

RIVM rapport 725601001

**Ammoniak emissie-concentratie-depositie  
relaties op lokale schaal**

J.A. van Jaarsveld , A. Bleeker, J.W. Erisman<sup>1</sup>,  
G.J. Monteny<sup>2</sup>, J.Duyzer<sup>3</sup> en D. Oudendag<sup>4</sup>

Juli 2000

<sup>1</sup> ECN, Postbus 1, 1755 ZG Petten

<sup>2</sup> IMAG- Postbus 43, 6700AA Wageningen

<sup>3</sup> TNO-MEP, Postbus 342, 7300AH Apeldoorn

<sup>4</sup> LEI, Postbus 29703, 2502 LS Den Haag

Dit onderzoek werd verricht in opdracht en ten laste van Directoraat-Generaal Milieubeheer, Directie Lucht en Energie, in het kader van project M/725601/01/ST, Stikstof Onderzoek Programma.

## Abstract

The Dutch Nitrogen Research Programme (STOP) aims to provide a scientific basis to develop and implement policy on a local scale. Part II of this programme focuses on the improvement of emission-deposition modelling of nitrogen compounds ( $\text{NH}_x$ ,  $\text{NO}_x$ ). For this purpose two major field experiments were carried out, in which the emission and the dispersion of ammonia were measured during and after the spreading of manure. In addition, the emissions of three animal housing systems were measured for a number of months, along with ammonia concentrations in air at 17 locations in an area of 2x2 km.

This report describes the linkage between the measured emissions and atmospheric concentrations of  $\text{NH}_3$  through existing, newly developed and/or modified dispersion models. The OPS-LT model was applied to both the long-term modelling and the modelling of long-range transport. A short-term version (OPS-KT) was developed on the basis of the OPS-LT model with the aim of simulating the (short-term) experiments and linking the results with the long-term model. The OPS-KT model was successfully compared with the classic 'Prairie Grass' data.

Comparison of the OPS-LT model with the long-term measurements (17 locations for 9 months) showed that the model could explain 50% of the ammonia's spatial distribution. Average concentrations were underestimated by approximately 15%. When the OPS-KT model was applied, the model was shown to describe the time series of ammonia reasonably well; however, the modelled concentrations were higher by approximately a factor of 2.

It is therefore not possible on the basis of only a few experiments to determine if systematic deviations in the short-range modelling, terrain effects such as a forest edge or (measured) emissions that are too high can be indicated in this way. Deviations from this magnitude, however, can be stated to be within the range of errors found for modern short-term models when compared to well-defined field data. On the basis of good-quality simulation of mean spatial differences in the experimental area, spatial planning policies on the local scale can be concluded to be supported reasonably well using the current modelling instruments.

# Inhoud

<b>Samenvatting</b>	<b>5</b>
<b>1. Inleiding</b>	<b>7</b>
1.1 Achtergrond.....	7
1.2 Werkwijze.....	7
<b>2. Verspreiding en depositie</b>	<b>9</b>
2.1 Verspreiding op lokale schaal.....	10
2.2 Verspreiding van NH <sub>3</sub> gesimuleerd met een <i>K</i> model.....	10
2.3 OPS korte-termijn model.....	17
2.3.1 OPS model versus <i>K</i> - model .....	21
2.3.2 OPS model versus ‘Prairie grass data’ .....	23
2.4 Meteo-afhankelijkheid van aanwendingsemissies .....	24
2.5 Algemene modelresultaten.....	25
<b>3. De verspreidingsproeven</b>	<b>27</b>
3.1 Beschrijving proefgebied.....	27
3.2 Emissies .....	27
3.3 Metingen .....	28
3.3.1 Emissies .....	28
3.3.2 Langetermijn metingen NH <sub>3</sub> m.b.v. passieve samplers.....	29
3.3.3 Doorval depositiemetingen.....	30
3.3.4 Dispersieproeven korte termijn met behulp van een SF <sub>6</sub> -tracer.....	30
3.3.5 Metingen tijdens campagnes.....	31
<b>4. Vergelijking model- en meetresultaten</b>	<b>33</b>
4.1 Lange termijn verspreiding op lokale schaal.....	33
4.1.1 Metingen .....	33
4.1.2 Emissies .....	33
4.1.3 Resultaten van het OPS lange-termijn model .....	34
4.1.4 Resultaten van het OPS korte-termijn model.....	35
4.1.5 Vergelijking met doorvalmetingen.....	37
4.2 Korte termijn verspreiding met SF <sub>6</sub> tracer .....	38
4.3 Modellerings NH <sub>3</sub> verspreiding na mestaanwending.....	41
4.3.1 Emissies .....	41
4.3.2 Concentratiemetingen.....	42
4.3.3 Vergelijkingsresultaten experiment 1 .....	42
4.3.4 Vergelijkingsresultaten experiment 2 .....	45
4.3.5 Discussie .....	47
4.4 Lokale bijdrage versus achtergrond.....	48
<b>5. Conclusies en aanbevelingen</b>	<b>50</b>
<b>Dankwoord</b>	<b>51</b>
<b>Literatuur</b>	<b>52</b>
<b>Bijlage 1 Verzendlijst</b>	<b>54</b>



## Samenvatting

In het onderzoeksproject II van het Stikstof Onderzoeks Programma (STOP) 'verbetering emissie-depositie modellering' is door de onderzoeksinstituten KEMA, IMAG, LEI-DLO, LUW, TNO, ECN en RIVM samengewerkt met als doel het valideren en verbeteren van modellen voor de emissie - concentratie - depositie van stikstofverbindingen ( $\text{NH}_x$ ,  $\text{NO}_x$ ) op lokale schaal. Hiertoe zijn een tweetal kortdurende veldexperimenten uitgevoerd in het proefgebied De Driesprong bij Ede waarbij de emissie en de verspreiding van ammoniak zijn gemeten bij het aanwenden van mest (oppervlakkig en ondergewerkt). Daarnaast zijn de emissies van een drietal bedrijven gemeten gedurende enkele maanden en is de ammoniakconcentratie gemeten op een 17-tal plaatsen in het proefgebied van ca. 2 x 2 km.

In dit rapport wordt de verbinding gelegd tussen de gemeten (en overige) emissies en de gemeten concentraties en deposities via bestaande en nieuw ontwikkelde/gemodificeerde verspreidingsmodellen. Voor de lange-termijn gemiddelde concentraties is het OPS-LT model toegepast. Dit model is recentelijk verbeterd in het kader van het onderzoek naar het zogenaamde ammoniakgat. Ook is dit model gebruikt om invloeden van ammoniakbronnen buiten het proefgebied in kaart te brengen. Op basis van het OPS-LT model is een korte termijn versie ontwikkeld (OPS-KT) met als doel de verbinding te leggen tussen kortdurende (detail)metingen en het OPS-LT model. Op deze wijze kunnen de metingen worden gebruikt voor validatie van het OPS-LT model. Daarnaast is een numeriek K-diffusiemodel (verder) ontwikkeld om het horizontale transport en de verticale dispersie vanuit zeer lage bronnen te kunnen kwantificeren en ook het ontstaan van verticale concentratieprofielen ten gevolge van droge depositie aan het aardoppervlak. Dit model fungeert daarmee als een referentie voor het testen van procesbenaderingen in het OPS-KT/LT model. Het OPS-KT model is vergeleken met resultaten van een 'klassiek' verspreidingsexperiment namelijk de 'Prairie Grass' data. Hieruit blijkt dat dit model geen belangrijke systematische afwijkingen vertoont maar wel een flinke spreiding in uurlijkse uitkomsten (10-100% afhankelijk van de toestand van de atmosfeer).

Uit de vergelijkingen van de modellen met de metingen uitgevoerd in dit project blijkt dat met het huidige OPS-LT model de ruimtelijke verdeling van de gemeten (9 maandsgemiddelde) concentraties binnen het proefgebied (bestaande uit landbouwgrond en bos) voor ongeveer 50% kan worden verklaard. Voorwaarde hierbij is wel dat de landbouwemissies op bedrijfslocatieniveau worden gehanteerd. De gemiddelde concentratie in het gebied wordt door het model met ongeveer 15% onderschat; dit is iets beter dan op landelijk schaal wordt gevonden.

Toepassing van het korte termijn model op de gemeten emissies bij de aanwendingsproeven laat zien dat dit model de tijdreeks van lokaal gemeten concentraties redelijk volgt maar in absolute zin met ongeveer een factor 2 overschat. Het is niet te bepalen of dit duidt op een systematische afwijking in de modellering van de korte-afstandverspreiding, een lokaal bosrand effect of dat de gemeten emissie te hoog was. Daarvoor was het aantal experimenten te beperkt. De gevonden afwijkingen liggen wel binnen de range welke internationaal met moderne korte termijn modellen bij vergelijking met metingen voor een bepaalde locatie op uurbasis worden gevonden.

Op basis van met name de goede simulatie van de gemiddelde ruimtelijke verschillen in het proefgebied kan worden geconcludeerd dat met het huidige modelinstrumentarium het

bedrijfsvestigings- en bedrijfsverplaatsingsbeleid redelijk tot goed kan worden ondersteund, mits emissiegegevens met een hoog ruimtelijk detailniveau beschikbaar zijn.

# 1. Inleiding

## 1.1 Achtergrond

De aanleiding voor een Stikstof Onderzoek Programma (STOP) vormde het feit dat na de afronding van de derde fase van het Additioneel Programma Verzuuringsonderzoek in 1995 nog een aantal kennishiaten werden geconstateerd welke vooral betrekking hadden op de stikstofproblematiek. In een voorstudie op het STOP programma is op deze kennishiaten verder ingegaan (Erisman e.a., 1996). De conclusies daaruit waren dat de kennis over de emissie en depositie van stikstofcomponenten voldoende zou zijn om er beleid op regionale en nationale schaal mee te onderbouwen. Voor meer specifieke emissiebeperkende maatregelen op lokale schaal werd het inzicht in de processen en effecten op deze schaal echter beperkt bevonden. Gerefereerd wordt hier vooral aan de grote invloed welke (individuele) veehouderijbedrijven kunnen hebben op de depositie op nabij gelegen voor verzuring en eutrofiëring gevoelige bos en natuurterreinen.

Het instrumentarium waarmee zowel nationaal als lokaal beleid werd ondersteund, bestond uit het atmosferisch verspreidingsmodel OPS (Operationeel Prioritaire Stoffen model, Van Jaarsveld, 1995) dat op een ruimtelijk schaalniveau van 5x5 km de relatie tussen emissies en concentraties/deposities van ammoniak en stikstofoxiden beschreef. Dit schaalniveau is destijds gekozen op basis van de beschikbaarheid van actuele emissiegegevens. In Asman en Van Jaarsveld (1992) werd al aangetoond dat het schaalniveau van de emissie bepalend is voor de mate waarmee metingen kunnen worden gereproduceerd. In een recente studie naar de regionale verspreiding van ammoniak is gebleken dat met meer gedetailleerde emissiegegevens (2x2 km) betere overeenstemming met lokale meetresultaten kunnen worden gevonden (Duyzer e. a., 1998). Het OPS model is mede bedoeld is voor berekening van de verspreiding en depositie vanuit individuele bronnen op een schaal vanaf tientallen meters. De verspreidingsaspecten op deze schaal zijn getest op basis van een vergelijking met een algemene dataset voor verspreiding vanuit een lage SO<sub>2</sub> bron (de z.g. Prairiegrass data) (Van Jaarsveld, 1995). In die test speelt depositie echter nauwelijks een rol. Het is tot op heden niet mogelijk gebleken het model voor deze schaal ook voor ammoniak met actuele metingen te testen waarbij ook de (droge) depositie een belangrijke rol speelt.

## 1.2 Werkwijze

Het STOP II project is er primair op gericht emissie-depositie relaties op lokale schaal te onderzoeken via gerichte emissiemetingen en gelijktijdige meting van verspreidingsparameters, luchtconcentraties en depositie. De aldus vergaarde gegevens kunnen worden gebruikt om modellen voor de lokale schaal (verder) te ontwikkelen en te testen. Een secundair doel was het meer inzicht te krijgen in de emissie ten gevolge van mestaanwending op bouwland op veldschaal. De veldexperimenten zijn uitgevoerd door ECN (Erisman e.a., 1999), TNO (Duyzer en Weststrate, 1999), KEMA (Römer e.a., 1999) en IMAG (Monteny e.a., 1999), waarbij IMAG vooral zich concentreerde op emissiemetingen. Emissiegegevens van het proefgebied werden verzameld door het LEI (Oudendag, 1999). Modelontwikkeling en toepassing heeft plaatsgevonden bij KEMA, LUW en RIVM, waarbij de KEMA zich vooral concentreerde op NO<sub>x</sub> verspreiding met gebruik van het model STACKS (Römer e.a., 1999) en de LUW op de modellering van lokale terreineffecten met behulp van het RAMS/HYPACT

model (Hofschreuder e.a., 1999). Het RIVM heeft de taak op zich genomen om voor  $\text{NH}_x$ , samen met de andere project deelnemers, de samenhang te leggen tussen de uitgevoerde metingen van emissies, luchtconcentraties en deposities via bestaande, nieuw ontwikkelde en/of gemodificeerde verspreidingsmodellen. Het geheel moet daarbij uitspraken opleveren en in welke mate lokale verspreiding beschreven en gekwantificeerd kan worden. Dit rapport geeft daarvan het resultaat.

### *Opzet rapportage*

In dit rapport wordt in hoofdstuk 2 ingegaan op een aantal algemene aspecten van de verspreiding van ammoniak vanuit stallen en na uitrijden van mest op lokale schaal. Hier worden ook het OPS modeluitkomsten vergeleken met een numeriek diffusiemodel om de consistentie in de modelformuleringen te testen voor wat betreft verticale concentratieprofielen en invloed van droge depositie daarop. In hoofdstuk 3 wordt de opzet van experimenten kort beschreven en in hoofdstuk 4 vindt de vergelijking modelresultaten en veldresultaten plaats. Tot slot worden in hoofdstuk 5 de bevindingen in de vorm van conclusies en aanbevelingen weergegeven.

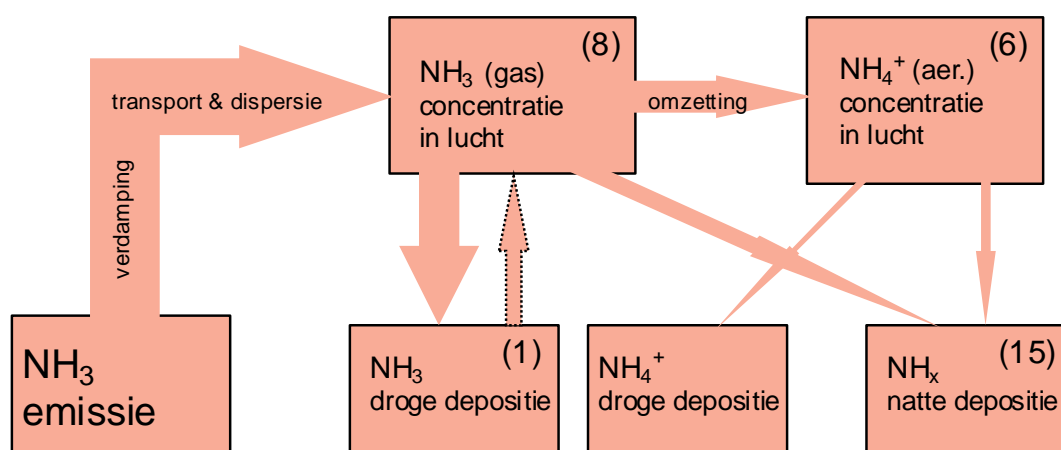


## 2. Verspreiding en depositie

### Inleiding

De atmosferische cyclus van ammoniak is schematisch gegeven in Figuur 2.1. Vergeleken met andere luchtverontreinigende stoffen kenmerken de emissie en verspreidingsprocessen van ammoniak zich doordat een belangrijk deel van deze processen zich afspelen aan of dichtbij de bodem. Daarnaast is de droge en natte depositie van ammoniak relatief snel en is ook de omzettingssnelheid hoog. Dit alles maakt dat de verblijftijd van ammoniak in de atmosfeer erg kort kan zijn. Wanneer de verspreiding van ammoniak wordt gesimuleerd met een model dan dient zo'n model met name de processen in de onderste meters van de atmosfeer goed te kunnen beschrijven. Bijna alle grootschalige modellen voor verzurende stoffen hebben een zodanige verticale resolutie dat de verspreiding en (lokale) depositie van ammoniak er niet of niet goed mee gemodelleerd kan worden. In veel modellen voor lokale verspreiding worden depositieprocessen genegeerd, in andere zijn droge depositieprocessen slechts zeer globaal opgenomen.

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



Figuur 2.1 De atmosferische cyclus van ammoniak. De dikte van de pijlen weerspiegelen het relatieve belang van de processen. De getallen tussen haakjes geven het aantal meetpunten van het LML.

Verspreiding van ammoniak is al sinds 1989 in het OPS model opgenomen. Voor de toetsing van het model voor deze stof is minder meetmateriaal voorhanden. Asman en Van Jaarsveld (1992) hebben de toenmalige versie van het model uitgebreid vergeleken met metingen in binnen en buitenland. Recentelijk is (gedeeltelijk parallel aan het STOP onderzoek) in het kader van een analyse van het zgn. ammoniakgat is het model op een aantal punten uitgebreid en verbeterd (Van Jaarsveld e.a., 2000). Hoewel de bestaande modeltoetsing vooral op

regionale en landelijke schaal is uitgevoerd bevat zij impliciet ook een toetsing van lokale verspreiding. Immers, er wordt bij deze toetsing vergeleken met metingen welke allen meer of minder zijn beïnvloed door lokale bronnen. Validatie van het model voor specifieke lokale emissie-concentratie depositie relaties was tot op heden niet mogelijk omdat het geschikte meetmateriaal ontbrak. In het STOP II project is getracht via gerichte meetcampagnes dit materiaal te verzamelen.

## 2.1 Verspreiding op lokale schaal

### *Verspreiding vanuit grondbronnen en stallen*

De problematiek van de verspreiding van ammoniak ligt vooral in het feit dat de stof op zeer geringe hoogte vrij komt. Met name geldt dit voor de verdamping van ammoniak na het uitrijden van mest of mest die bij beweiding op het land is gedeponerd. De initiële verspreiding van het ammoniak wordt volledig bepaald door de lokale windsnelheid en turbulentie welke sterk hoogte afhankelijk zijn en dichtbij de grond tot nul naderen. Het verdampings-, verspreidings- en depositieproces kan in dit geval niet meer afzonderlijk worden beschouwd omdat ze door dezelfde meteorologische parameters (temperatuur, instraling, windsnelheid, oppervlakteruwheid) worden bepaald. Een volledig model voor de beschrijving dit complexe proces zou bestaan uit een model voor het gedrag van de bovenlaag van de bodem gekoppeld aan een model voor de onderste laag van de atmosfeer. In dit model zou dan in of op de bodem een bepaalde hoeveelheid mest (of N in de vorm van  $\text{NH}_3$ ) worden ingebracht welke zich verspreid in het bodemcompartiment en van daaruit naar het luchtcompartiment alwaar het onderhevig wordt aan dispersie, transport omzetting en depositie.

Een beperkte implementatie (alleen verticale uitwisseling) van zo'n soort model is het één-dimensionale DEPASS model (Van Jaarsveld, 1996) waarvan het ammoniakverdampingsdeel is gebaseerd op het werk van van der Molen e.a. (1990a; 1990b). Het DEPASS model is vooral bedoeld om de uitwisselingsprocessen te bestuderen via simulatie van uitgevoerde veldexperimenten en vandaar uit parameterisaties af te leiden voor gebruik in atmosferische verspreidingsmodellen. In hoofdstuk 2.5 wordt het model toegepast om de emissie-meteo relatie van  $\text{NH}_3$  te parameteriseren voor het OPS model.

## 2.2 Verspreiding van $\text{NH}_3$ gesimuleerd met een K model

Het verspreidings- en depositiegedrag van lage en grondbronnen in de onderste meters van de atmosfeer kan bestudeerd worden met een numeriek diffusiemodel (K-model) waarin verticale verspreiding en horizontaal transport beschreven wordt als functie van hoogte-afhankelijke profielen van turbulente diffusie en windsnelheid (Nieuwstadt en Van Ulden, 1978; Gryning e.a., 1983). Deze profielen worden beschreven met behulp van de Monin-Obukhov similariteits relaties op basis van de oppervlaktelaag parameters: wrijvingsnelheid ( $u^*$ ), Monin-Obukhov stabiliteitslengte ( $L$ ) en oppervlakteruwheid ( $z_0$ ). In de modelimplementatie gebruikt voor deze studie zijn de profiel functies voor windsnelheid en eddy-diffusie van Businger (1973) geadopteerd.

