.A.J. van (1993) SLAM, een transportmodel voor de korte termijn en de korte afstand met als toepassing de beschrijving van de verspreiding van ammoniak. Report No. 72215001, RIVM, Bilthoven, The Netherlands.
- Bogaard, A. J. en Hofschreuder, P. (1996) De invloed van detaillering van ammoniakemissiebestanden in ruimte en tijd op de met het OPS model berekende lokale concentratievelden. Rapport nr. R 795, Landbouwwuniversiteit Wageningen.
- Bogaard, A. en Duyzer J. (1998) Een vergelijking tussen resultaten van metingen en berekeningen van de concentratie van ammoniak in de buitenlucht op een schaal kleiner dan 5 kilometer. TNO-MEP rapport R 97/423.
- Boxman, A.W. (1998) Effecten van veranderde stikstofdepositie op naaldbossen. Vergelijking van Europese NITREX locaties. Tussenrapport 1998, Universiteit van Nijmegen.
- Buijsman, E., Aben, J.M.M., van Elzakker, B.G. en Mennen ,M. (1998) An automatic atmospheric ammonia network in the Netherlands; Set-up and results. *Atmospheric Environment* **32**:317-324.
- Duyzer, J., Weststrate, H., Erisman, J.W., Bleeker, A. en Van Jaarsveld, J.A. (1998) Karakterisering van concentratievelden van ammoniak 2e fase: OVERZICHT. TNO-rapport TNO-MEP-R 98/004, Apeldoorn.
- EMEP (1998) Transboundary acidifying air pollution in Europe.MSC-W Status Report 1/98, Part 1; Calculation of acidifying and eutrophying compounds and comparison with observations. Norwegian Meteorological Institute, Oslo, Noorwegen.
- Erisman, J.W., Vermetten, A.W.M., Asman, W.A.H., Mulder, W., Slanina, J. en Waijers-Ijpelaan, A. (1986) Concentrations of ammonia and ammonium over the Netherlands. Instituut voor Meteorologie en Oceanografie, Universiteit van Utrecht. Rapport R-86-3.
- Erisman, J.W. (1992) Atmospheric deposition of acidifying compounds in the Netherlands. Proefschrift Universiteit Utrecht.
- Erisman, J.W. and Wyers, G.P. (1993) Continuous measurements of surface exchange of SO<sub>2</sub> and NH<sub>3</sub>; implications for their possible interaction in the deposition process. *Atmospheric Environment*, **27A**:1937-1949.
- Erisman, J.W., Pul, A. van and Wyers, P. (1994) Parameterization of dry deposition mechanisms for the quantification of atmospheric input to ecosystems. *Atmospheric Environment* **28**:2595-2607.
- Erisman, J.W., Bleeker, A. en van Jaarsveld, J.A. (1998) Evaluatie van de effectiviteit van het ammoniakbeleid met metingen en modelberekeningen. In: Milieu 1998/2.
- Erisman, J.W. en Monteny, G.J. (1998) Consequences of new scientific findings for future abatement of ammonia emissions. *Environmental Pollution* **102**:275-283
- Farquhar, G.D., Firth, P.M., Wetselaar, R. and Weir, B. (1980) On the gaseous exchange of ammonia between leaves and the environment: determination of the ammonia compensation point. *Plant Physiol.* **66**, 710-714