### *Beschrijving K-model*

De modelbenadering is geformuleerd naar Nieuwstadt en Van Ulden (1978) en gebaseerd op een numerieke oplossing van de diffusievergelijking voor een continue puntbron,

$$u(z) \frac{\partial \chi(x, z)}{\partial x} = \frac{\partial}{\partial z} \left[ K_z(z) \frac{\partial \chi(x, z)}{\partial z} \right] \quad (2.1)$$

hierin is  $\chi$  the dwarswind-geïntegreerde concentratie,  $u$  de horizontale windsnelheid.  $K_z$  de eddy diffusie van de stof in de verticale richting,  $x$  de windafwaartse afstand tot de bron en  $z$  de hoogte boven de grond. Het windsnelheidsprofiel dat hier is gebruikt is gegeven door (Businger, 1973):

$$u(z) = \frac{u_*}{\kappa} \left[ \ln \left( \frac{z}{z_0} \right) - \Psi \left( \frac{z}{L} \right) \right] \quad (2.2)$$

waarin,

$$\Psi \left( \frac{z}{L} \right) = -4.7 \left( \frac{z}{L} \right) \quad \text{voor } \frac{1}{L} \geq 0, \quad (2.3)$$

$$\Psi \left( \frac{z}{L} \right) = 2 \ln \left( \frac{1+X}{2} \right) + \ln \left( \frac{1+X^2}{2} \right) - 2 \arctan(X) + \frac{\pi}{2} \quad \text{voor } \frac{1}{L} < 0 \quad (2.4a)$$

$$X = \left( 1 + 15 \frac{z}{L} \right)^{0.25} \quad (2.4b)$$

hierin is  $\Psi(z/L)$  een empirische functie welke de relatie met de atmosferische stabiliteit beschrijft,  $\kappa$  de von Kármán constante welke door Businger gelijk aan 0.35 wordt genomen,  $z_0$  de ruwheidslengte,  $u_*$  de wrijvingsnelheid en  $L$  de Monin-Obukhov stabiliteitslengte. Binnen de oppervlaktelaag kan het eddy-diffusie profiel  $K_z(z)$  uitgedrukt worden als:

$$K_z(z) = \kappa u_* \frac{z}{\phi_h \left( \frac{z}{L} \right)} \quad (2.5)$$

waarin,

$$\phi_h \left( \frac{z}{L} \right) = 0.74 \left[ 1 + 6.3 \left( \frac{z}{L} \right) \right] \quad \text{voor } \frac{1}{L} \geq 0, \quad (2.6)$$

$$\phi_h \left( \frac{z}{L} \right) = 0.74 \left[ 1 - 9 \left( \frac{z}{L} \right) \right]^{-0.5} \quad \text{voor } \frac{1}{L} < 0, \quad (2.7)$$

De aanwezigheid van een inversielaag in de atmosfeer op hoogte  $z_i$  kan in het K-model worden gesimuleerd door de volgende randvoorwaarden te stellen aan verg. (2.1):

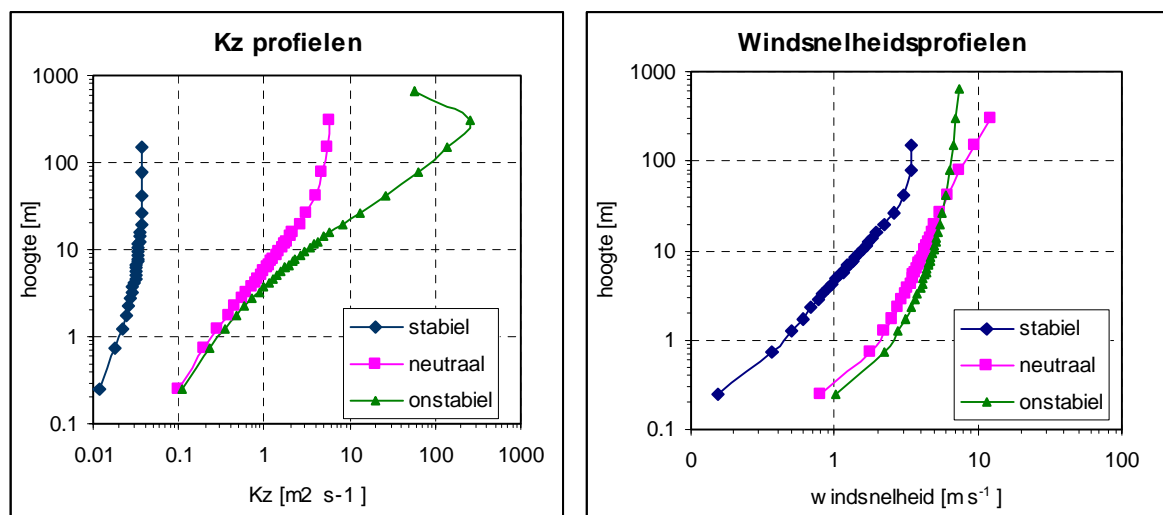
$$K_z \frac{\partial \chi}{\partial z} = 0 \quad \text{voor } z = z_i \quad (2.8)$$

Op de hoogteafhankelijkheid van  $K$  wordt in instabiele omstandigheden ( $1/L < 0$ ) nog een correctie uitgevoerd om te verdisconteren dat de aanwezigheid van een inversielaag ook invloed heeft op de verspreiding direct onder deze laag. Dit wordt gedaan door de diffusie naar nul te laten naderen (Brost en Wijngaard, 1978):

$$K_z(z) = K_z(z) \left(1 - \frac{z}{z_i}\right)^{1.5} \quad (2.9)$$

Hiermee wordt aangegeven dat in instabiele omstandigheden de turbulente bewegingen midden in de menglaag een grotere amplitude hebben dan die dichtbij de bodem of aan de top van de menglaag. In de toepassing van dit model voor de oppervlaktelaag van de atmosfeer heeft dit weinig effect.

In Figuur 2.2 zijn de  $K_z$  en windsnelheidsprofielen uitgezet welke zijn berekend met bovenstaande vergelijkingen voor verschillende atmosferische omstandigheden. Uit deze voorbeelden blijkt dat vooral in neutrale onstabile omstandigheden de turbulente diffusie en de windsnelheid een orde van grootte kan toenemen met de hoogte in de onderste tientallen meters van de atmosfeer. De hoogte waarop verontreiniging in de atmosfeer wordt geloosd (b.v. grondbronnen versus stallen) zal daarom van grote invloed zijn op de verspreiding in de eerste honderden meters.



*Figuur 2.2* Verticale profielen van  $K_z$  en  $u$  voor (zeer) stabiele atmosferische omstandigheden ( $u_* = 0.06 \text{ m s}^{-1}$ ;  $L = 7 \text{ m}$ ), neutrale omstandigheden ( $u_* = 0.35 \text{ m s}^{-1}$ ;  $L = 200 \text{ m}$ ) en onstabile omstandigheden ( $u_* = 0.45 \text{ m s}^{-1}$ ;  $L = -90 \text{ m}$ ). Ruwheidslengte is  $0.1 \text{ m}$ .

#### *Droge depositie in het K-model*

Het verlies van materiaal door droge depositie wordt geïntroduceerd in het K-model door nog een randvoorwaarde op te leggen aan verg. 2.1:

$$K_z \frac{\partial \chi}{\partial z} = V_d(z = z_0) \chi \quad \text{voor } z = z_0 \quad (2.10)$$

hierin is  $V_d(z)$  de droge depositiesnelheid op hoogte  $z$ , welke in dit model bestaat uit de inverse van een serieschakeling van drie weerstanden: een oppervlakteweerstand  $R_c$  welke vooral bepaald wordt door plantenfysiologische factoren in combinatie met chemische eigenschappen van de stof, een hoogteafhankelijke aërodynamische weerstand  $R_a(z)$  en een laminaire grenslaagweerstand  $R_b$ , welke de overgang vormt tussen transport door diffusie en transport door turbulentie,

$$V_d(z) = \frac{1}{R_a(z) + R_b + R_c} \quad (2.11)$$

De laminaire grenslaagweerstand  $R_b$  wordt benaderd door Wesely en Hicks (1977),

$$R_b = \frac{2}{\kappa u_*} \left( \frac{N_{Sc}}{N_{Pr}} \right)^{\frac{2}{3}} \quad (2.12)$$

waarbij  $N_{Sc}$  en  $N_{Pr}$  respectievelijk de Schmidt en Prandtl nummers zijn.  $N_{Pr}$  is  $\sim 0.72$  terwijl  $N_{Sc}$  is gedefinieerd als:  $\nu/D_g$ , waarbij  $\nu$  de kinematische viscositeit van lucht is ( $\sim 0.15 \times 10^{-2} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ ) en  $D_g$  de moleculaire diffusiteit van het betreffende gas (in dit geval  $\text{NH}_3$ ). De aërodynamische weerstand volgt uit de integratie van de reciproke van de turbulente diffusie:

$$R_a(z_0, z) = \int_{z_0}^z \frac{1}{K_z(z)} dz \quad (2.13)$$

$$R_a(z_0, z) = \frac{1}{\kappa u_*} \left[ \ln\left(\frac{z}{z_0}\right) - \phi_h\left(\frac{z}{L}\right) + \phi_h\left(\frac{z_0}{L}\right) \right] \quad (2.14)$$

In het model wordt  $r_a$  slechts geïntegreerd over de onderste helft van de onderste laag. De aërodynamische effecten van de hogere lagen worden geacht verdisconteerd te zijn in het verticaal diffusieprofiel en het resulterende concentratieprofiel. In vergelijkingen (2.10)-(2.14) moet  $z$  vervangen worden door  $z-d$  in het geval van hoge gewassen of bos, waarbij met  $d$  de nulvlak-verplaatsingshoogte wordt bedoeld.

De droge depositie flux  $F$  wordt berekend als

$$F = V_d \chi_1 \quad (2.15)$$

waarbij  $\chi_1$  de concentratie is in de onderste modellaag.

### *Modelimplementatie*

Het model bestaat uit 40 lagen welke onderin een dikte hebben van 0.5 m en logaritmic oplopen tot een totale laagdikte van 1000 m. In de advectierichting bestaat het model uit vakjes van 5 m lang. De integratietijdstap is afhankelijk van  $K$ , van  $u$  in de onderste modellaag en van  $v_d$ .

### *Resultaten K model*

Als testcases is gekozen voor bronhoogten van 0.75 en 5 m bij een ruwheid van 0.1 m waarbij de verticale profielen op 150 en 750 m van de bron worden gegeven. Verder zijn drie stabiliteitstoestanden gedefinieerd:

stabiel (rustige heldere nacht)	$u^* = 0.06 \text{ m/s}$	$L = 7 \text{ m}$
neutraal (bewolkt weer overdag)	$u^* = 0.35 \text{ m/s}$	$L = 200 \text{ m}$
onstabiel (licht bewolkt weer overdag)	$u^* = 0.45 \text{ m/s}$	$L = -90 \text{ m}$

*Resultaten K-model voor een inert gas (geen depositie)*

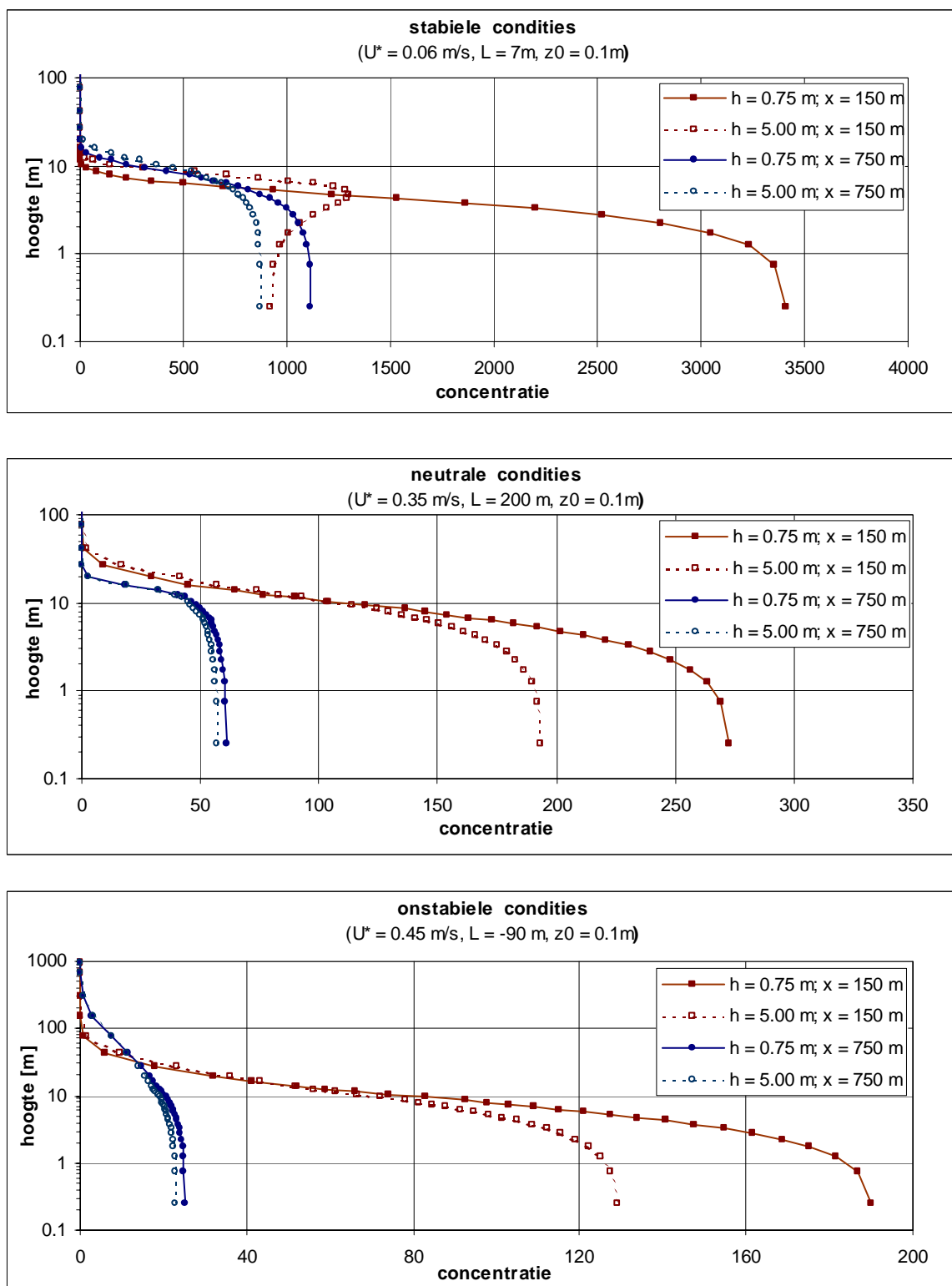
Uit de resultaten in Figuur 2.3 blijkt dat de concentraties bij deze lage bronhoogten op de gekozen afstanden vooral afhangen van de atmosferische conditie. Op 150 m afstand van de bron is de invloed van de bronhoogte nog sterk aanwezig. Op 750 m is dit effect nog gering. Uit de figuur blijkt ook dat het (inerte) gas in stabiele omstandigheden maar tot geringe hoogte is uitgedijd: na 750 m zit verreweg het meeste nog onder de 10 m. In onstabiele omstandigheden is dit ca. 10 keer zo hoog.

*Resultaten K-model voor ammoniak ( $R_c = 30$  s/m)*

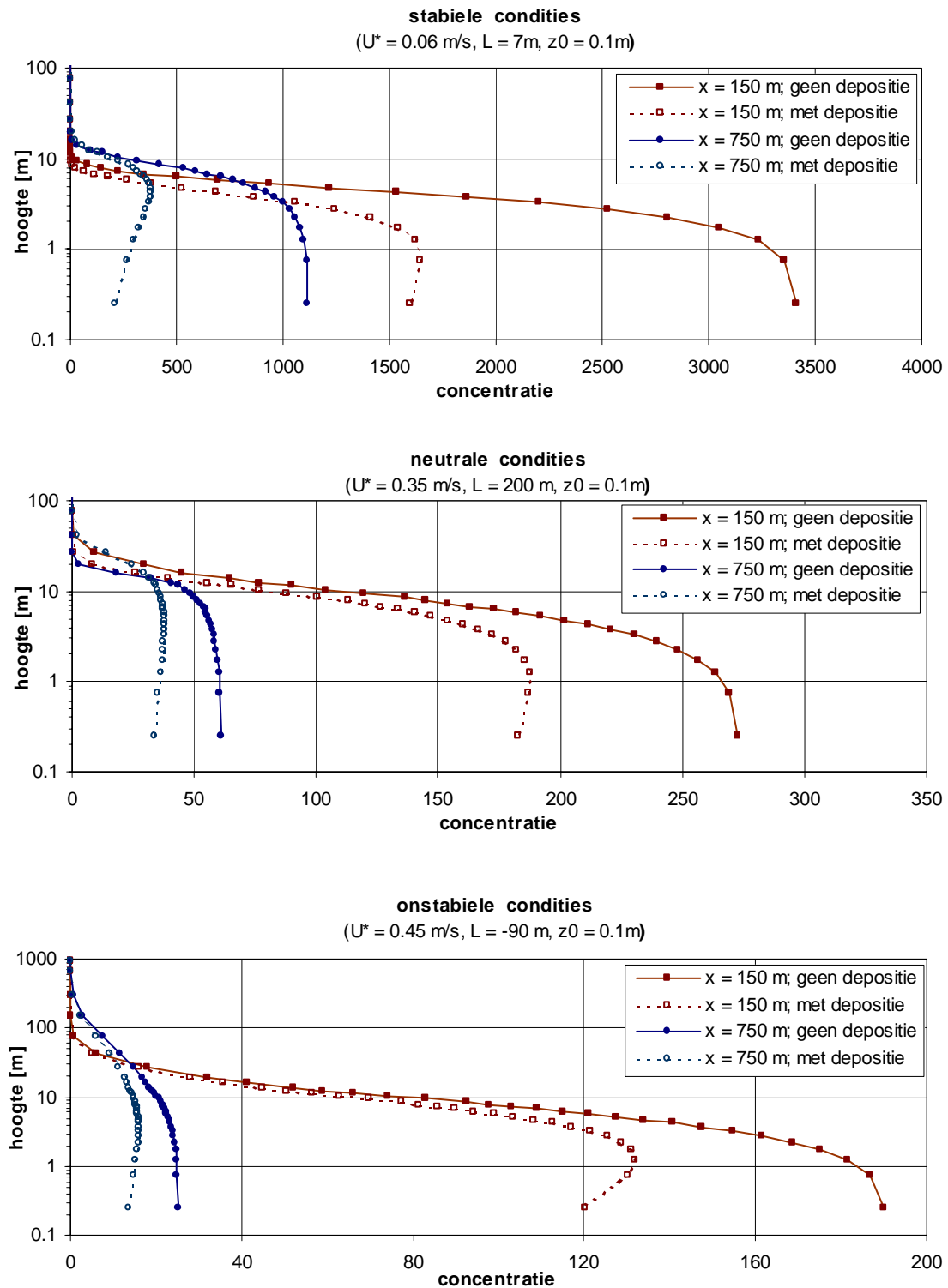
In Figuur 2.4 zijn een aantal resultaten voor ammoniak weergegeven, waarbij droge depositie is voorondersteld met een constante  $R_c$  van 30 s/m.. Het blijkt dat de concentraties niet alleen in absolute zin lager zijn maar ook dat het verticale profiel zich sterk wijzigt. Dit laatste komt omdat de droge depositie zich aan het oppervlak afspeelt en het ammoniak dat verloren is gegaan niet snel genoeg van bovenaf wordt aangevuld. Deze effecten zijn het sterkst in stabiele omstandigheden. Bij een bronhoogte van 0.75 m is de concentratie na 150 m door droge depositie al gehalveerd! Bij andere atmosferische omstandigheden is dit minder dramatisch maar toch ook aanzienlijk, zie Tabel 2.1.

*Tabel 2.1 Verhouding tussen  $NH_3$  concentratie op 1 m hoogte voor situatie met droge depositie en situatie zonder droge depositie. Bronhoogte: 0.75 m.*

<i>Atmosferische stabiliteit</i>	<i>150 m van bron</i>	<i>750 m van bron</i>
Stabiel	0.50	0.27
Neutraal	0.71	0.58
Onstabiel	0.73	0.62



Figuur 2.3 Verticale concentratieprofielen berekend met een  $K$ -diffusiemodel als functie van bronhoogte en afstand tot de bron bij verschillende atmosferische stabiliteitscondities. Droge depositie is hier op nul gesteld.



Figuur 2.4 Effecten van droge depositie op concentraties en verticale concentratieprofielen.

Deze resultaten geven aan dat emissiemetingen welke worden uitgevoerd op enige afstand tot de bron altijd tot onderschattingen leiden omdat in het traject bron-meetapparaat al verlies optreedt door droge depositie. Om deze reden moeten dit soort metingen dichtbij de bron plaatsvinden en is het ook belangrijk dat het oppervlak van het veld waarop mest wordt uitgereden zo klein mogelijk is. In neutrale en instabiele omstandigheden zijn deze problemen minder groot.



## 2.3 OPS korte-termijn model

Het OPS model is van oorsprong een lange-termijn model in de zin dat het wel is gebaseerd op uurlijkse meteogegevens maar alleen uitspraken doet over de set van uurwaarden als geheel of hooguit over typische meteorologische omstandigheden welke een relatie (kunnen) hebben met bepaalde tijdstippen (b.v. dag/nacht). Om dit soort modellen te valideren zijn in principe ook metingen nodig welke over een langere periode uitgevoerd zijn. Als het model wordt gebruikt op een manier waarbij alle relevante bronnen worden meegenomen in de berekeningen, dan kan de som van de berekende bijdragen rechtstreeks worden vergeleken met b.v. jaargemiddelde metingen. Hiervoor zijn de meetreeksen uit het LML bijzonder geschikt. Wanneer echter specifieke onderdelen van het model moeten worden getest, b.v. in hoeverre het model in staat is de bijdrage van individuele bronnen in hun directe omgeving te beschrijven dan blijken er geen of zeer beperkte meetgegevens beschikbaar te zijn. Bijna alle experimenten die zijn gedaan om bron-receptor relaties te kwantificeren blijken eerder op uurbasis uitgevoerd te zijn dan op weekbasis of langer. Dit fenomeen is een belangrijke reden geweest om een korte termijn versie van het OPS model te ontwikkelen. In deze zin is dit model ook in het huidige project ingezet: als een middel om experimentele gegevens van beperkte duur te vertalen naar andere (gemiddelde) omstandigheden en andersom: als een middel om het lange-termijn model te kunnen testen/valideren op basis van korte meetreeksen.

Aangezien het bestaande OPS model zich altijd al heeft gebaseerd op uurlijkse meteorologische gegevens en uurgemiddelde parameterisaties was het maken van een versie op uurbasis relatief eenvoudig: bijna alle modules (verticale dispersie, pluimstijging, menghoogte, droge depositie, natte depositie) konden ongewijzigd worden gebruikt. Deze versie wordt verder aangeduid als OPS-KT. In feite is alleen het lokale gedeelte met gaussische verticale verspreiding uit OPS-LT overgenomen. Het langeaafstandsgedeelte van OPS-LT leent zich niet voor korte-termijn toepassingen. OPS-KT is dus een model voor lokale verspreiding (tot op 10-30 km van de bron). Toegevoegd is een module waarin de horizontale dispersie  $\sigma_y$  wordt berekend. Gekozen is in eerste instantie voor een eenvoudige benadering via stabiliteitsafhankelijke empirische dispersiecoëfficiënten. Methoden om b.v. uit gemeten standaarddeviaties van windrichting en windsnelheid de horizontale dispersie beter en meer lokaal te schatten zijn beschikbaar (zie o.a. Erbrink, 1995). Aan zo'n benadering is pas in tweede instantie aandacht besteed omdat dit soort metingen normaal niet standaard beschikbaar zijn en omdat het de verwachting was dat de uit te voeren berekeningen niet erg gevoelig zouden zijn voor de horizontale afmetingen van de pluim.

### *Modelformulering OPS-KT*

De concentratie  $C$  ( $\text{g m}^{-3}$ ) in een punt  $x, y, z$  tengevolge van een bron met sterkte  $Q$  ( $\text{g s}^{-1}$ ) op  $x = 0$ ,  $y = 0$  en  $z = h$  is:

$$C(x, y, z) = \frac{Q}{u} D_y(x, y) D_z(x, z) \quad (2.13)$$

hierin is  $h$  de bronhoogte (m),  $\bar{u}$  de gemiddelde transportsnelheid ( $\text{m s}^{-1}$ ) en  $D_y$  en  $D_z$  respectievelijk de horizontale(dwarswind)- en de verticale dispersiefactor. In het standaard Gaussisch pluimmodel is er een vaste hoogte waarvoor  $\bar{u}$  wordt berekend en is  $D_y$  onafhankelijk van  $z$  en  $D_z$  onafhankelijk van  $y$ . Wanneer wordt aangenomen dat de stof aan de bodem en aan de menglaaghoogte volledig reflecteert dan kan  $D_z$  uitgewerkt worden tot:

$$D_z(x, z) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_z} \left\{ \exp\left[\frac{-(z-h)^2}{2\sigma_z^2}\right] + \exp\left[\frac{-(z+h)^2}{2\sigma_z^2}\right] + \exp\left[\frac{-(z+2z_i-h)^2}{2\sigma_z^2}\right] + \exp\left[\frac{-(z+2z_i+h)^2}{2\sigma_z^2}\right] + \exp\left[\frac{-(z-2z_i-h)^2}{2\sigma_z^2}\right] + \exp\left[\frac{-(z-2z_i+h)^2}{2\sigma_z^2}\right] \right\} \quad (2.14)$$

Op grote afstand van de bron kan de stof als volledig gemengd in de menglaag worden beschouwd ( $\sigma_z > z_i$ ),  $D_z$  vereenvoudigd dan tot

$$D_z(x, z) = \frac{1}{z_i} \quad (2.15)$$

De dwarswind concentratieverdeling wordt gegeven door:

$$D_y(x, y) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_y} \left\{ \exp\left[\frac{-y^2}{2\sigma_y^2}\right] \right\} \quad (2.16)$$

Terzijde: het OPS-LT model gaat uit van een uniforme verdeling binnen een 12 windrichtingssectoren.  $D_y$  vereenvoudigd dan tot:

$$D_y(x, y) = \frac{12}{2\pi x} \quad (2.17)$$

In geval van dwarswind-geïntegreerde concentraties (zoals bij de vergelijking van OPS-KT met het K-model) wordt  $D_y$  gelijk aan 1 (Verg 2.16 integreren van  $y = -\infty$  tot  $y = +\infty$ ).

In het klassieke Gaussisch model wordt uitgegaan van isotropie dat betekend dat  $\sigma_z$  onafhankelijk is van de (bron)hoogte. Het OPS model gaat, net als het hiervoor beschreven K-model, uit van hoogte-afhankelijke  $K_z$  en  $u$  profielen. Gebruik wordt gemaakt van de relatie

$$\sigma_z^2 = 2K_z(z) \frac{x}{u} \quad (2.18)$$

waarmee een hoogteafhankelijke  $\sigma_z$  wordt berekend die vervolgens op de normale wijze in het Gaussische model wordt ingevoerd. Op deze wijze wordt ook de verbinding gelegd tussen de stabiliteits parameters  $u^*$  en  $L$  en verticale verspreiding in dit pluimmodel. De procedure is beschreven in Van Jaarsveld (1995). Cruciaal is de inschatting van de effectieve pluimhoogte welke zowel doorwerkt in  $\sigma_z$  als in de transportsnelheid  $u$ . De gevolgde werkwijze is vooral belangrijk voor grondbronnen. Hier begint de pluimhoogte nagenoeg op nul en zal toenemen met de afstand doordat door dispersie het massazwaartepunt steeds hoger komt te liggen.

#### *Horizontale dispersie*

Zoals eerder is aangegeven, is in eerste instantie gekozen voor een eenvoudige benadering via stabiliteitsklassen (indeling volgens Pasquill, 1961). Bij de bepaling van de bijbehorende verspreidingscoëfficiënten is gebruikgemaakt van de theorie ontwikkeld door Hay en Pasquill

(1959) in combinatie met resultaten van de zogenaamde 'prairiegrass experimenten' (Barad, 1958). Voor dit model is gekozen voor een formulering en bijbehorende coëfficiënten volgens Nieuwstadt (1975),

$$\sigma_y = a x^b \quad (2.19)$$

hierbij zijn  $a$  en  $b$  de dispersiecoëfficiënten. In Tabel 2.2 zijn de coëfficiënten gegeven als functie van de stabiliteitsklassen. Deze klassen worden in het model bepaald uit de Monin-Obukhov lengte en terreinruwheid volgens een methode gegeven door Golder (1978). De waarden in Tabel 2.2 gelden voor een middelingsduur van ongeveer 10 min., voor uurwaarden moet  $a$  worden vermenigvuldigd met  $(60/10)^{0.2} = 1.43$  (Hanna e.a., 1977).

Tabel 2.2 Dwarswind dispersiecoëfficiënten als functie van Pasquill stabiliteitsklassen voor volgens Nieuwstadt (1975). De bijbehorende middelingsduur is 10 min.

Stabiliteitsklasse	$a$	$b$
A	0.527	0.865
B	0.371	0.866
C	0.209	0.897
D	0.128	0.907
E	0.098	0.902
F	0.065	0.902

#### Horizontale dispersie op basis van dwarswindvariaties

Veel nieuwere modellen voor de korte afstand schatten  $\sigma_y$  door gebruikmaking van de statische dispersietheorie van Taylor (1921). De atmosferische turbulentie wordt hier aangegeven door twee parameters: de intensiteit en de tijdschaal. Deze parameters kunnen zowel door metingen als door (deel)modellen worden bepaald. De basis formule luidt:

$$\sigma_y = \sigma_v t f_y \left( \frac{t}{T_l} \right) \quad (2.20)$$

waarin  $\sigma_v$  is de standaarddeviatie van de dwarswind (m/s),  $t$  de reistijd van de pluim,  $f_y(t/T_l)$  een functie van de dimensieloze reistijd  $t/T_l$  en  $T_l$  de (Lagrange) tijdschaal voor horizontale dispersie. Voor dit model is gekozen voor de parameterisatie van Hanna en Chang (1993) zoals gebruikt in het Hybrid Plume Dispersion Model (HPDM). Zij definiëren  $f_y(t/T_l)$  als

$$f_y \left( \frac{t}{T_l} \right) = \left[ 1 + 0.9 \sqrt{\left( \frac{t}{T_l} \right)} \right]^{-1} \quad (2.21)$$

Voor  $T_l$  wordt een waarde van 15000 s genomen voor alle situaties.  $\sigma_v$  komt bij voorkeur direct uit metingen maar kan ook worden geparаметeriseerd met behulp van empirische relaties met o.a.  $u_*$  en  $L$ . Hanna en Chang geven een ondergrens voor  $\sigma_v$  van 0.5 m/s op basis van de waarneming dat horizontale verspreiding op uurbasis mede wordt bepaald door grootschalige windrichtingsveranderingen. Dit betekent dat  $\sigma_y$  volgens verg.(2.20) in (zeer)stabiele omstandigheden aanzienlijk groter is dan die berekend met de Pasquill benadering (verg. 2.19 met parameters uit Tabel 2.2) welke is gebaseerd op 10 min gemiddelden. Een belangrijk voordeel van deze methode is dat de horizontale dispersie

gekoppeld is aan  $u^*$  en  $L$  via continue relaties en niet via classificaties (hoewel de gebruikelijke parameterisaties voor  $\sigma_v$  een onderscheid kennen voor onstabiel en stabiele omstandigheden). In het OPS-KT model kan uit beide benaderingen worden gekozen. Voor de verspreidingsexperimenten doorgerekend in dit project is er nauwelijks een systematisch verschil in resultaten omdat die zich vooral overdag afspelen.

### *Droge depositie*

Droge depositie vindt plaats aan de onderkant van de pluim. De concentratie daalt daar dan ook het eerst. Geleidelijk aan wordt de concentratiedaling naar boven toe uitgebreid. De meeste modellen werken met een brondepletiebenadering hetgeen betekent dat de vermindering op alle hoogten van de pluim gelijk wordt genomen. Sommige benaderingen werken met zogenaamde oppervlaktedepletie (Horst, 1977), waarbij aan het oppervlak kleine bronnen met negatieve emissie worden geïntroduceerd welke het verlies door droge depositie voorstellen. Dit is een elegante doch zeer rekenintensieve benadering. Massavermindering door droge depositie wordt in het OPS model benaderd door een gecombineerde brondepletie-oppervlakteconcentratie correctie. Dit betekent dat de bronsterkte wordt verminderd en tegelijkertijd een verticale concentratiegradiënt wordt opgelegd. De bronsterktevermindering wordt gedefinieerd als

$$Q(x) = Q_0 \exp \left[ - \int_0^x \frac{V_d(z)}{u} D_z(x, z) dx \right] \quad (2.22)$$

waarbij  $Q_0$  de oorspronkelijke bronsterkte is op  $x = 0$  en  $Q(x)$  de resterende bronsterkte op een afstand  $x$  van de bron. De uitwerking is beschreven in Van Jaarsveld (1995). De verticale concentratiegradiënt wordt bepaald door aan te nemen dat de droge depositieflux beneden een referentiehoogte  $z_{ref}$  onafhankelijk is van de hoogte. De relatieve concentratiedaling kan dan geschreven worden als

$$\frac{C_g(z)}{C(z)} = \frac{R_a(z) + R_b + R_c}{R_a(z_{ref}) + R_b + R_c} \quad (2.23)$$

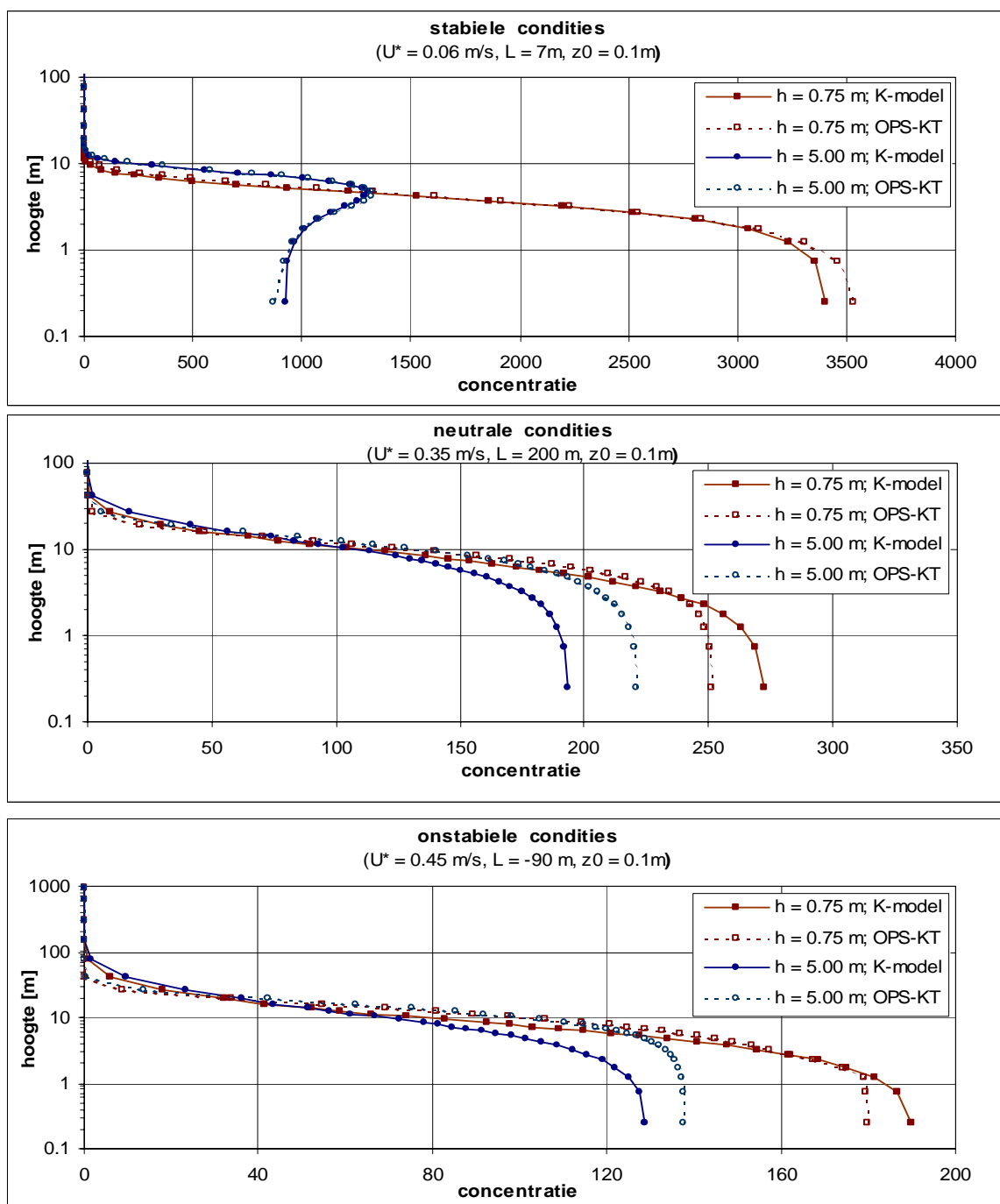
waarbij  $C(z)$  de berekende concentratie is op hoogte  $z$  uitgaande van de gereduceerde bronsterkte  $Q(x)$  en  $C_g(z)/C(z)$  de gradiëntcorrectie. De referentiehoogte  $z_{ref}$  is in principe die hoogte waarbij het effect van droge depositie niet zichtbaar (meer) is in het verticale concentratieprofiel. Als maximale hoogte wordt hiervoor 50 m aangehouden. De invloed van droge depositie op het verticale concentratieprofiel is dichtbij de bron nihil en bouwt zich op naarmate de stof door de wind wordt weggevoerd. Om dit opbouwproces te verdisconteren is gekozen voor een parameterisatie van  $z_{ref}$  op basis van de (afstandsafhankelijke)  $\sigma_z$  en de bronhoogte:

$$z_{ref} = 1.4 \left( \sigma_z - \frac{h}{2.5} \right) \quad (2.24)$$

Verticale gradiëntcorrectie volgens (2.23) wordt tot op hoogte  $z_{ref}$  toegepast. Aan  $z_{ref}$  wordt een minimum gesteld van 0.25 m en een maximum van 50 m. De prestaties van de gecombineerde brondepletie-gradiëntcorrectie wordt in de volgende paragraaf getest aan de hand van resultaten van het K-model.

### 2.3.1 OPS model versus K- model

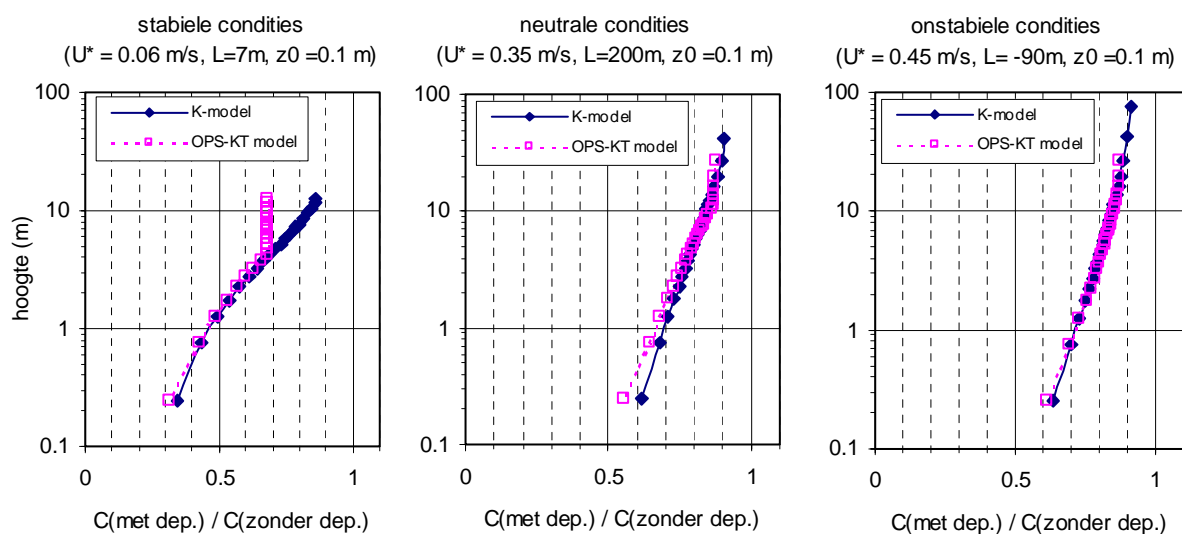
Het K-model leent zich bij uitstek om de verspreiding en (droge) depositie vanuit lage bronnen te beschrijven. De basis van dit model wordt gevormd door de hoogteafhankelijke profielen van turbulentie en windsnelheid welke op hun beurt worden beschreven met Monin-Obukhov similariteits relaties op basis van oppervlaktelaag parameters. Door de numerieke oplossingsmethode welke in dit model wordt toegepast leent het model zich niet voor dagelijks gebruik.



Figuur 2.5 Vergelijking van verticale concentratieprofielen voor een inert gas berekend met het OPS-KT model en het K-model voor stabiele, neutrale en onstabiele omstandigheden. Afstand tot de bron is 150 m, bronhoogten 0.75 m en 5m.

In het onderhavige geval gaan zowel het K-model als het OPS-KT model uit van dezelfde verticale profielen van  $K_z$  en  $u$ . Het K-model kan dus als referentie dienen voor het OPS-KT model welke zich baseert op eenvoudige analytische benaderingen van de advection/diffusie vergelijking. In Figuur 2.5 zijn voor een drietal atmosferische omstandigheden de verticale concentratieprofielen vergeleken welke met de twee modellen worden berekend. Er is daarbij uitgegaan van een inert gas en onderscheid gemaakt tussen een bron op 0.75 m hoogte en een op 5 m hoogte zijnde representatief voor verspreiding vanuit respectievelijk een grondbron en een stal.

In het geval van ammoniak blijkt duidelijk dat de invloed van droge depositie reeds op een afstand van 150 m windafwaarts groot is (zie Figuur 2.6). De (analytische) formuleringen in het OPS model beschrijven het effect van droge depositie op de verticale profielen in het algemeen goed, in ieder geval voor het belangrijkste deel van de pluim.



Figuur 2.6 Concentratieverandering door droge depositie op 150 m afstand van de bron. Bronhoogte: 0.75 m.  $R_c = 30$  s/m.