- Flechar, C.R., Storeton-West, R.L., Colls, J.J. and Fowler, D. (1999) Dry deposition of SO<sub>2</sub> over moorland and interactions with NH<sub>3</sub> on leaf surfaces. *Atmospheric Environment*. In press.
- Groot Koerkamp, P.W.G. en Elzing A. (1996) Degradation of nitrogenous components in and volatilization of ammonia from litter in avary housing systems for laying hens. *Transactions of the ASAE*, Vol. 39.
- Heuberger, P.S.C. en Aben, J.M.M. (1995) Betrouwbaarheidsanalyse van de berekeningen voor 1992 van de NH<sub>x</sub> concentraties en droge deposities met het OPS model. Rapport nr. 714701013, RIVM, Bilthoven.
- Evaluatie van de berekeningen van de atmosferische ammoniak-concentraties in Nederland: aanpassing van modelparameters en emissies op basis van meetgegevens. Rapport nr. 723301002, RIVM, Bilthoven.
- Heuberger, P.S.C., Aben, J.M.M. en Dekkers, A.L.M. (1995) Evaluatie van de berekeningen van de atmosferische ammoniak-concentraties in Nederland: aanpassing van modelparameters en emissies op basis van meetgegevens. Rapport nr. 723301002, RIVM, Bilthoven.
- Hoek, K.W. van der (1994) Berekeningsmethodiek ammoniakemissies in Nederland voor de jaren 1990, 1991 en 1992. Report No. 773004003, RIVM, Bilthoven, The Netherlands.
- Hove, L.W.A. van, Adema, E.H., Vredenburg, W.J. and Pieters, G.A. (1989) A study of the absorption of NH<sub>3</sub> and SO<sub>2</sub> on leaf surfaces. *Atmospheric Environment* **23**: 1479-1486.
- Jaarsveld, J.A. van (1990) An operational atmospheric transport model for priority substances; specification and instruction for use. Rapport no. 222501002, RIVM, Bilthoven, The Netherlands.
- Jaarsveld, J.A. van (1995), Modelling the long-term atmospheric behaviour of pollutants on various spatial scales. Proefschrift Universiteit Utrecht.
- Jaarsveld, J.A. van (1996) The dynamic exchange of pollutants at the air-soil interface and its impact on long range transport In: *Air Pollution Modeling and its application XI*, edited by Sven-Erik Gryning and Francis Schiermayer.
- Kroodsmma, W., Huis in 't Veld, J.W.H. en Scholtens, R. (1993) Ammonia emission and its reduction from cubicle houses by flushing. *Livestock Production Sci.* **35**:293-302.
- Leeuw, F.A.A.M. de, Rheineck Leyssius, H.J. van en Bultjes, P.J.H. (1990) Calculation of long term averaged ground level ozone concentrations. *Atmospheric Environment* **24A**:185-193.
- LNV en VROM (1990) Plan van aanpak beperking ammoniak-emissies van de landbouw,. regeringsbeslissing. Tweede Kamer, vergaderjaar 1990-1991, 18225, nrs. 42-43, Den Haag: SDU uitgeverij. pp.94.
- Molen, J. van der, Van Faassen, H.G., Leclerc, M.Y., Vriesema, R., and Chardon, W.J., 1990a, Ammonia volatilization from arable land after application of cattle slurry. 1. Field estimates, *Neth. J. Agric. Sci.* **38**:145-158.
- Molen, J. van der, Beljaars, A.C.M., Chardon, W.J., Jury, W.A., and Van Faassen, H.G., 1990b, Ammonia volatilization from arable land after application of cattle slurry. 2. Derivation of a transfer model, *Neth. J. Agric. Sci.* **38**:239-254.
- RIVM/LML (1997) Luchtkwaliteit: Jaarrapport 1996. RIVM rapport 222101029, Bilthoven.
- Schjørring, J.K. (1991) Ammonia emission from the foliage of growing plants. In: Sharkey T.D., Holland E.A., and Mooney H.A. (Eds.), Trace gas emissions by plants, p267-292. Academic Press, San Diego.
- Schjørring, J.K. (1997) Plant-atmosphere ammonia exchange; Quantification, physiological regulation and interactions with environmental factors. Dsc thesis. KVL, Royal Veterinary and Agricultural University, Copenhagen.
- Seinfeld, J.H. (1986) *Atmospheric chemistry and Physics of Air Pollution*. John Wiley and Sons, New York. 738pp.
- Steenvoorden, J.H.A.M., Bruins, W.J., van Eerdt, M.M., Hoogeveen, M.W., Hoogervorst, N., Huijsmans, J.F.M., Leneman, H., van der Meer, H.G., Monteny, G.J., en de Ruyter, F.J. (1999) Monitoring van nationale ammoniakemissies uit de landbouw, op weg naar een verbeterde rekenmethodiek. DLO, Wageningen, Reeks Milieuplanbureau no. 6.
- Sutton, M.A., Pitcairn, C.E.R., Fowler, D. (1993) The exchange of ammonia between the atmosphere and plant communities. *Advances in Ecological Research* **24**: 301-393