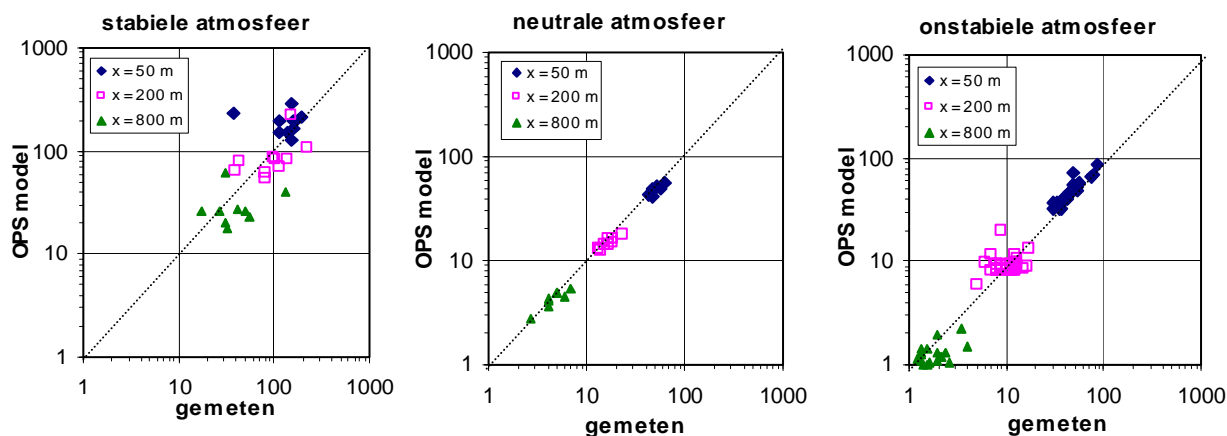
Tabel 2.3 Verhouding tussen concentraties op 1m hoogte berekent met het OPS-KT model en het K-model voor verschillende atmosferische condities, bronhoogten en droge depositietoestanden.

Bronhoogte (m)	Afstand tot bron (m)	$R_c$ (s/m)	Verhouding OPS-KT/ K-model		
			stabiel	neutraal	onstabiel
0.75	150	$\infty$	1.02	0.95	0.99
0.75	750	$\infty$	1.08	1.07	1.02
0.75	150	30	1.00	0.91	0.99
0.75	750	30	1.12	1.13	1.03
5.00	150	$\infty$	0.99	1.15	1.10
5.00	750	$\infty$	1.14	1.11	1.02
5.00	150	30	1.12	1.04	1.04
5.00	750	30	1.18	1.01	1.05

De overeenkomst van het OPS-KT model en het K-model is in Tabel 2.3 nog eens voor een aantal situaties gegeven in de vorm van verhoudingen. Uit deze gegevens blijkt dat het OPS-KT model gemiddeld 4% hogere concentraties geeft en in sommige situaties in de orde van 20% hoger. De verschillen zijn niet systematisch anders voor de drie doorgerkende atmosferische condities. Wel berekent het OPS model in alle gevallen relatief hogere concentraties voor hoge bronnen dan voor lage bronnen.

### 2.3.2 OPS model versus ‘Prairie grass data’

De hierboven omschreven vergelijkingen met het K-model geven vooral inzicht in hoe het OPS model mechanistisch omgaat met verspreiding uit lage bronnen. De verticale diffusie en windsnelheidsprofielen die ten grondslag liggen aan het K-model mogen als ‘state-of-the-art’ worden gekwalificeerd maar bevatten als zodanig ook beperkingen. Daarom is een vergelijking van modelresultaten met veldexperimenten ten zeerste aan te bevelen. Veldexperimenten welke geschikt zijn om de dispersie vanuit grondbronnen te testen zijn zeer schaars. Een experiment wat voldoende uitgebreid en voldoende gedocumenteerd is, is het zogenaamde ‘Prairiegrass experiment’ (Barad, 1958). Het betreft hier verspreiding van  $\text{SO}_2$  uit een bron op 0.46 m hoogte in vlak terrein, waarbij metingen zijn uitgevoerd op een hoogte van 1.5 m op posities dwars op de windrichting op afstanden van 50, 200 en 800m windafwaarts. Daarnaast zijn er uitgebreide meteorologische gegevens verzameld. De dataset is door vele onderzoekers geanalyseerd en gebruikt voor het afleiden van o.a. dispersie-parameterisaties. De gegevens die bij de hieromschreven testen zijn gebruikt zijn gepubliceerd door Van Ulden (1978). Van Ulden heeft de oorspronkelijk gemeten  $\text{SO}_2$  concentraties herleid tot uurgemiddelde dwarswind-geïntegreerde waarden voor de 3 meetafstanden. Voor de betreffende uren zijn de wrijvingssnelheid  $U^*$  en de Monin-Obukhov lengte  $L$  bepaald door Nieuwstadt (1978).



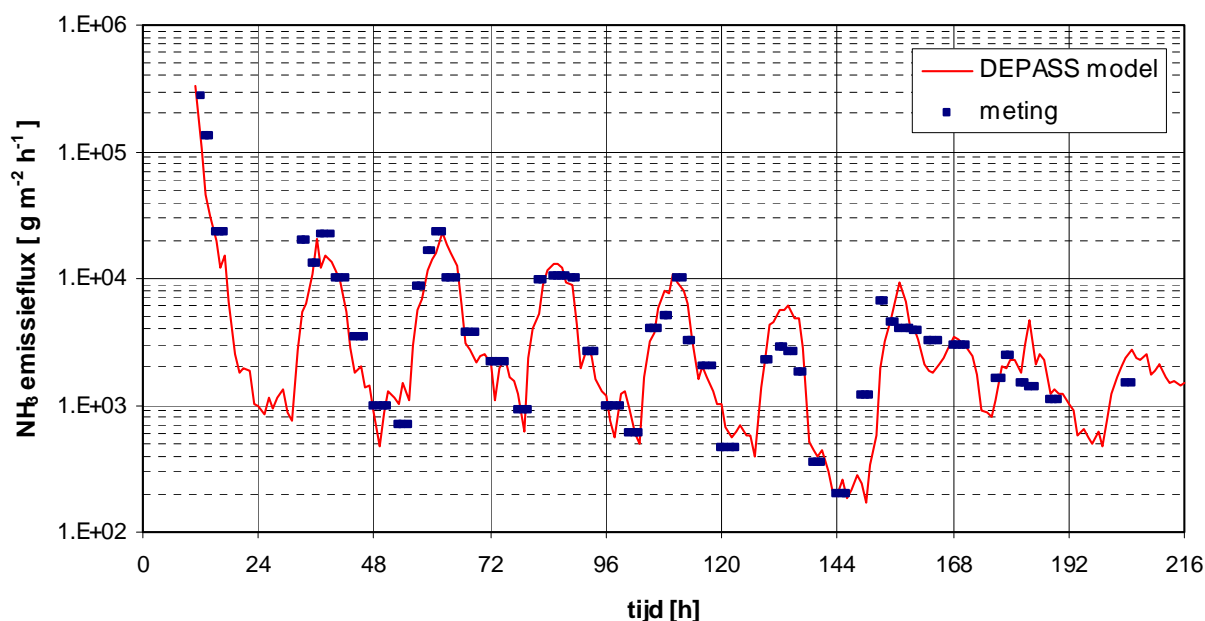
Figuur 2.7 Vergelijking van berekende dwarswind-geïntegreerde concentraties met metingen uit het ‘Prairie grass experiment’. Zowel metingen als modelberekeningen zijn uurgemiddelden. De concentraties zijn hier gedeeld door de bronsterkte en vermenigvuldigd met 1000 (eenheid:  $\text{s m}^{-2}$ ).

In Figuur 2.7 zijn de resultaten gegeven, waarbij een uitsplitsing is gemaakt in stabiele, neutrale en onstabiele omstandigheden en ook in windafwaartse afstanden. Om het effect van droge depositie van  $\text{SO}_2$  te verdisconteren is in de modelberekeningen uitgegaan van een oppervlakteweerstand  $R_c$  van 100  $\text{s/m}$ . Het effect van chemische omzetting op de gemeten concentraties is verwaarloosbaar geacht. In het algemeen vertonen de berekende concentraties

(meethoogte = 1.5m) geen systematische afwijkingen met de experimenten. De individuele uren kunnen vooral in stabiele (nachtelijke) omstandigheden flink afwijken. De standaardafwijking van de afzonderlijke model/meting verhoudingen bedraagt 105%, 10% en 27% voor respectievelijk stabiele, neutrale en onstabiele omstandigheden. De hier getoonde vergelijkingen zeggen vooral iets over de verticale verspreiding in combinatie met de transportsnelheid in vlak en homogeen terrein, dwarswindverspreidings effecten zijn al bij voorbaat uit de vergelijkingen geëlimineerd door uit te gaan van dwarswindgeïntegreerde concentraties.

## 2.4 Meteo-afhankelijkheid van aanwendingsemisies

De verdampingssnelheid van  $\text{NH}_3$  uit mest wordt voor een belangrijk deel bepaald door de temperatuur van de mest en het concentratieverschil tussen  $\text{NH}_3$  aan het oppervlak van de mest en de laag er vlak boven. Dit laatste is afhankelijk van de snelheid waarmee het gevormde gas van het oppervlak wordt weggevoerd en dus 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 emissies en emissies uit kunstmest.



Figuur 2.8 Vergelijking van gemeten en gemodelleerde  $\text{NH}_3$  emissieflex voor het mestaanwendingsexperiment op bouwland (start experiment: 29 september 1992, 10.00 uur)

Het meteo- regime voor deze buitenemissies is veel sterker dan voor stalgerelateerde emissies omdat de mesttemperatuur gelijk kan worden gesteld aan de buitentemperatuur, maar vooral omdat hier de atmosferische stabiliteit een grote rol speelt. De relaties tussen eerder genoemde



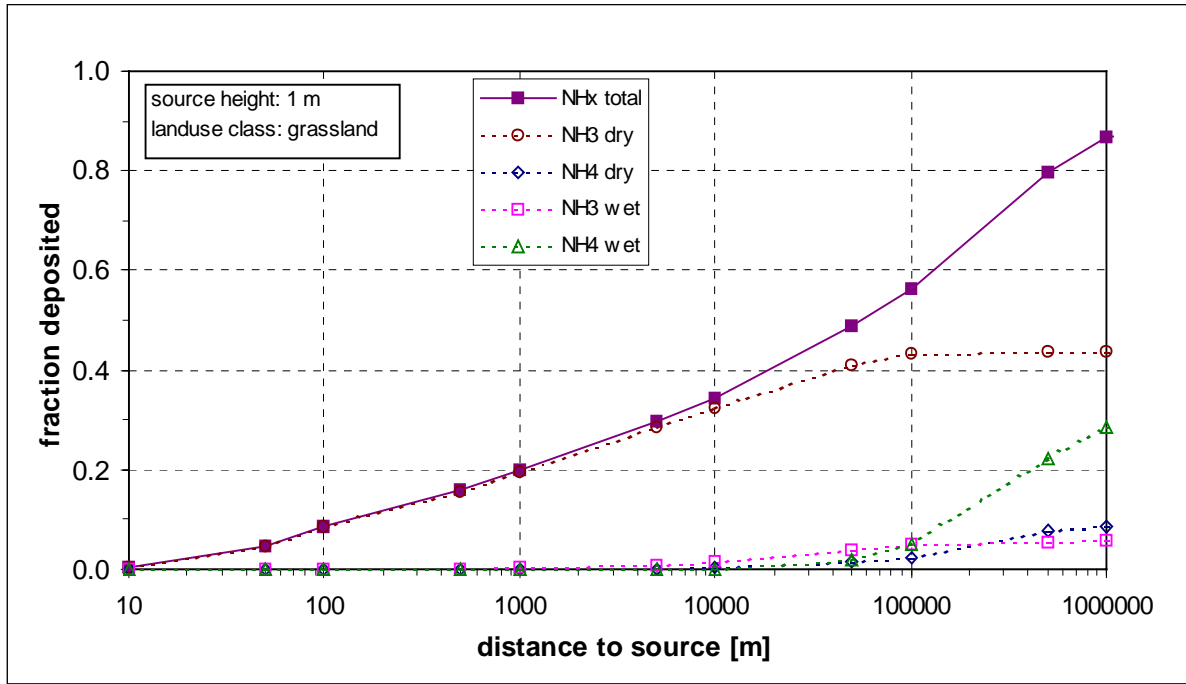
parameters en de emissiesterkte is afgeleid met behulp van het een-dimensionale uitwisselingsmodel 'DEPASS' (Van Jaarsveld, 1996) dat op zijn beurt weer is gevalideerd aan de hand van mestaanwendingsproeven op bouwland (Van der Molen *e.a.*, 1990a; 1990b). In Figuur 2.8 is een vergelijking gegeven tussen gemeten en gemodelleerde NH<sub>3</sub> emissiefluxen voor een van deze aanwendingsproeven. Uit deze figuur blijkt dat de gemeten emissieflux van NH<sub>3</sub> een sterke dagelijkse variatie vertoont (factor 10) welke goed door het model wordt gesimuleerd. Dit laatste is opmerkelijk omdat het model gebruik maakt van meteogegevens van het dichtstbij gelegen KNMI station en niet van lokaal gemeten gegevens. Met behulp van een regressieanalyse van emissies en meteorologische parameters is de volgende correctiefactor t.o.v. de gemiddelde emissiesterkte afgeleid:

$$EC_{aanw} = 1 + 1.55 * 10^{-5} * [ (100 / Ra )^{0.8} * ( T + 23 )^{2.3} ]^{1.25} \quad (2.25)$$

Hierin is  $T$  de buitentemperatuur in graden Celcius en  $Ra$  de aërodynamische weerstand over de onderste 4 m van de atmosfeer. In de aërodynamische 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.

## 2.5 Algemene modelresultaten

Algemeen wordt ammoniak gezien als een lokaal probleem. Om een indruk te geven dat de verspreiding van ammoniak zowel lokale aspecten heeft als internationale aspecten is in Figuur 2.9 de gedeponeerde fractie van NH<sub>3</sub> uitgezet als functie van de afstand tot het emissiepunt. Uitgaande van een bron op 1 m hoogte in een grasland omgeving bij gemiddelde klimatologische condities blijkt dat ongeveer 10% van de geëmitteerde NH<sub>3</sub> reeds in de eerste 100 m wordt gedeponeed. Dichtbij de bron is de droge depositie van NH<sub>3</sub> de dominante verdwijnterm. Doordat NH<sub>3</sub> redelijk snel wordt omgezet in NH<sub>4</sub><sup>+</sup> aerosol (vnl. in de vorm van ammoniumsulfaat en ammoniumnitraat) zal er na verloop van tijd vooral nog NH<sub>4</sub><sup>+</sup> in de lucht zijn. De depositiesnelheid van NH<sub>4</sub><sup>+</sup> is aanzienlijk lager dan die van NH<sub>3</sub>. Dit betekent dat de atmosferische verblijftijd van deze aerosolen aanzienlijk langer is dan die van NH<sub>3</sub>. In de figuur blijkt dat na ongeveer 100 km er geen NH<sub>3</sub> meer over is en dat de natte depositie van NH<sub>4</sub><sup>+</sup> de dominante verdwijnterm is geworden. De hier gepresenteerde grafiek is van toepassing op de situatie van de jaren tachtig. Doordat met name de SO<sub>2</sub> concentraties in West Europa sterk zijn afgenomen is de gemiddelde omzettingssnelheid van NH<sub>3</sub> wel met een factor 3 afgenomen en zal de vorming van NH<sub>4</sub><sup>+</sup> minder snel gaan (Van Jaarsveld *e.a.*, 2000). Het is te verwachten dat daardoor de atmosferische verblijftijd van N uit NH<sub>3</sub> aanzienlijk korter is geworden. Dit betekent minder grensoverschrijdende N depositie in de huidige situatie dan in de jaren tachtig. Door lagere SO<sub>2</sub> concentraties kan echter ook de depositiesnelheid van NH<sub>3</sub> afnemen omdat er minder zuurbinding aan het bladoppervlak kan plaatsvinden. Deze vorm van co-depositie is theoretisch aannemelijk en op laboratoriumschaal ook aangetoond (Adema *e.a.*, 198x). Harde aanwijzingen uit droge depositie metingen in buitenlucht zijn er (nog) niet.



Figuur 2.9 Gedeponeerde  $NH_x$  fracties als functie van de afstand tot het punt van emissie. Uit: Asman en Van Jaarsveld (1992).

## 3. De verspreidingsproeven

### 3.1 Beschrijving proefgebied

Het hoofddoel van het STOP II onderzoeksprogramma was het testen en verder ontwikkelen van relaties in de keten emissie, verspreiding en depositie voor stikstofverbindingen op lokale schaal. Als neven doel is geformuleerd het verkrijgen van inzicht in de emissie van ammoniak ten gevolge van emissieaanwending op bouwland en het effect van onderwerken van mest op veldschaal.

De eerste (technische) eis waaraan een te zoeken locatie moest voldoen was dat de lokale depositie voor het belangrijkste deel ook lokaal zou worden veroorzaakt. Hiervoor komen alleen locaties in intensieve veehouderij gebieden in aanmerking. Een tweede eis was dat het gebied zou grenzen aan een natuurgebied. Tenslotte moest er voldoende medewerking van ondernemers in het gebied zijn, niet alleen om de experimenten te kunnen uitvoeren, maar ook om over de nodige gegevens te kunnen beschikken. In eerste instantie was hiervoor, met medewerking van de Milieucoöperatie de Peel, het gebied Asten/Heusden gekozen. Terwijl de voorbereidingen op de experimenten in volle gang waren hebben betrokken ondernemers hun medewerking alsnog opgezegd als reactie op aangekondigde maatregelen door de toenmalige minister van Landbouw.

Na een langdurige zoektocht is uiteindelijk het gebied de Driesprong even ten noorden van Ede en ten zuidwesten van Wekerom geselecteerd. In het betreffende gebied worden maatregelen getroffen om bedrijven te beëindigen om op de locaties uiteindelijk woningen te realiseren. Het gebied kent een dertigtal bedrijven waarvan op termijn de helft zal stoppen. De emissiedichtheid is er lager dan oorspronkelijk gezocht voor de proeflocatie. De Driesprong wordt omgeven door bosgebieden aan de rand van de Gelderse Vallei. Op het grensvlak van het landbouwgebied en het bosgebied (de Vosseveldse Weg) zijn de meeste metingen uiteindelijk geconcentreerd.

### 3.2 Emissies

Bovenwinds van meetgebied aan de Vosseveldse Weg bevonden zich drie bedrijven die hun medewerking verleenden aan het bepalen van de stalemissies. Dit waren:

- bedrijf met vleesvarkens (1400 dieren)
- bedrijf met vleeskuiken-ouderdieren (5600 dieren)
- bedrijf met leghennen-ouderdieren (25000 dieren)

Het tussenliggende perceel bouwland (ca. 6 ha) was geschikt om er gedurende meetcampagnes mest op toe te dienen (bovengronds en geïnjecteerd). Van de drie bedrijven werd door LEI-DLO de ammoniak emissie berekend m.b.v. de mest en ammoniakmodellen van het LEI (Oudendag, 1999). In eerste instantie werd daarbij uitgegaan van standaardgegevens zoals die worden gebruikt voor de jaarlijkse Milieubalans. In tweede instantie zijn ook berekeningen gedaan op basis van meer bedrijfsspecifieke gegevens en zijn deze resultaten vergeleken met door IMAG gemeten emissies (zie Tabel 3.1). Op basis van door LEI verstrekte gegevens is –voorafgaand aan de meetexperimenten - een eerste

inschatting gemaakt van te verwachten concentraties op de voorgestelde meetlocaties ten gevolge van de 3 bedrijven.

### 3.3 Metingen

#### 3.3.1 Emissies

Ammoniakemissies werden gemeten door het IMAG (Monteny e.a., 1999). Van februari tot en met augustus 1999 werd met zgn. flux-buisjes de ammoniakemissie gemeten van de drie bedrijven per periode van 14 dagen. Tijdens de meetperiode werden op 30 maart en op 9 april meetcampagnes gehouden, waarbij een perceel bouwland van 6 ha werd bemest. Op 30 maart werd rundveemest bovengronds toegediend; op 9 april werd de mest geïnjecteerd. Tijdens deze campagnes werd, naast de emissie van de stallen, ook de emissie van het bemeste bouwlandperceel gemeten. Dit laatste gebeurde met de zgn. fluxraammethode.

Tabel 3.1 Overzicht van de  $NH_3$  stalemissies (per gemiddeld aanwezig dier per jaar) van de drie bedrijven (Oudendag, 1999).

Diersoort cq. bedrijf	LEI-berekening volgens standaard MB	LEI-berekening met bedrijfsspecifieke kenmerken	IMAG-metingen (Monteny e.a., 1999)
Vleesvarkens	3.130	2.430	2.040
Ouderdieren slachtpluimvee	0.195	0.404	0.330
Ouderdieren legpluimvee	0.122	0.227	0.240

In Tabel 3.1 is een overzicht gegeven van de door het LEI berekende emissies en de gemeten emissies voor de drie bedrijven. Wanneer bij de berekening van de emissies wordt uitgegaan van bedrijfsspecifieke gegevens (zoals staltype) dan blijkt dat de berekende emissies redelijk tot goed overeenkomen met de gemeten emissies. Wanneer wordt uitgegaan van landelijk gemiddelde emissiefactoren dan blijken er per stal aanzienlijke verschillen te zijn met de gemeten emissie.

Tabel 3.2 Gemeten  $NH_3$  aanwendingsemissies tijdens de twee meetcampagnes (Monteny e.a., 1999). De veldgrootte bedraagt 6 ha.

Experiment	Aanwendings-techniek	Totale emissie in eerste 25 uur (kg $NH_3$ )	Percentage vervluchtigd ammoniumstikstof	Maximale emissie (kg $NH_3$ per half uur)
Exp. 1 (30-31 maart)	bovengronds	30.0	24	3.2
Exp. 2 ( 9-10 april)	injectie	13.1	4	1.8

Gemeten aanwendingsemissies zijn in Tabel 3.2 gegeven. De meetperiode duurde bij het eerste experiment van 09.00 uur tot 10.00 uur de volgende dag, waarbij een serie 2-uurs monsters per meetpunt werd verzameld. Bij het tweede experiment was dit van 09.30-18.00 uur met 4 monsters per meetpunt. Complicerende factoren zijn dat de mesttoediening veel tijd in beslag neemt (van ca. 10.00 tot ca. 13.30 uur bij het eerste experiment) en dat de emissie daarmee

tijd en plaats afhankelijk wordt. Voor gebruik in verspreidingsmodellen is het daarom noodzakelijk het veld in deelbronnen op te splitsen met ieder hun eigen tijdverloop. Meer details over deze aspecten zijn gegeven in Monteny e.a. (1999).

De gemeten aanwendingsemissies zijn aanzienlijk lager dan berekende emissies volgens de mest- en ammoniakmodellen van het LEI, zelfs wanneer van de specifieke mestsamenstelling wordt uitgegaan. Dit is/lijkt in tegenspraak met constatering gedaan in de discussie rondom het zgn. ammoniakgat. Na vergelijking van de gemeten emissies met de gemeten concentraties in het gebied via verspreidingsmodellen in hoofdstuk 4 zal hier nader op in worden gegaan.

### 3.3.2 Langetermijn metingen $\text{NH}_3$ m.b.v. passieve samplers

Door TNO zijn op een 17-tal plaatsen in de periode november 1998 tot en met juli 1999 metingen uitgevoerd met een tijdresolutie van een maand (november-maart) resp. een halve maand (april-juli). Er is daarbij gebruik gemaakt van een passieve monsternametechniek. De meetlocaties liggen verspreid in zowel open terrein als bosomgeving, zie Figuur 3.1. Resultaten staan beschreven in Duyzer en Weststrate (1999). Aan de meetlocaties zijn ruweheidslengten toegekend op basis van omgevingsfactoren. In Tabel 3.3 zijn de kenmerken van de meetlocaties gegeven.



Figuur 3.1 Locaties van de  $\text{NH}_3$  passieve sampler metingen.

*Tabel 3.3 Gegevens van het TNO-passieve sampler meetnet Ede voor de periode november 1998- juli 1999. De coördinaten van de locaties zijn gegeven in het RDM systeem.*

<i>Locatie</i>	<i>Meethoogte</i> (m)	<i>Ruwheidslengte</i> (m)	<i>X-Coördinaat</i> (m)	<i>Y-Coördinaat</i> (m)
A01	2	0.23	175025	453950
A02	2	0.23	175825	453650
A03	3	0.77	176125	453510
A04	2	1.50	176830	453525
A05	3	0.23	175530	454350
A06	2	0.23	175810	454140
A07	2	0.23	176400	454025
A08	2	1.500	176925	453850
A09	2	0.77	175520	454920
A10	2	0.10	175775	454725
A11	2	0.95	176020	454650
A12	2	0.23	176425	454250
A13	2	1.50	175925	455150
A14	2	0.95	176425	454925
A15	2	0.95	176550	454660
A16	2	1.50	176900	454400
A17	2	0.95	176150	454540

### 3.3.3 Doorval depositiemetingen

Door ECN is op maandbasis de doorval depositie gemeten op een vijftal locaties welke op resp. 4, 12, 45, 90 en 180m liggen van de bosrand (Vosseveldse Weg, positie 176115, 454570 zie Figuur 3.2). De meetperiode loopt van februari t/m juli 1999.

### 3.3.4 Dispersieproeven korte termijn met behulp van een SF<sub>6</sub>-tracer

Tijdens de twee meetcampagnes zijn er dispersieproeven uitgevoerd met behulp van SF<sub>6</sub> gas. Dit gas komt van nature niet voor in de atmosfeer en heeft bovendien de eigenschap dat het niet of nauwelijks reageert met andere stoffen, niet wordt opgenomen in regenwater en ook niet via droge depositie verdwijnt. Wanneer dit gas wordt geloosd dan kan men concentraties van dit gas in de omgeving exclusief toewijzen aan de betreffende bron en kan in principe op eenduidige wijze de atmosferische verdunning worden bepaald. Wanneer er voldoende concentratiemetingen worden gedaan (loodrecht op de pluimas, horizontaal en verticaal), dan kunnen er rechtstreeks dispersieparameters  $\sigma_z$  en  $\sigma_y$  worden bepaald (zie Duyzer en Weststrate, 1999). Deze experimenten kunnen in het onderhavige geval ook worden gebruikt om te bepalen of het verspreidingsmodel de atmosferische dispersie in deze omstandigheden en op deze afstand goed simuleert. Wanneer deze resultaten naar de NH<sub>3</sub> toepassingsproeven worden vertaald dan heeft men nog te maken met het feit dat het een puntbron betreft en het ander een oppervlaktebron. Daarnaast moet men bij ammoniak nog rekening houden met droge depositieverliezen tussen bron en receptor. In Tabel 3.4 zijn een aantal gegevens van de meetlocaties aangegeven.

Tabel 3.4 Gegevens van de SF<sub>6</sub> bron en de meetlocaties.

Locatie	Hoogte (m)	Ruwheidslengte (m)	X-Coördinaat (m)	Y-Coördinaat (m)
SF <sub>6</sub> bron	0.5	0.05	176100	454410
1	1	0.10	176180	454480
2	1	0.10	176160	454500
3	1	0.10	176140	454520
4	1	0.10	176120	454540
5	1	0.10	176100	454560
6	1	0.10	176080	454590
7	1	0.60	176010	453760
8	1	0.60	175950	454750
hoogwerker	27	1.00	176230	454630
<i>extra meetlocaties Exp. 2:</i>				
b1	1	0.60	176250	454660
b2	1	0.60	176270	454665
b3	1	0.60	176310	454675
b4	1	0.60	176170	454650
b5	1	0.60	176260	454670

### 3.3.5 Metingen tijdens campagnes

#### 3.3.5.1 NH<sub>3</sub> concentratiemetingen

Tijdens de twee intensieve meetcampagnes zijn door ECN en TNO metingen van NH<sub>3</sub> concentraties uitgevoerd op diverse plaatsen benedenwinds van het te bemesten veld. Continu metende Amanda systemen van ECN werden geplaatst direct langs het veld en ook - met behulp van een hoogwerker - boven het bos. TNO heeft met een aantal zgn. actieve denuders gemeten op een viertal (open) plaatsen in het aanpalende bos. De middelingstijd van deze denuders was 4 uur. Gegevens over de meetlocaties zijn vermeld in Tabel 3.5 en Figuur 3.2.

Tabel 3.5 NH<sub>3</sub> meetlocaties tijdens de aanwendingsproeven. Alleen de locaties die gebruikt zijn in de vergelijking met het OPS-KT model zijn opgenomen.

Locatie	Hoogte (m)	Ruwheids- lengte (m)	X-Coördinaat (m)	Y-Coördinaat (m)	Middelings-tijd (uur)	Methode
ECN-Amanda	1	0.10	176110	454550	0.5	continu denuder
ECN-Amanda op hoogwerker	28	1.00	176230	454630	0.5	continu denuder
TNOcup1	1	0.60	176220	454570	4	actieve denuder
TNOcup2	1	0.60	176220	454690	4	actieve denuder
TNOcup3	1	0.60	176170	454650	4	actieve denuder
TNOcup4	1	0.60	176150	454700	4	actieve denuder

Naast genoemde metingen heeft ECN ook een aantal ballonnen opgelaten boven het bos met daaraan zgn. Willemsbadges vooral met als doel de concentratieafname boven het bos te meten als functie van de afstand tot de bosrand c.q. rand van het bemeste veld. Ook werd tijdens de aanwending van mest met een continu metend mobiel meetsysteem heen en weer gereden over de Vosseveldse Weg (zie Figuur 3.2) om de pluimomvang te bepalen. Gedetailleerde beschrijvingen van de door ECN uitgevoerde metingen zijn te vinden in Erisman e.a. (1999); de TNO metingen zijn beschreven in Duyzer en Weststrate (1999).



*Figuur 3.2 Posities van meetopstellingen gedurende experiment 1 op 30 maart 1999 voor zowel de SF<sub>6</sub> verspreidingsproef als de mestaanwendingsproef. Op posities 1 t/m 8 werd alleen SF<sub>6</sub> gemeten. Een ECN-Amanda voor continue meting van NH<sub>3</sub> concentraties is geplaatst tussen positie 4 en 5 (niet nader aangegeven).*

### 3.3.5.2 Meteorologische waarnemingen

Door TNO zijn tijdens de meetcampagnes metingen uitgevoerd van een aantal meteorologische grootheden met behulp van een sonische anemometer. Deze meter was geplaatst midden op het te bemesten veld. Soortgelijke metingen werden door ECN verricht op de hoogwerker boven het bos. Op een aantal plaatsen zijn ook met cupanemometers metingen verricht: aan de rand van het veld door IMAG t.b.v. de emissiemetingen en op open plekken in het bos door TNO. De meteorologische input voor het OPS model is betrokken van de sonische anemometer in het veld. In feite zijn alleen windrichtings en windsnelheidsgegevens gebruikt, overige gegevens als globale straling, temperatuur, relatieve vochtigheid en neerslag zijn betrokken van het KNMI station Deelen.



## 4. Vergelijking model- en meetresultaten

In dit hoofdstuk worden de ammoniakemissies vertaald naar luchtconcentraties via modellen en deze concentraties worden vervolgens vergeleken met de metingen. Eerst wordt de langetermijn verspreiding onder de loep genomen op basis van de door TNO uitgevoerde metingen met passieve samplers. Dit type vergelijking geeft vooral een beeld van de ruimtelijke verspreiding van ammoniak in een gebied van ca. 2 x 2 km en de mate waarin het ruimtelijk detail door modellen kan worden beschreven. Onder langetermijn verspreiding valt ook de vergelijking met doorvaldepositiemetingen.

De vergelijking met de resultaten van tracergas experimenten geeft vooral een indruk hoe concentraties op korte termijn (1.5 – 2.5 uur) en zeer lokale schaal (200 x 200 m) met modellen kan worden beschreven. Het voordeel van het gebruik van een tracergas is dat met name de bronterm goed kan worden gedefinieerd waarbij gemeten concentraties eenduidig aan die ene bron kunnen worden toegewezen. Een bijkomend voordeel is dat verliesprocessen als depositie en omzetting geen rol spelen.

Tenslotte komt in dit hoofdstuk de simulatie van de aanwendingsproeven aan de orde. Ook dit is een kortetermijn, korte afstand verspreidingsprobleem met het verschil dat droge depositie wel een rol speelt.

### 4.1 Lange termijn verspreiding op lokale schaal

#### 4.1.1 Metingen

De metingen zijn uitgevoerd door TNO op een 17-tal plaatsen in de periode november 1998 tot en met juli 1999 met een tijdsresolutie van een maand (november-maart) resp. een halve maand (april-juli). De meetlocaties liggen verspreid in zowel open terrein als bosomgeving, zie Figuur 3.1 en Tabel 3.3.

#### 4.1.2 Emissies

Om het ruimtelijk detail van de concentraties in het gebied zo goed mogelijk te simuleren is getracht de emissies tot op zo groot mogelijk detail te beschrijven. Daarbij is gebruik gemaakt van de volgende (basis) gegevens:

1. Gemeten emissies van 3 bedrijven (zie IMAG rapport en Tabel 3.1).
2. Vergunde stalemissies in de gemeente Ede (situatie 1995). Dit betreft ca. 600 bedrijven in het gebied van 10 x 10 km met coördinaten 170000, 460000 (linksboven) en 180000, 450000 (rechtsonder).
3. Emissiebestanden op nationale schaal zoals gebruikt bij de Milieubalans 1997. Dit zijn emissies welke oorspronkelijk per gemeente zijn berekend en welke achteraf ruimtelijk worden toegekend aan landbouwgronden met een resolutie van 5 x 5 km resp. 0.5x0.5 km. In deze bestanden wordt onderscheid gemaakt in stal-, weide-, kunstmest- en aanwendingsemissies. Deze emissiebestanden zijn ook gebruikt bij de analyse van het 'NH<sub>3</sub>-gat' (Van Jaarsveld e.a., 2000).

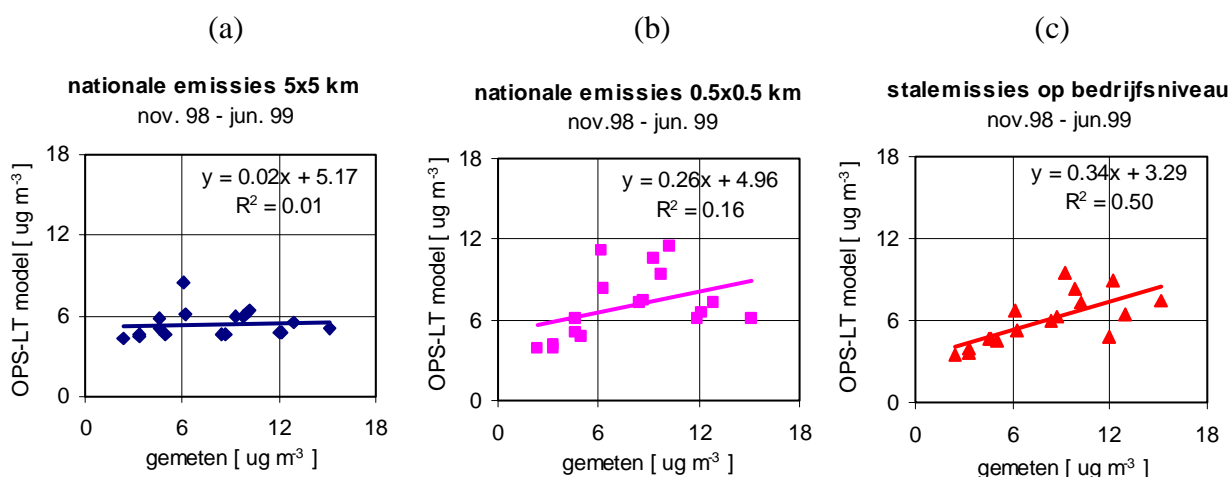
De individuele stalemissies op basis van verleende gunningen zijn gebruikt om een relatieve verdeling van stalemissies te verkrijgen. De som van de stalemissies in het betreffende 10x10 km gebied is gelijk gehouden aan de som van de 'officiële' emissies in het betreffende gebied.

Hoewel dit per bedrijf flinke verschillen met de werkelijkheid kan opleveren, wordt de invloed van de ligging van de stallen t.o.v. de meetpunten in de beoogde toepassing geacht te domineren.

### 4.1.3 Resultaten van het OPS lange-termijn model

De periodegemiddelde concentraties per meetpunt van het TNO passieve sampler meetnet kunnen rechtstreeks worden vergeleken met resultaten van het OPS-lange-termijn model. De betreffende modelversie is recentelijk verbeterd in het kader van de analyse van het 'NH<sub>3</sub>-gat'. De belangrijkste verbeteringen betreffen de omzetting van NH<sub>3</sub> in NH<sub>4</sub><sup>+</sup> welke afhankelijk geworden is van de absolute niveaus van NH<sub>3</sub>, SO<sub>2</sub> en NO<sub>2</sub> concentraties en de geïntroduceerde meteoafhankelijkheid van aanwendingsemissies.

In Figuur 4.1 zijn de resultaten van het OPS-LT model gegeven voor een drietal situaties: a) emissies op basis van de tot nog toe in Nederland gehanteerde 5x5 km emissiebestanden, b) dezelfde emissiebestanden maar nu met een resolutie van 0.5x0.5 km en c) emissiebestanden met een zo hoog mogelijke lokale resolutie, in dit geval zijn dat de gemeten stalemissies in combinatie met stalemissies in een 10 x 10 km gebied en overige emissies lokaal en in de rest van Nederland met een resolutie van 5 x 5 km. In alle drie de gevallen zijn ook de buitenlandse emissies meegenomen.

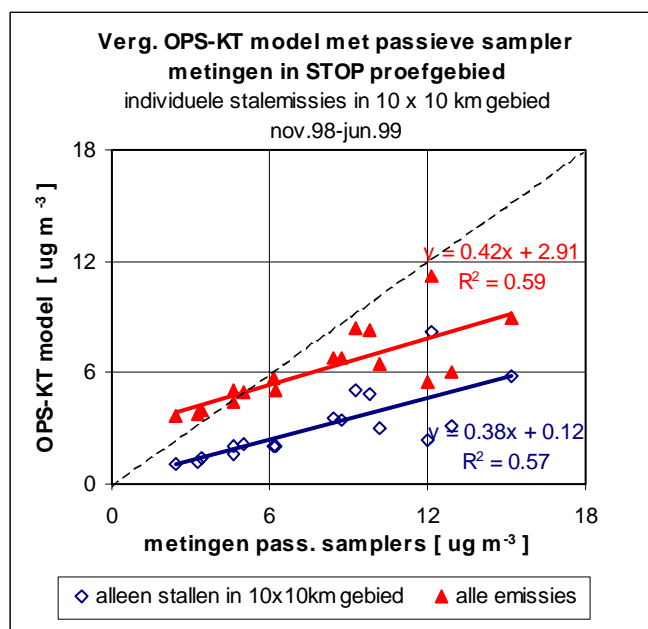


*Figuur 4.1* Vergelijking van het OPS-LT model met resultaten van passieve sampler metingen over de periode november 1998- juli 1999. (a) emissieresolutie 5x5 km, (b) idem, 0.5 x 0.5 km (c) gemeten emissies van 3 lokale stallen aangevuld met individuele stalemissies in een 10 x 10 km gebied en voor de rest van Nederland als onder (a).

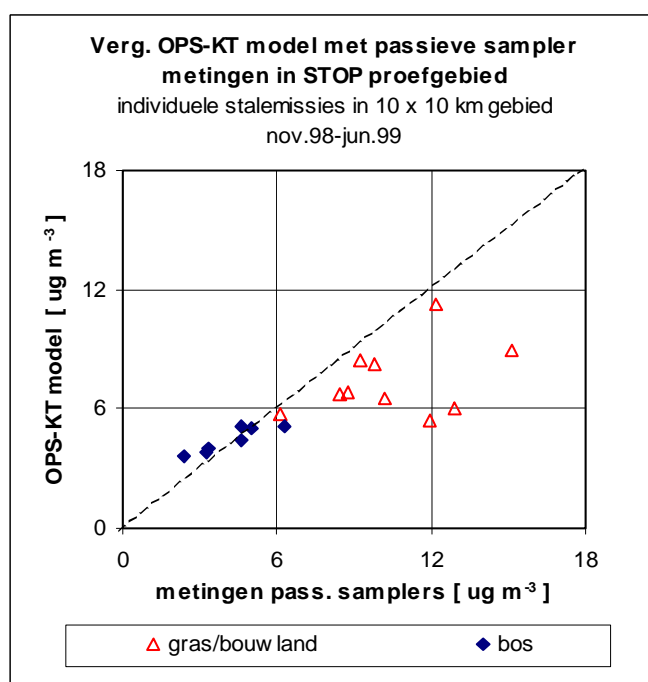
Uit Figuur 4.1 volgt een duidelijke onderschatting van de gemeten concentraties (ca. 30%) in het proefgebied. Dit is conform de gevonden onderschattingen in andere delen van Nederland en daarmee een bevestiging van het 'NH<sub>3</sub>-gat'. Uit de figuur volgt ook duidelijk dat de overeenstemming tussen modelresultaten en metingen afhangt van de ruimtelijke resolutie van de emissies. In het geval dat emissies kunnen worden toegekend aan (individuele) stallocaties, kan het (jaargemiddelde) ruimtelijk beeld binnen een (complex) 2 x 2 km gebied voor ca. 50% worden verklaard. Met nog meer actuele gegevens zou dit nog meer kunnen zijn. De conclusie die hier uit getrokken kan worden is dat modelbeschrijving van ammoniakconcentraties op eco-systeem-niveau potentieel tot de mogelijkheden behoort, mits er voldoende ruimtelijke gegevens beschikbaar zijn.

#### 4.1.4 Resultaten van het OPS korte-termijn model

Zoals eerder is betoogd is het OPS-KT model mede bedoeld om de verbinding tussen het OPS-LT model en kortdurende metingen te kunnen leggen. Bij de beschrijving van lokale concentraties op een tijdschaal van maanden tot jaren zou het verschil tussen de modellen niet groot mogen zijn.



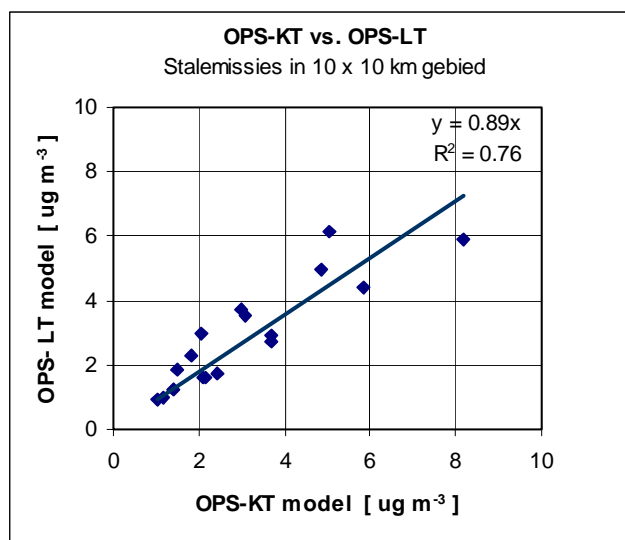
Figuur 4.2 Vergelijking van resultaten van het OPS-KT model met metingen over de periode november 1998 - juli 1999. Emissies gelijk aan die beschreven bij Figuur 4.1c.