- Sutton, M.A., Fowler, D., Burkhardt, J.K. en Milford, C. (1995) Vegetation atmosphere exchange of ammonia: canopy cycling and the impacts of elevated nitrogen inputs. *Water Air and Soil Poll.* **85**:2057-2063.
- Plantaz, M.A.H.G., Slanina, J., en Wyers, G.P. (1996) Surface/atmosphere exchange of ammonia over grazed pasture. Rapport no. ECN-C-96-085. ECN, Petten.
- Plantaz, M.A.H.G. (1998) Surface/atmosphere exchange of ammonia over grazed pasture. Proefschrift Landbouwniversiteit Wageningen.
- RIVM (1997) Milieubalans 1997. Samson-Tjeenk Willink, Alphen a/d/ Rijn.
- VROM en LNV (1994) Interimwet Ammoniak en Veehouderij. Handreiking ammoniak-reductieplannen. Wettekst Uitvoeringsregeling. 94655/h/12-94, 2096/045. Den Haag: Ministeries van VROM en LNV.
- VROM (1989) Bestrijdingsplan Verzuring, Tweede Kamer, vergaderjaar 1988-1989, 18225, nr.31, Den Haag: SDU uitgeverij.
- Winkel K. de. (1998) Ammoniakemissiefactoren voor de veehouderij. VROM Publikatiereeks Lucht 76, Den Haag.
- Wyers, G.P., Otjes, R.P. and Slanina J. (1993) A continuous-flow denuder for the measurement of ambient concentrations and surface exchange fluxes of ammonia. *Atmospheric Environment* **27A**:2085-2090.

## Bijlage 1      Schatting van mestaanwendingsactiviteit

### Verdeling van aanwendingsemisies over het jaar.

Uitgangspunt van de schatting van de verdeling van aanwendingsemisies over het jaar is dat het uitrijden van mest is gebonden aan regels en dat anderzijds het daadwerkelijk uitrijden van mest afhangt van meteorologische factoren die van jaar tot jaar verschillen. Bij de verdeling over het jaar is onderscheid gemaakt in drie perioden:

1. Periode waarin niet wordt uitgereden (september t/m januari)
2. Periode waarin de begaanbaarheid van land voor tractoren met mesttanks bepaald wordt door de natheid van de bodem (februari t/m mei)
3. Periode met een vaste verdeling (juni t/m augustus).

De primaire verdeling van uitgereden mest over de maanden is gebaseerd op het rapport van Bogaard en Duyzer (1998). Deze auteurs baseren zich op Van der Hoek (1996). Bogaard en Duyzer berekenen een verdeling voor het jaar 1996 welke gegeven is in Tabel B1. In de hier gebruikte methode is de verdeling voor de maanden juni t/m augustus overgenomen. De verdeling over de maanden februari t/m mei is gebaseerd op de veronderstelling dat de uitrijperiode op 1 februari begint en dat per dag dat het land begaanbaar is (en niet bevroren) 2% van het jaartotaal wordt uitgereden.

**Tabel B1.** Aanwendingsemisieverdeling in 1996 volgens Bogaard en Duyzer (1998)

<i>maand</i>	<i>% van jaartotaal</i>
jan	0
feb	0
mrt	50
apr	24.7
mei	5.55
jun	5.55
jul	5.55
aug	8.64
sep	0
okt	0
nov	0
dec	0

De begaanbaarheid van het land is berekend met het DEPASS model (Van Jaarsveld, 1996) welke per uur de waterhuishouding van een bepaald type bodem simuleerd op basis van (gemeten) neerslag, verdamping en verticaal transport van water in de bovenlaag van de bodem. Als enigszins arbitraire maat voor de begaanbaarheid is gekozen een vochtgehalte van minder dan 33% op volumebasis op een diepte van 5 cm. Daarnaast is er van uit gegaan dat er geen mest wordt uitgereden wanneer de gemiddelde dagtemperatuur lager is dan 0 °C. Het aantal dagen  $X$  dat op die wijze wordt berekend is gegeven in Tabel B2. Er wordt hierbij geen onderscheid gemaakt in grasland of bouwland en er worden ook geen regionale verschillen in neerslag meegenomen.