Figuur 4.3 Als Figuur 4.2 (totale emissies) maar uitgesplitst naar locatietype.

In Figuur 4.2 worden de resultaten van het OPS-KT model vergeleken met de meetset op een vergelijkbare wijze als in Figuur 4.1c, waarbij onderscheid wordt gemaakt in de bijdrage van stallen in het gebied van 10 x 10 km en de gesommeerde bijdragen van alle bronnen. In feite is het toepassingsgebied van het korte-termijn model beperkt tot een cirkel van ca. 25 km rondom de bron. Alle invloeden buiten het 10 x 10 km gebied zijn daarom met OPS-LT berekend. De som van de aldus berekende lokale en overige bijdragen stemt nog iets beter overeen met de metingen: de verklaarde ruimtelijke variantie is in de orde van 60%. Ondanks deze hoge verklaarde variantie is duidelijk te zien dat de dynamiek in de berekende concentraties lager is dan in de gemeten concentraties. Enerzijds duidt dit er op dat het model de concentraties dichtbij stallen onderschat, want daar worden immers de hoogste concentraties gevonden. Anderzijds zou men kunnen zeggen dat het model de (achtergrond)-concentraties overschat. Deze overschatting betreft dan vooral de meetpunten die in of nabij het bos liggen. In Figuur 4.3 is het onderscheid gemaakt tussen de locatietypen. In feite is het zo dat het model niet geschikt is om concentraties op lage hoogte in bos te berekenen. Het model houdt geen rekening met het verticale concentratieprofiel in het bos, wel boven het bos (depositiefluxen worden immers berekend op basis van concentraties boven het bos).

Figuur 4.4 geeft de onderlinge vergelijking van de modellen voor de stallen in het gekozen 10 x 10 km gebied. Verschillen worden waarschijnlijk het meest veroorzaakt door de manier waarop beide modellen met windrichtingen omgaan. Het OPS-LT model verdeelt de voorkomende windrichtingen over sectoren van 30° terwijl het korte termijn model van actuele uurgemiddelde windrichtingen uitgaat welke in 10° klassen zijn gegeven.



*Figuur 4.4 Vergelijking OPS-KT en OPS-LT model voor de stalemissies in het 10 x 10 km gebied.*

Tabel 4.1 Gegevens van het TNO-passieve sampler meetnet Ede voor de periode nov. 1998-jul. 1999. De berekende ammoniakconcentraties zijn ook vermeld. Concentraties in  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ .

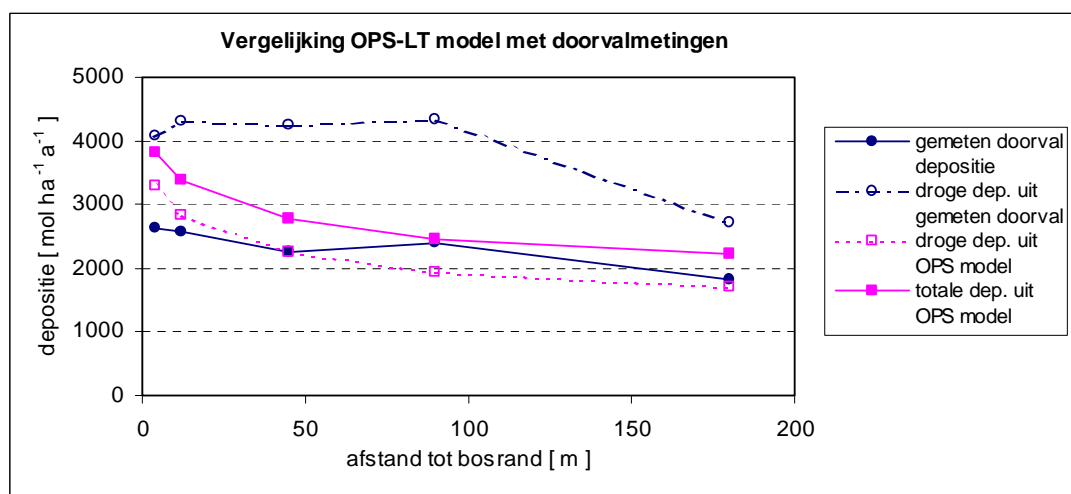
Locatie	Meting	OPS-LT achtergrond <sup>(1)</sup>	OPS-LT stallen in 10x10 km gebied <sup>(2)</sup>	OPS-LT 3 bedrijven	OPS-LT Totaal incl. achtergrond	OPS-KT stallen in 10x10 km gebied <sup>(2)</sup>	OPS-KT 3 bedrijven	OPS-KT Totaal incl. achtergrond
A01	6.1	3.7	3.0	0.23	6.7	2.1	0.17	5.8
A02	9.8	3.4	5.0	0.68	8.4	4.9	0.47	8.3
A03	12.0	3.1	1.7	0.33	4.8	2.4	0.64	5.5
A04	2.4	2.6	0.9	0.16	3.5	1.1	0.21	3.7
A05	10.2	3.5	3.7	1.50	7.2	3.0	1.33	6.5
A06	9.3	3.4	6.2	3.41	9.6	5.1	2.98	8.5
A07	8.4	3.2	2.8	1.48	6.0	3.7	2.24	6.9
A08	3.3	2.6	1.0	0.22	3.6	1.2	0.31	3.8
A09	6.3	3.1	2.3	0.71	5.3	1.8	0.58	4.9
A10	12.9	2.9	3.5	2.02	6.4	3.1	1.94	6.1
A11	15.2	3.1	4.4	3.25	7.5	5.8	4.48	8.9
A12	8.7	3.3	3.0	1.78	6.3	3.7	2.40	6.9
A13	4.7	2.8	1.9	0.46	4.7	1.5	0.40	4.3
A14	4.6	3.0	1.6	0.56	4.6	2.1	0.86	5.1
A15	5.0	2.9	1.6	0.68	4.5	2.1	1.02	5.0
A16	3.4	2.7	1.2	0.37	3.9	1.4	0.46	4.1
A17	12.2	3.1	5.9	4.70	9.0	8.2	6.78	11.3
gem.	7.9	3.1	2.9	1.33	6.0	3.1	1.59	6.2

1 inclusief bijdrage lokale aanwending

2 inclusief bijdrage van de 3 lokale bedrijven

#### 4.1.5 Vergelijking met doorvalmetingen

Voor een directe vergelijkingen van berekende depositie met metingen zijn geen gegevens beschikbaar. Wel zijn op een aantal locaties in het bos doorvalmetingen uitgevoerd. Deze metingen hadden mede tot doel om de depositiegradiënt over het bos vast te stellen. Doorvalmeetresultaten zijn echter niet één op één vergelijkbaar met de totale atmosferische depositie op die locatie omdat er ook opname en/of uitwisseling met het bladerdak plaatsvindt (Draaijers e.a., 1996; Draaijers en Erisman, 1996).



Figuur 4.5 Vergelijking van berekende depositie en depositiegradiënten met resultaten van doorvalmetingen over de periode februari 1999 - juli 1999.

Met behulp van een z.g. canopy exchange model is door ECN uit de doorval afgeleid wat de droge depositie moet zijn geweest (Erisman e.a., 1999). Deze droge depositie is te vergelijken met de door het OPS model berekende droge depositie. Uit de vergelijking van deze resultaten (Figuur 4.5) blijkt dat de berekende droge depositie aanzienlijk (30-50%) lager is dan de 'gemeten' droge depositie, wat qua beeld overeenstemt met de te lage berekende  $\text{NH}_3$  concentraties gevonden uit de vergelijking met de passieve sampler metingen.

De doorval metingen laten een afname zien van de depositie als functie van de afstand tot de bosrand. In dit geval is dat ook ongeveer evenredig met de afstand tot het dichtsbijgelegen bedrijf. De afname van de depositie volgens het OPS model is vergelijkbaar hoewel het OPS model een grotere afname in de eerste 10-20 m aangeeft. De droge depositie die uit de doorvalmetingen wordt berekend m.b.v. het canopy-exchange model is aanzienlijk hoger dan de droge depositie uit het OPS-model.

## 4.2 Korte termijn verspreiding met $\text{SF}_6$ tracer

Het voordeel van het gebruik van een tracergas als  $\text{SF}_6$  is dat gemeten concentraties eenduidig kunnen worden toegewezen aan één bron, mits natuurlijk de emissiesterkte van die bron voldoende hoog is.

### *Metingen*

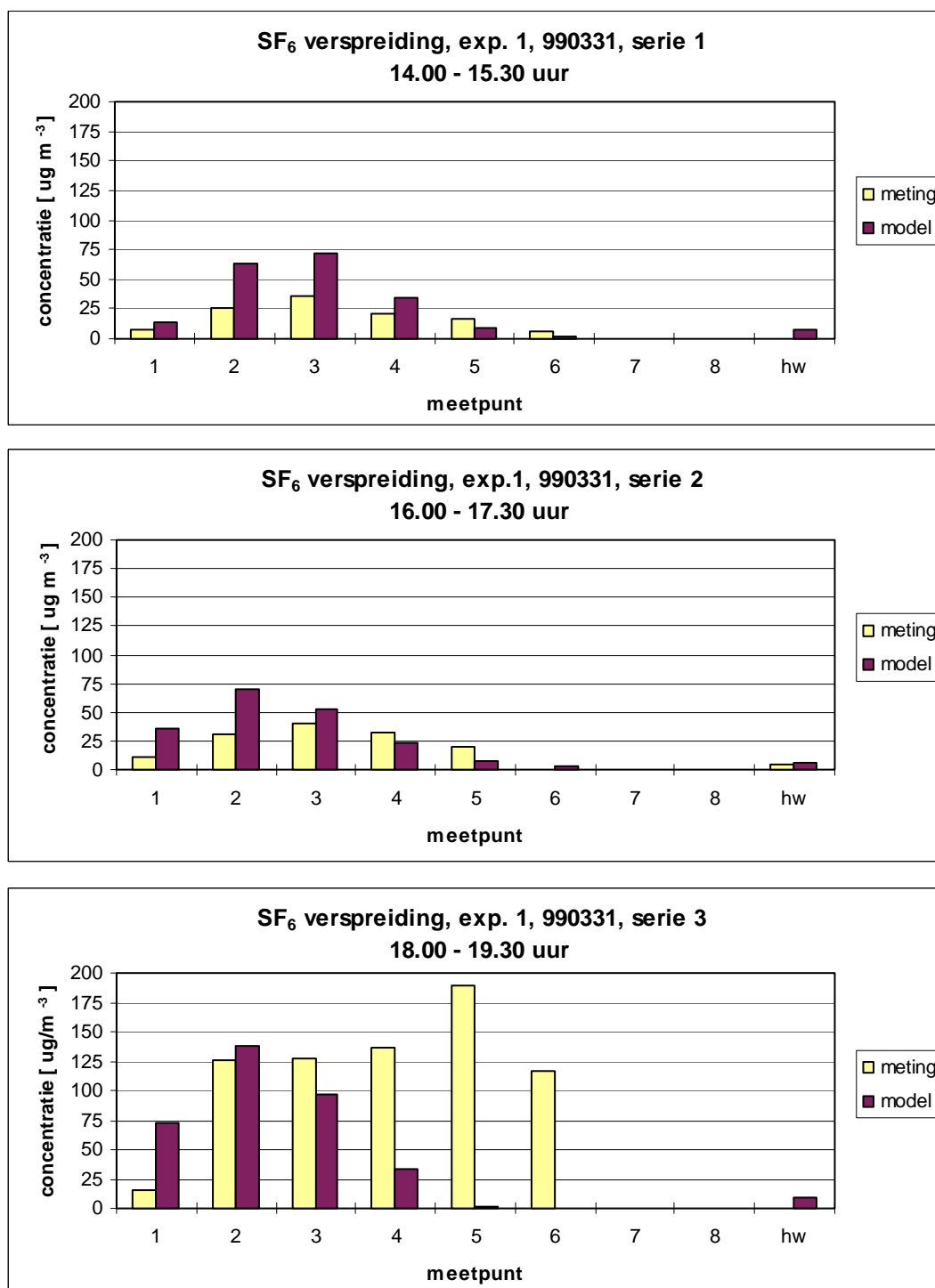
De gekozen lozingslocatie ligt ongeveer midden op het terrein waar de mestaanwending plaats vindt. De concentratiemeetpunten zijn gekozen op de rand van het terrein (Vosseveldse Weg, ca. 200 m van lozingspunt) en een aantal locaties op grotere afstand in het bos. Zie Tabel 3.4 en Figuur 3.2). De middelingstijd in de metingen is anderhalf uur. De vergelijkingen die hier worden beschreven hebben betrekking op beide meetcampagnes. Bij het eerste experiment (31-3-1999) is tussen 13.38 uur en 20.11 uur lokale tijd  $\text{SF}_6$  geloosd op ca. 0.5 m hoogte met een emissiesterkte van 0.15 g/s. Daarbij zijn drietal meetseries uitgevoerd nl. serie 1 tussen 14.00 en 15.30, serie 2 tussen 16.00 en 17.30 en serie 3 tussen 18.00 en 19.30. Bij het tweede experiment (9-4-1999) zijn bij een identieke bronterm twee meetseries uitgevoerd op grotendeels dezelfde meetlocaties. Serie 1 liep hierbij van 13.40 tot 15.40 uur en serie 2 van 15.40 to 18.00 uur.

### *Meteorologische invoergegevens*

De meteorologische invoergegevens voor het OPS-KT model zijn deels betrokken van de lokaal opgestelde sonische anemometer van TNO. Het betreft hier windrichting en windsnelheid. De overige gegevens (globale straling, temperatuur, relatieve vochtigheid) zijn afkomstig van het KNMI station Deelen. Dit betekent dat gekozen is voor de standaard parameterisatie van de wrijvingssnelheid en Obukhov-lengte op basis van de Beljaars en Holtslag (1990) routines en niet voor lokaal gemeten waarden. Deze zijn namelijk in normale situaties ook niet lokaal voorradig.

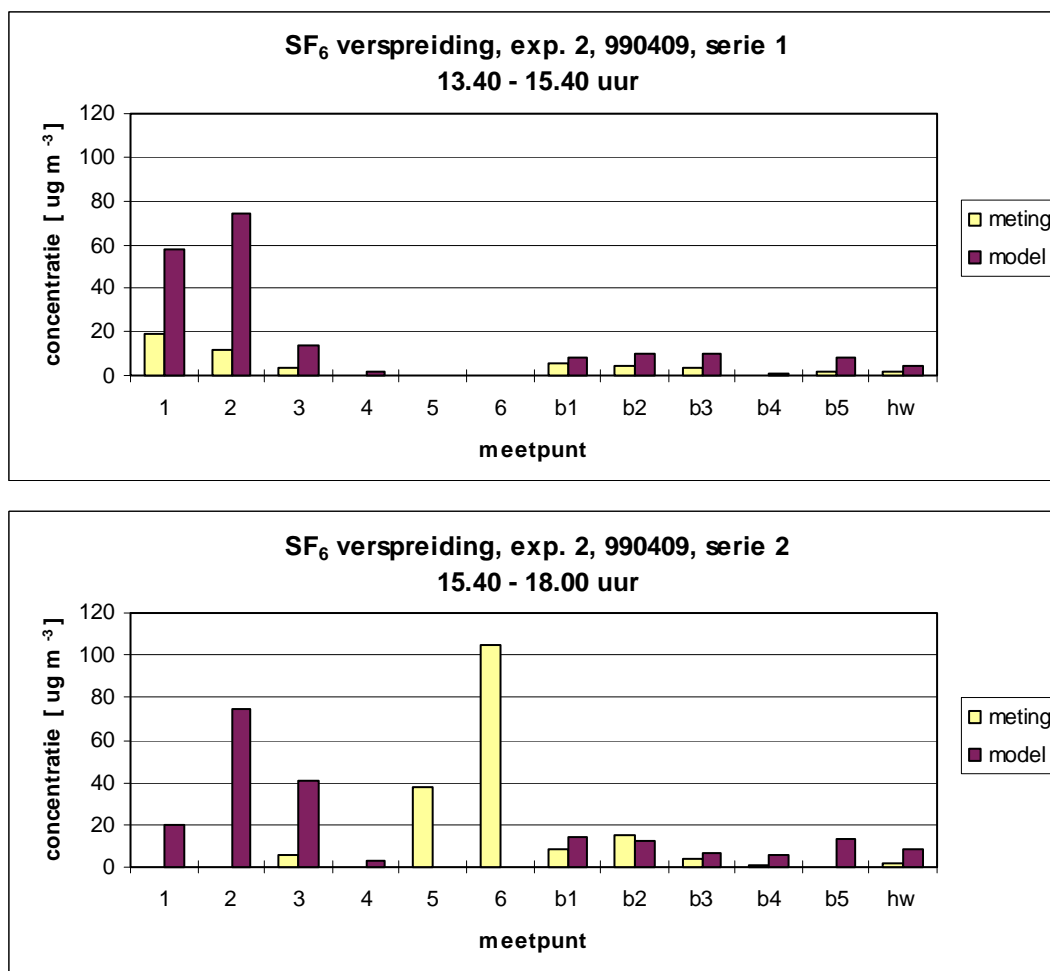
### *De modelberekeningen*

De  $\text{SF}_6$  concentraties zijn berekend op uurbasis omdat dit de kleinste tijdstap van het model is. De horizontale dispersie is gebaseerd op relaties met de wrijvingssnelheid en Obukhov-lengte. Om de modelresultaten te vergelijken met de metingen welke 1.5 uur of langer duren zijn de berekende concentraties tijdgewogen gemiddeld. De vergelijkingsresultaten staan in Figuur 4.6 en 4.7.



*Figuur 4.6* Vergelijking van berekende SF<sub>6</sub> concentraties met metingen, experiment 1, 30 maart 1999.

Opvallend is dat de eerste twee meetseries van experiment 1 goed worden gesimuleerd v.w.b. de positie van de hoogste concentraties en ook wat de horizontale afmetingen van de pluim betreft. Vooral de meetlocaties 1 t/m 6 zijn representatief voor dit gedrag. Dit betekent dat gerekend is met een correcte windrichting en ook dat de horizontale dispersie redelijk overeenstemt. De derde meetserie en ook de eerste meetserie van experiment 2 stemmen iets minder goed qua positie overeen. De gemodelleerde pluim bij de laatste serie van experiment 2 ligt duidelijk naast het gemeten maximum. Het richtingsverschil bedraagt wel 30 graden. In de meetperiode traden echter grote windrichtingsfluctuaties op.



Figuur 4.7 Vergelijking berekende SF<sub>6</sub> concentraties met metingen, experiment 2, 9 april 1999

In absolute zin zijn de berekende concentraties voor de meeste meetseries hoger, ruwweg een factor 2. Dit kan betekenen dat de transportsnelheid in het model voor deze uren te laag is (niet erg waarschijnlijk gezien de lokaal gemeten windsnelheid) of dat de verticale dispersie is onderschat. Als dit laatste het geval is dan zou de berekende concentratie op 28 m hoogte (meetpunt *hw*) relatief laag moeten zijn. Dit wordt niet bevestigd in Figuur 4.6 en 4.7: ook op wat grotere afstand van de SF<sub>6</sub> bron en ook op grotere hoogte geeft het model hogere concentraties. Niet uit te sluiten is dat de bosrand waar de meetpunten 1 t/m 6 zijn geplaatst toch een aanzienlijk effect heeft op de (lokale) verticale dispersie waardoor er aan de voet van de bomen een grotere verdunning ontstaat.

Met nadruk moet hier er op gewezen worden dat het aantal realisaties in de vergelijking model en metingen zeer beperkt is. Om aanwijzingen te vinden voor systematische over of onderschattingen in het model zijn veel meer realisaties nodig. De zogenaamde 'Prairiegrass' dataset (Barad, 1958) is in principe geschikt om het korte afstand, korte termijn verspreidingsgedrag van modellen voor lage bronhoogten te testen. De windrichtingsgevoeligheid is daarbij opgelost door met zogenaamde 'dwarswind-geïntegreerde' concentraties te werken. Het OPS model is in die zin met deze dataset vergeleken waarbij geen belangrijke systematische afwijkingen werden gevonden (Van Jaarsveld, 1995). Tracergasproeven zoals recentelijk uitgevoerd in de Flevopolder (Hofschreuder e. a., 1999) zijn in principe beter geschikt voor modelvalidatie dan de onderhavige metingen in complex terrein vanwege de beter gedefinieerde situatie.

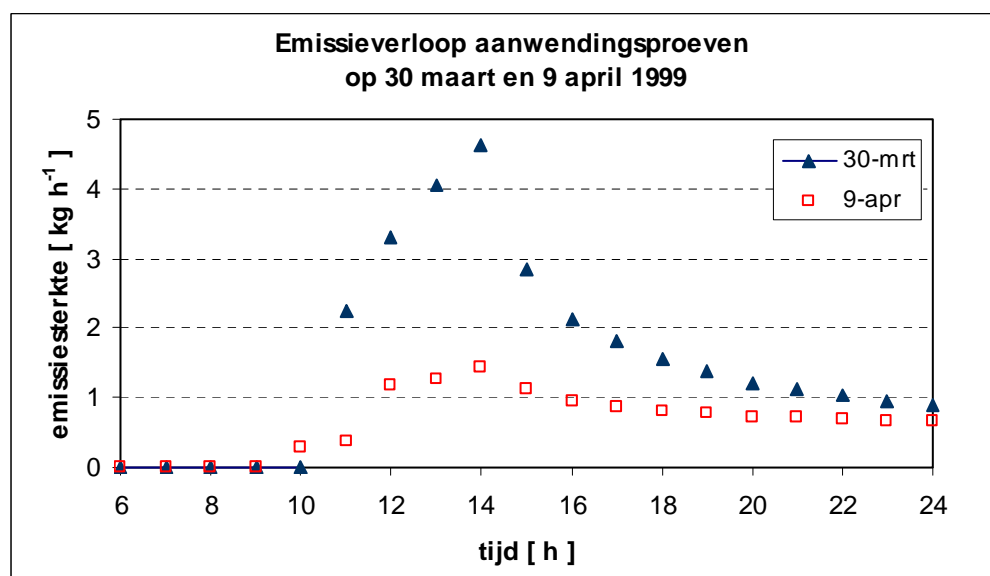


### 4.3 Modelling NH<sub>3</sub> verspreiding na mestaanwending

De meest complexe verspreidings situatie is die na het aanwenden van mest op bouwland. De problemen die zich voordoen zitten vooral in de beschrijving van de bronterm. Ten eerste wordt de mest in etappes op het land gebracht waardoor er een plaats en tijdafhankelijke emissiesnelheid ontstaat. Ten tweede betreft het uitstoot en verspreiding op zeer lage hoogten waarbij sommige meetopstellingen zeer dicht langs het veld staan (10-15m). Ten derde grenst het bemeste veld aan de zijde waar de meetopstellingen staan aan een bosrand waarbij het de vraag is of de meteo-meetopstelling op circa 150 m afstand wel voldoende representatief is. In ieder geval kan nauwelijks van een homogene verspreidings situatie worden gesproken.

#### 4.3.1 Emissies

De emissiemetingen betreffen totaal-veld emissiebepalingen. Experiment 1 betreft het bovengronds uitrijden van mest op 30 maart 1999 tussen 10.00 en ca. 14.00 uur. Tijdens en na het uitrijden is de NH<sub>3</sub> emissie gemeten door het IMAG m.b.v. een zogenaamd fluxraam. Deze metingen zijn gedaan vanaf 30 maart 09.00 uur tot 31 maart 10.00 uur, verdeeld over 6 perioden van 2-2.5 uur waarbij de laatste periode liep van 20.00 uur op 30-maart tot 10.00 uur op 31 maart. Bij experiment 2, op 9 april, werd de mest geïnjecteerd en werd er van 09.30 tot 18.00 uur emissie gemeten in 4 perioden van 2-2.5 uur. Na 18.00 uur waren de weersomstandigheden zodanig (windrichting, windsnelheid, neerslag) dat de metingen moesten worden stopgezet.



Figuur 4.8 Verloop van de emissiesterkte bij de aanwendingsproeven op respectievelijk 30 maart en 9 april 1999 zoals gebruikt bij de verspreidingsberekeningen. De curves zijn gefit aan de emissiemetingen (Monteny e. a., 1999).

Om deze mestaanwendingsproeven in termen van verspreiding te simuleren is het noodzakelijk het veld op te delen in stroken welke moeten overeenkomen met de rijrichting van de mesttank. Iedere strook krijgt dan zijn eigen emissie en emissieverloop. Deze actie is uitgevoerd door het IMAG en resulteert in een emissietabel per half uur per strook voor de dag van aanwending. Aangezien het OPS model werkt met symmetrische oppervlaktebronnen

(rond of vierkant) was het noodzakelijk de betreffende stroken op te delen in 2 tot 5 stukken. Zo is voor beide toepassingsproeven het gebied opgedeeld in 11 vlakken. Het verloop van de emissiesterkte van het totale veld is voor beide experimenten gegeven in Figuur 4.8. Het betreft hier curves welke gefit zijn aan de metingen o.a. om ook de emissie na het beëindigen van de emissiemetingen te kunnen schatten.

Naast de aanwendingsemissies is ook gebruik gemaakt van de (gemeten) emissies van de 3 bedrijven en de eerder omschreven stalemissies in het 10 x 10 km vlak. Verder zijn nog achtergrondconcentraties berekend welke veroorzaakt worden door overige bronnen in binnen en buitenland op basis van bestaande emissiebestanden (zie onder 4.1.2).

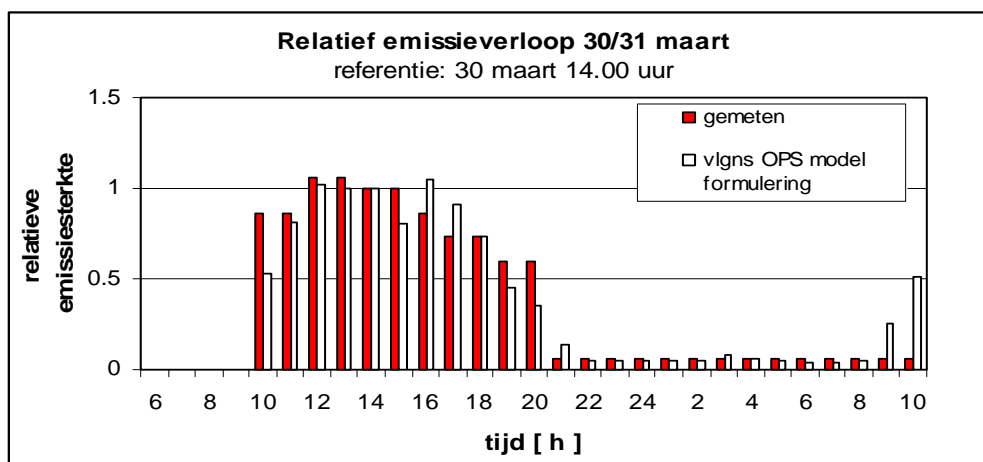
### 4.3.2 Concentratiemetingen

Op diverse plaatsen langs het veld, in het bos en boven het bos zijn metingen uitgevoerd. Voor de vergelijking met de modelresultaten is vooral gebruik gemaakt van de continue denuder metingen omdat deze een hoge tijdsresolutie (0.5-1 uur) hebben. Het betreft hier de ECN metingen direct langs het veld (AMANDA) en die op 28.3 m boven het bos. Daarnaast is gebruik gemaakt van de gegevens van de (4) TNO-cup metingen voor het vergelijken van de berekende ruimtelijke gradiënt. Zie Figuur 3.2 voor de locaties van de meetopstellingen.

### 4.3.3 Vergelijkingsresultaten experiment 1

#### *Meteo-afhankelijkheid van aanwendingsemissies*

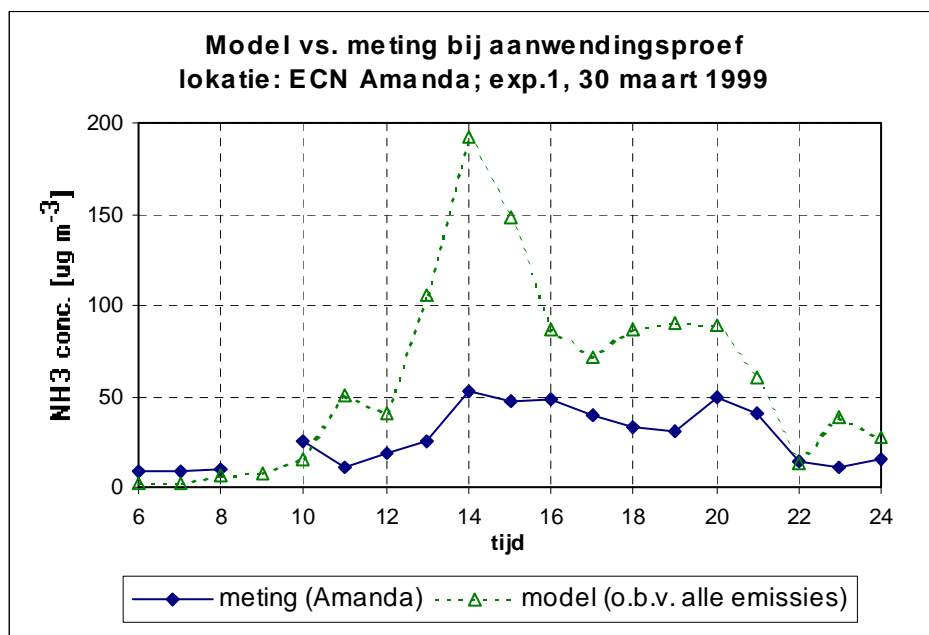
De eerste vergelijking welke gemaakt kan worden is in hoeverre de formulering van de meteo-afhankelijkheid van aanwendingsemissies welke in het nieuwe OPS model is opgenomen (Van Jaarsveld e. a., 2000, zie ook Hoofdstuk 2.), overeenstemt met het gemeten emissieverloop bij de toepassingsproef. Hiertoe is uitgegaan van de gemeten emissies per periode waarbij de laatste periode loopt van 30 maart 20.00 uur tot 31 maart 10.00 uur. Zowel de gemeten emissies als het gemodelleerde emissieverloop zijn relatief bepaald t.o.v. de situatie om 14.00 uur, het moment dat de aanwending voltooid was. In Figuur 4.9 is de vergelijking gegeven. De overeenkomst is opvallend goed. Het model verklaart de lage nachtelijke emissie vooral uit het feit dat de atmosfeer dan zeer stabiel is en er weinig 'ventilatie' optreedt. In de verdere modelvergelijkingen is overigens uitgegaan van het door Monteny e a. gegeven verloop in Figuur 4.8.



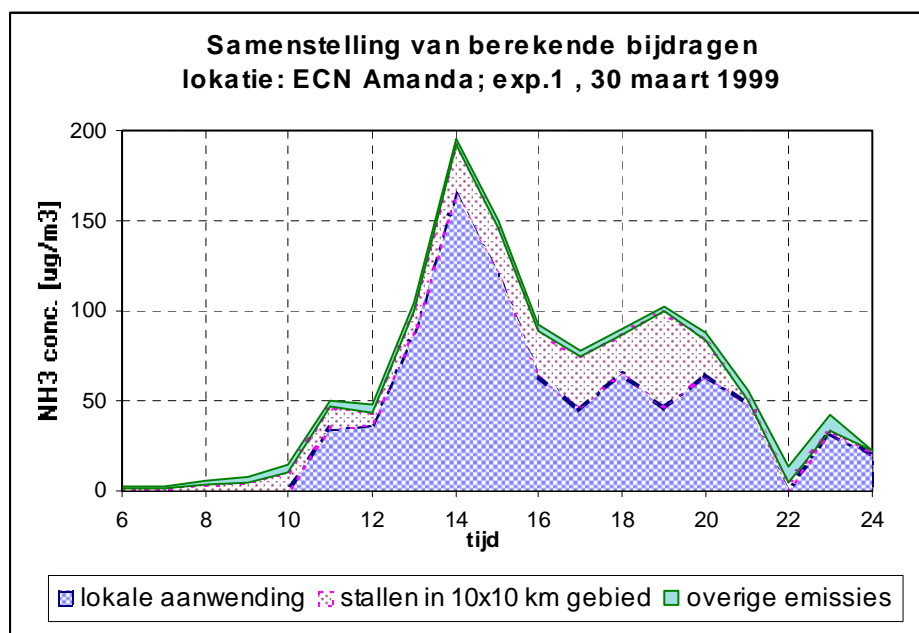
Figuur 4.9 Vergelijking van het relatieve emissieverloop van  $NH_3$  zoals gemeten bij de toepassingsproef en de meteo-afhankelijkheid van aanwendingsemissies zoals geformuleerd in het OPS model.

### Vergelijkingen met gemeten $NH_3$ concentraties

De vergelijkingen zijn gemaakt op uurbasis. Om een juiste vergelijking met de metingen te kunnen maken is naast de berekening van de bijdrage van de lokaal gemeten aanwendingsemisies ook de bijdrage van stallen in het 10x10 km gebied berekend. Daarnaast is de bijdrage van de overige bronnen berekend met het OPS-LT model. Het betreft hier de bijdrage van de overige lokale emissies en de emissies in de rest van Nederland en Europa.



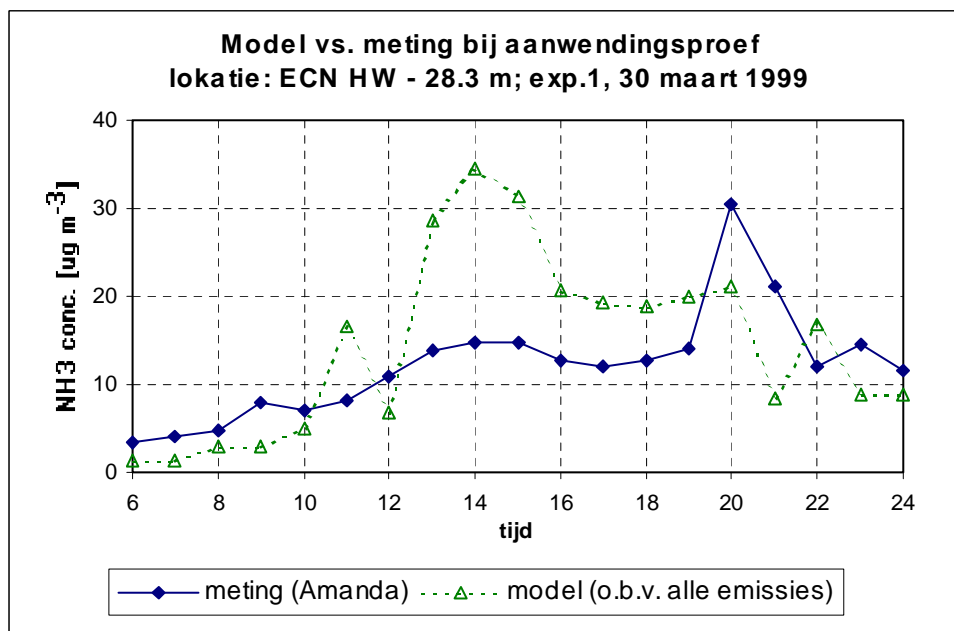
Figuur 4.10 Vergelijking van berekende concentraties met metingen. Locatie van de ECN Amanda is op de Vosseveldse Weg direct langs het veld.



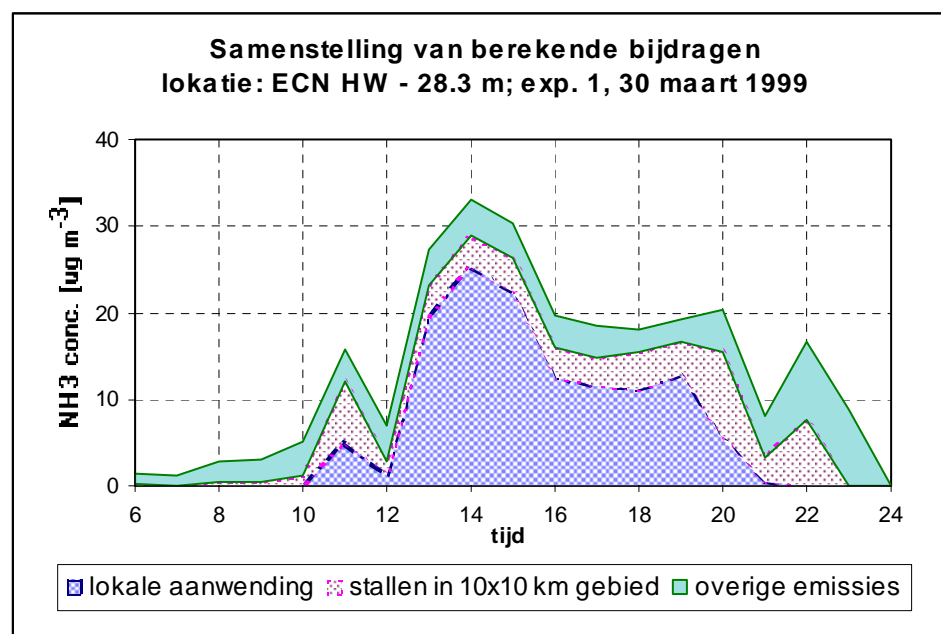
Figuur 4.11 Samenstelling van de berekende concentraties voor de locatie ECN-Amanda.

### Vergelijking met ECN-Amanda

In Figuur 4.10 is de aldus berekende totale ammoniakconcentratie vergeleken met de meting uitgevoerd m.b.v. de ECN Amanda langs de Vosseveldse Weg. Dit is de meest nabijgelegen meetlocatie. In Figuur 4.11 is de samenstelling van de berekende concentratie gegeven.



Figuur 4.12 Vergelijking van berekende concentraties met metingen voor de locatie ECN hoogwerker - 28.3 m.



Figuur 4.13 Samenstelling van de berekende concentraties voor de locatie ECN-hoogwerker-28.3 m.

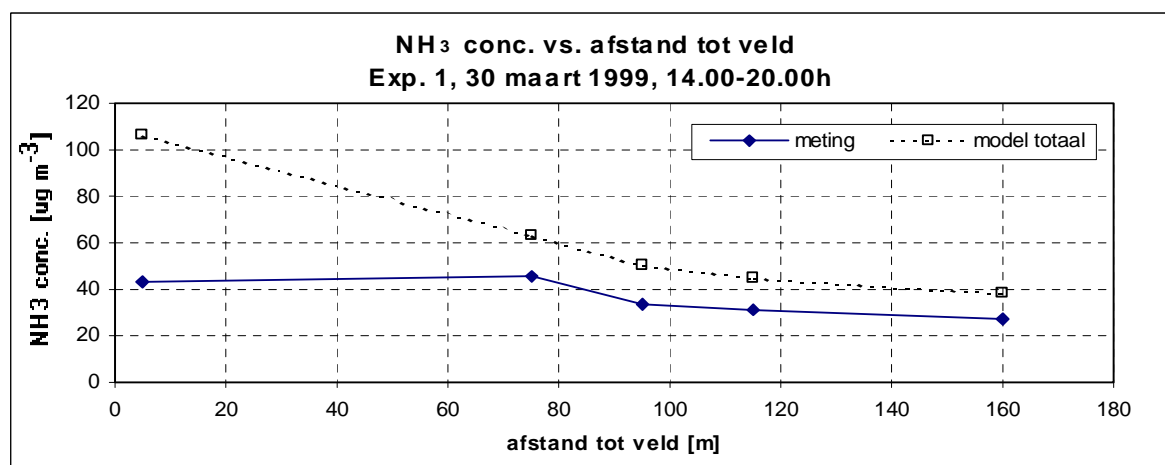
Het gemeten concentratieverloop wordt op 30 maart redelijk tot goed gevolgd in de berekeningen. De berekende concentraties zijn echter wel aanzienlijk hoger, met name overdag. Uit Figuur 4.11 blijkt dat het vooral de lokale aanwendingsemissies zijn die de te hoog berekende concentraties veroorzaken. Een redelijke overeenstemming tussen metingen en berekeningen overdag wordt bereikt als de aanwendingsemissies circa een factor 2 lager worden genomen (model/meting van 2.4 naar 1.4,  $R^2$  van 0.66 naar 0.69). Anderzijds kan het ook zo zijn dat het model de invloed van de aanwendingsemissie overschat. Het gaat hier immers om verspreiding op zeer korte afstand en zeer lage hoogte. De resultaten van de tegelijkertijd uitgevoerde tracergas proeven wijzen in deze richting.

#### *Vergelijking met concentraties boven het bos (ECN AMANDA op hoogwerker - 28.3 m)*

Eenzelfde vergelijking als boven is gemaakt voor het meetpunt op 28.3 m boven het bos (coördinaten in Tabel 3.4). Dit meetpunt ligt op ongeveer 140 m van de rand van het veld. Uit Figuur 4.12 en 4.13 blijkt dat de berekende bijdrage van de aanwendingsemissie in de nacht nihil is. In de meting wordt wel een piek gezien om 20.00 uur. Het is niet duidelijk uit deze en andere metingen of deze verhoging te maken heeft met de aanwendingsproef of niet. Ook voor dit meetpunt blijkt dat de berekende concentraties overdag hoger zijn dan de metingen, maar minder nadrukkelijk dan dichtbij het veld. Een verlaging van de aanwendingsemissies met een factor 2 zou ook hier tot een betere overeenstemming leiden (model/meting van 1.1 naar 0.9;  $R^2$  van 0.24 naar 0.36).

#### *Vergelijking met gemeten ruimtelijke gradiënt*

In Figuur 4.14 zijn de gemeten en berekende concentraties uitgezet als functie van de afstand tot de rand van het veld. De gemeten concentraties zijn die van de ECN Amanda aan de rand van het veld en 4 meetpunten van TNO (actieve denuders met 2-uur middeling) welke verder weg in het bos liggen, zie Figuur 3.2. De berekende gradiënt is groter dan die in de metingen, vooral de zeer dichtbij gelegen concentraties zijn hoger in de berekeningen. Ook hier geldt dat een lagere aanwendingsemissie tot betere overeenstemming met de metingen leidt.