Per 1 februari is volgens de gebruikte methodiek de mestproductie van de maanden juni t/m januari in voorraad. De fractie van de totale hoeveelheid mest die per maand wordt uitgereden is dan  $X \times 2\%$  met als maximum de hoeveelheid die in voorraad was plus de geproduceerde hoeveelheid in die maand (zie Tabel 2). Wanneer het land in februari niet begaanbaar is dan wordt op deze manier de voorraad in maart en/of april groter. Vanwege de grotere waterverdamping in mei is er in deze maand normaal gesproken voldoende gelegenheid om de restvoorraad op het land te brengen. Effecten van langdurige opslag van mest worden niet meegenomen in deze methodiek.

De gegevens in Tabel B1 en B2 zijn exclusief de temperatuurinvloed op de verdamping. Zoals uit Tabel 2 blijkt worden er grote verschillen tussen maanden in de voorjaarsperiode berekend. De piek ligt in 1996 en 1997 vooral in maart, in 1998 echter in februari. Het moge duidelijk zijn dat de op deze wijze verkregen relatieve maandverdelingen als indicatief beschouwd moeten worden

**Tabel B2.** Berekende verdelingen van aanwendingsemissies op basis van begaanbaarheid van land en mestproductie per maand.

maand	veronderstelde mestproductie in stallen in % van jaartotaal	aanwendings-emissie-verdeling in deze studie in % van jaartotaal	1996		1997		1998	
			aantal uitrij-dagen	emissie in % van jaartotaal	aantal uitrij-dagen	emissie in % van jaartotaal	aantal uitrij-dagen	emissie in % van jaartotaal
jan	11	0		0		0		0
feb	11	variabel	4	8	5	10	20	40
mrt	11	variabel	27	54	24	48	8	16
apr	9	variabel	30	14	31	18	2	4
mei	6	variabel		6		6		22
jun	6	5		5		5		5
jul	6	5		5		5		5
aug	6	8		8		8		8
sep	6	0		0		0		0
okt	7	0		0		0		0
nov	10	0		0		0		0
dec	11	0		0		0		0

## Literatuur

- Bogaard A. en Duyzer J. (1998) Een vergelijking tussen resultaten van metingen en berekeningen van de concentratie van ammoniak in de buitenlucht op een schaal kleiner dan 5 kilometer. TNO-MEP rapport R 97/423.
- Hoek K.W. van der (1994) Berekeningsmethodiek ammoniakemissie in Nederland voor de jaren 1990, 1991, 1992. RIVM rapport nr. 773004003.
- Jaarsveld J.A. van (1996) The dynamic exchange of pollutants at the air-soil interface and its impact on long range transport In: *Air Pollution Modeling and its application XI*, edited by Sven-Erik Gryning and Francis Schiermayer.

## Bijlage 2      Verzendlijst

1. H. Baayen, DGM
2. M. Alessi, DGM
3. J. Sliggers, DGM
4. S. Smeulders, DGM
5. G. de Vries, DGM
6. M. de Bode, LNV
7. H. Kuypers, LNV
8. P. Boei, Prov. Gelderland
9. W. de Boer, Prov. Friesland
10. J. Steenvoorden, Alterra
11. J. Duyzer, TNO
12. W. Bruins, IKC Landbouw
13. L. van der Eerden, Alterra
14. M. van Eerd, CBS
15. J.W. Erisman, ECN
16. K. Folkertsma, Prov. Drenthe
17. P. Hofschreuder, WUR
18. H. Leneman, LEI-DLO
19. L. van Staalduinen, LEI-DLO
20. S. Mesu, IKC, Landbouw
21. H. Spiertz, WUR
22. C. Venderbos, Prov. Noord-Brabant
23. W. de Vries, Alterra
24. G.J. Monteny, IMAG-DLO
25. K. van Egmond,
26. A. Lijdsman
27. K. van de Hoek
28. O. Knol
29. D. van Lith
30. H. Dieren
31. R. Albers
32. J. Beck
33. A. van Pul
- 34-36 Auteurs
- 37 Bureau Rapportenregistratie
- 38 Bibliotheek RIVM
- 39 Depot Nederlandse Publikaties en Nederlandse Bibliografie
- 40-60 Bureau Rapportenbeheer
- 61-85 Reserve exemplaren