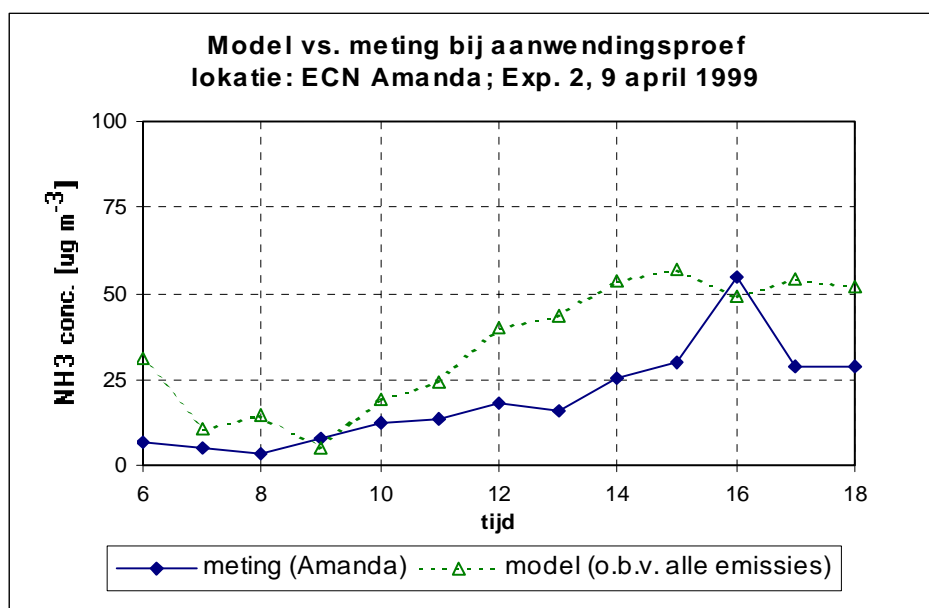


Figuur 4.14 Vergelijking van berekende en gemeten concentraties als functie van de afstand tot het veld.

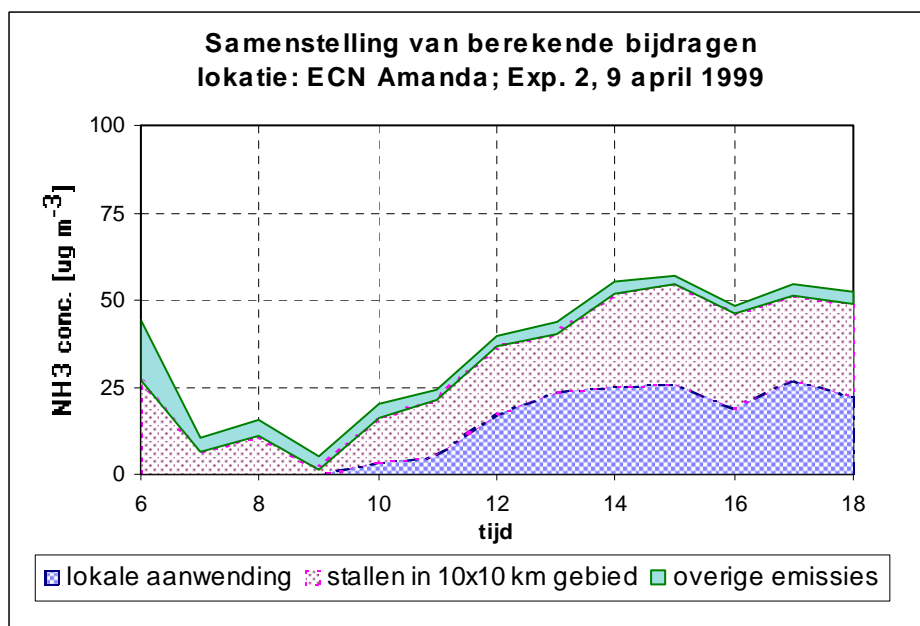
### 4.3.4 Vergelijkingsresultaten experiment 2

In de Figuren 4.15 t/m 4.18 zijn op dezelfde wijze als bij het eerste experiment de berekende concentraties afgezet tegen de metingen. De conclusies die uit deze vergelijkingen kunnen worden getrokken zijn ten dele dezelfde als voor het eerste experiment: ook hier is er een

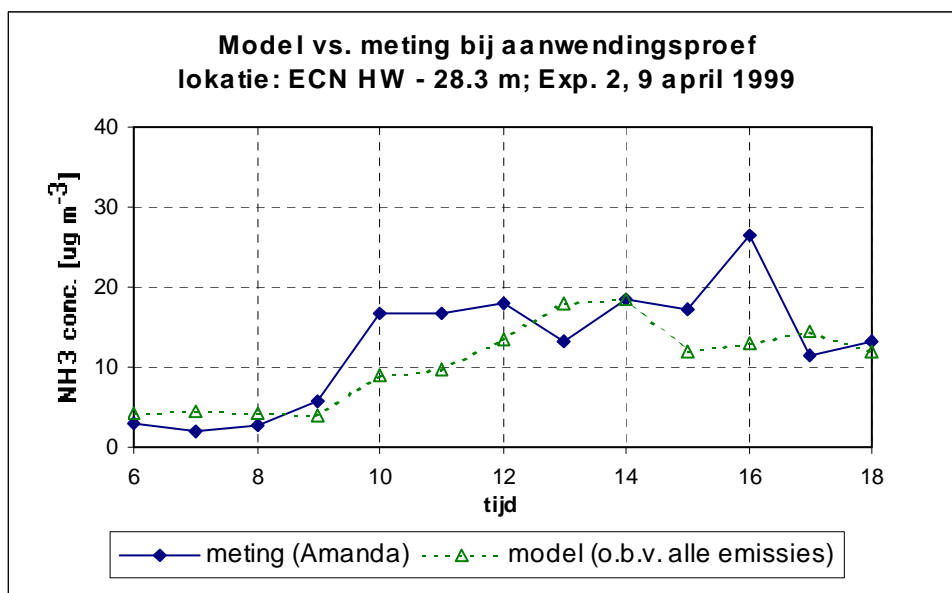
redelijke correlatie tussen het gemeten en het berekende concentratieverloop, ook hier geeft het model aanzienlijk hogere concentraties op het meest nabijgelegen meetpunt (Figuur 4.15) (model/meting = 1.5). De concentratie boven het bos (Figuur 4.17) wordt daarentegen niet overschat (model/meting = 0.75). Uit Figuur 4.16 blijkt dat de lokale aanwendingsemisies en de overige emissies ongeveer in gelijke mate de concentratie bepalen op het dichtstbijzijnde meetpunt. Er kan dus, in tegenstelling tot experiment 1, niet zonder meer gezegd worden dat de aanwendingsemisie, of de behandeling daarvan in het OPS model, verantwoordelijk is voor de overschatting.



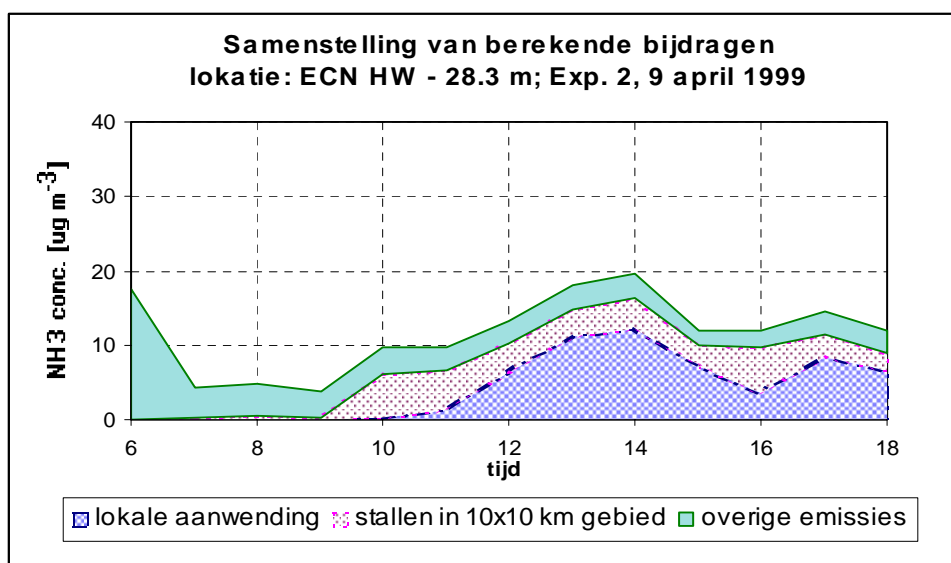
*Figuur 4.15* Vergelijking van berekende concentraties met metingen voor de locatie ECN-Amanda. Experiment 2, 9 april 1999.



*Figuur 4.16* Samenstelling van de berekende concentraties voor de locatie ECN-Amanda. Experiment 2, 9 april 1999.



Figuur 4.17 Vergelijking van berekende concentraties met metingen voor de locatie ECN-hoogwerker –28.3 m. Experiment 2, 9 april 1999.



Figuur 4.18 Samenstelling van de berekende concentraties voor de locatie ECN-hoogwerker-28.3m. Experiment 2, 9 april 1999.

### 4.3.5 Discussie

Van de twee uitgevoerde aanwendingsexperimenten levert de eerste voor wat betreft de berekening van de verspreiding de meeste informatie omdat de emissie vanuit het proefveld het hoogst is en er dus een beter onderscheid gemaakt kan worden tussen de invloed van deze emissie en de invloed van de overige emissies (lokale stallen en overige NH<sub>3</sub> emissies in binnen en buitenland).

- Uit dit experiment komt naar voren dat het model de concentraties op zeer korte afstand van de bron (het proefveld) overschat (tot ongeveer een factor 3). Op een afstand van ongeveer 140 m verder en op een hoogte van 28 m is de overschatting maximaal een

factor 2. De resultaten van het tweede experiment zijn in deze minder duidelijk maar zijn zeker niet in tegenspraak met die van het eerste experiment.

- Uit de resultaten van gelijktijdig uitgevoerde tracergas experimenten komt naar voren dat het OPS model de concentraties in de betreffende uren overschat. De overschatting lijkt dus eerder in het OPS model te zitten (of in gemeenschappelijke invoergegevens zoals windsnelheid en terreineigenschappen) dan in de gemeten aanwendingsemisies.
- Uit een separaat tracergas experiment wordt door Hofschreuder e.a. (1999) geconcludeerd dat een model, met dezelfde parametrisatie voor verticale verspreiding als gebruikt in het OPS model, voor neutrale en onstabiele omstandigheden een systematische onderschatting geeft van concentraties op lage hoogten (gemiddeld een factor 2).
- Van een algemene overschatting van concentraties op korte afstand van bronnen is geen sprake wanneer gelet wordt op de uitkomsten van de vergelijking met de passieve sampler metingen (9-maands gemiddelden). Daar lijkt eerder het tegengestelde het geval.

### **De kernvraag is, welke algemene conclusies er aan deze op het oog tegenstrijdige resultaten kunnen worden verbonden met betrekking tot het verspreidingsmodel.**

Het zwakke punt in de veralgemenisering van de resultaten van de aanwendings- en tracergas proeven is dat er in feite slechts in een beperkt aantal klimatologische omstandigheden verspreidingsproeven zijn gedaan. In feite zijn klimatologisch gezien beide aanwendingsproeven niet erg verschillend: dezelfde windrichtingssector, een ongeveer gelijk windsnelheids- en temperatuursregiem. Over omstandigheden als hoge of lage windsnelheid, andere atmosferische stabiliteitstoestanden is op basis van deze proeven geen uitsluitel te krijgen.

Aan de andere kant kan men zich ook afvragen welke resultaten met hedendaagse korte-termijn modellen haalbaar zijn. Het is bekend uit validatie-experimenten dat zelfs de meest geavanceerde korte-afstand, korte-termijn modellen niet in staat zijn concentraties tengevolge van een solitaire (punt)bron voor een bepaald uur en een bepaalde locatie binnen een beperkte marge te berekenen (b.v. Hanna en Chang, 1995; Rizza e.a., 1996). In het gunstigste geval kan zo'n model voor een bepaalde locatie wel de dynamiek van de optredende uurlijkse concentraties over een langere periode beschrijven. Ook in het onderhavige geval is dit waarschijnlijk het geval. Uit de vergelijking met de 'Prairie Grass' gegevens blijkt dat het OPS model deze gegevens goed kan reproduceren, er is noch een belangrijke systematische afwijking als functie van de bron-receptorafstand, noch een systematische afwijking als functie van de atmosferische stabiliteit (zie Figuur 2.6). Er is echter wel een behoorlijke spreiding in de uurlijkse resultaten: 105, 10 en 27 % voor respectievelijk stabiele, neutrale en instabiele omstandigheden. In deze zin moeten de resultaten van de hier gepresenteerde vergelijkingen ook geïnterpreteerd worden: een factor 2 à 3 afwijking in afzonderlijke uurwaarden is wel degelijk mogelijk voor een model dat gemiddelden goed beschrijft. Een factor 2 à 3 is voor kortdurende perioden wellicht nog als goed te omschrijven wanneer in aanmerking wordt genomen dat het verspreiding betreft vanuit een veld met een variabele emissie in een complexe omgeving (bouwland, bos) waarin ook de (ruimtelijke) representativiteit van waarnemingen ter discussie staat.

## **4.4 Lokale bijdrage versus achtergrond**

Met als achtergrond de vraag in hoeverre met lokale maatregelen lokale depositieniveaus kunnen worden teruggedrongen is voor het onderzoeksgebied nagegaan welke emissiebronnen



de depositie bepalen. Als receptorgebied is het bosgebied gekozen dat direct grenst aan de Vosseveldse Weg. Dit gebied is ca. 7 ha groot. De bijdragen van bronnen aan de totale depositie is berekend voor een aantal situaties van toenemende gebiedsgrootte te beginnen met de bijdrage van de dichtstbijzijnde stal tot aan een gebied van 100 x 100 km met het betreffende bosgebied in het midden. De berekeningen zijn gedaan voor de periode februari 1999- juli 1999 op basis van lokaal gemeten emissies en nationale emissiebestanden voor het jaar 1997.

De resultaten van de berekeningen in Tabel 4.2 geven aan dat de lokale bijdrage aan het bosgebied relatief beperkt zijn. De 3 stallen waarvoor in het kader van dit project emissiemetingen zijn gedaan dragen samen voor 22.5 % bij aan de depositie. Ook voor een gebied van totaal 2 x 2 km is dit nog slechts 26.9 %. Natuurlijk hangen deze cijfers samen met de toevallige bronnenconfiguratie in het gebied maar het geeft toch een duidelijke indicatie van de invloed van lokale bronnen. De invloed van lokale bronnen is overigens groter aan de rand van het bos dan over het bos gemiddeld. De dichtstbijzijnde stal levert in deze situatie 914 mol ha<sup>-1</sup> jr<sup>-1</sup> op een totaal van 3410 (26.8%).

De gegevens in Tabel 4.2 geven ook een indicatie welk gebied er emissievrij gemaakt zou moeten worden om een bepaald kritisch depositieniveau niet te overschrijden. Wanneer dit kritische niveau 1000 mol ha<sup>-1</sup> j<sup>-1</sup> NH<sub>x</sub> zou zijn dan zou de depositie met 1655 mol ha<sup>-1</sup> jr<sup>-1</sup> omlaag moeten. Daar zou een emissievrij gebied van minstens 30 x 30 km voor nodig zijn. Bij toetsing aan een kritisch niveau van N depositie moet natuurlijk ook rekening worden gehouden met NO<sub>y</sub> depositie (ca. 800 mol ha<sup>-1</sup> jr<sup>-1</sup> in het betreffende gebied). Duidelijk is dat in dit geval met lokale maatregelen alleen er geen grote dalingen gerealiseerd kunnen worden. Anderzijds kan men ook zeggen dat in een situatie waarbij een of meer stallen dichtbij een natuurterrein liggen er relatief grote reducties kunnen worden bereikt. Met enige voorzichtigheid kan gesteld worden dat het bereik van lokale maatregelen bij de huidige niveaus van NH<sub>x</sub> depositie zo'n 10-30% is.

*Tabel 4.2 Bijdrage van stallen en brongebieden aan de gemiddelde NH<sub>x</sub> depositie op de boslocatie aan de Vosseveldse Weg.*

	<i>depositie bijdrage</i>	<i>procentuele bijdrage</i>
	mol ha <sup>-1</sup> jr <sup>-1</sup>	
dichtstbijzijnde stal	295	11.1
3 dichtstbijzijnde stallen	597	22.5
alle bronnen in gebied 2 x 2 km	715	26.9
alle bronnen in gebied 5 x 5 km	824	31.0
alle bronnen in gebied 10 x 10 km	1103	41.5
alle bronnen in gebied 30 x 30 km	1558	58.7
alle bronnen in gebied 100 x 100 km	2004	75.5
alle bronnen in binnen en buitenland	2655	100

## 5. Conclusies en aanbevelingen

Het doel van het huidige onderzoeksprogramma (STOP II) was het valideren en verbeteren van emissie - concentratie - depositie modellen op lokale schaal. Daartoe zijn in een proefgebied een tweetal kortdurende veldexperimenten opgezet waarin emissies , concentraties en deposities zijn gemeten. Daarnaast is er gedurende een aantal maanden de emissie van een drietal bedrijven gemeten en is gedurende een periode van 9 maanden de ammoniak concentratie gemeten op een 17-tal locaties in het gekozen proefgebied.

Teneinde een verbinding te kunnen leggen tussen kortdurende meetexperimenten en het bestaande lange-termijn OPS model werd een korte-termijn versie (OPS-KT) van dit model gemaakt. Tevens werd een zogenaamd K-model (verder) ontwikkeld met als doel zeer lokale verspreiding en depositie van NH<sub>3</sub> vanuit lage bronnen te bestuderen maar ook om een referentie te hebben voor onderdelen van het OPS-KT model.

In dit rapport is getracht de verbinding aan te brengen tussen (gemeten) ammoniakemissies en gemeten ammoniakconcentraties in de buitenlucht met behulp van bestaande en ontwikkelde modellen. Uit het geheel kunnen de volgende conclusies worden getrokken:

### *Verspreiding van NH<sub>3</sub> in het algemeen*

- Concentraties NH<sub>3</sub> veroorzaakt door lage bronnen worden sterk beïnvloed door het lokale droge depositieproces. Op een afstand van 150 m van de bron kan de concentratie op grondniveau – afhankelijk van de weersomstandigheden - al met 30 tot 50 % afnemen. Bij de interpretatie van open-veld emissiemetingen dient men hier rekening mee te houden.
- Verspreidingscondities onder stabiele omstandigheden zijn het meest ongunstig. Onder deze omstandigheden zijn de hoogste concentraties te verwachten. Het effect wordt bij het uitrijden van mest ten dele gecompenseerd doordat de emissieflux in deze omstandigheden relatief laag is.
- Door droge depositie ontstaan verticale concentratiegradiënten. Het is daarom van belang de meethoogte bij concentratiemetingen maar ook bij modelberekeningen goed te definiëren.

### *Het OPS model vergeleken met een K-model , het 'Prairie Grass' experiment en tracergas experimenten*

- Berekende dwarswindgeïntegreerde concentraties volgens de methodiek in het OPS-model blijven voor NH<sub>3</sub> binnen 15 % van de resultaten van het K-model (bron-receptorafstand: 150-750 m; bronhoogte: 0.75-5 m)
- Vergelijking van het OPS-model met resultaten van het 'Prairie Grass' experiment (ook op basis van dwarswindgeïntegreerde concentraties) laat voor de verschillende atmosferische omstandigheden en verschillende bron-receptorafstanden geen belangrijke systematische verschillen zien. De toevallige afwijkingen op uurbasis bedragen voor stabiele omstandigheden 105% (N=29), neutraal 10% (N=24) en instabiel 27% (N=81)
- Uit de twee in STOP kader uitgevoerde tracergas experimenten blijkt dat het OPS-KT model de gemeten pluimmaxima binnen een factor 2 benadert (totaal 5 meetseries, 2-2.5 uursgemiddelden).
- Uit een vergelijking van een model - met daarin de OPS verticale verspreidingsmethodiek - en tracergas proeven in de Flevopolder uitgevoerd door de Landbouwuniversiteit Wageningen blijkt een onderschatting van een factor 2 voor concentraties op lage hoogte.

Deze resultaten lijken in tegenspraak met de overige vergelijkingsresultaten. Het verdient aanbeveling deze exercitie ook met het OPS-KT model nog eens uit te voeren.

#### *De simulatie van de mestaanwendingsexperimenten*

- Het OPS-KT model geeft het tijdsverloop van de ammoniakconcentraties in zijn algemeenheid redelijk weer.
- Het model berekent bij beide experimenten te hoge NH<sub>3</sub> concentraties bij de overgang veld-bos veld (factor 2 a 3). Op een meetpunt boven het aanpalende bos is de overschatting in beide gevallen minder groot. Dit beeld is grotendeels in overeenstemming met de simulatieresultaten van de gelijktijdig uitgevoerde SF<sub>6</sub> tracergas experimenten, waardoor het niet aannemelijk is dat de (gemeten) aanwendingsemissies de oorzaak zijn van de overschatting.
- Het bosrandeffect kon in de gehanteerde modelbenadering niet worden meegenomen, maar speelt mogelijk een belangrijke rol.
- Het aantal uitgevoerde veldexperimenten is te klein om bevestiging te vinden voor systematische over- of onderschattingen van modellen op deze tijd- en afstandsschaal.
- De in het OPS-model gehanteerde formulering voor de meteo-afhankelijkheid van aanwendingsemissies stemt goed overeen met het gemeten emissieverloop.

#### *Ruimtelijke verdeling van ammoniak concentraties- en deposities*

- De lange-termijn ruimtelijke verdeling van ammoniakconcentraties binnen een gebied van 2x2 km blijkt met het recentelijk verbeterde OPS model goed te beschrijven. Nadrukkelijke voorwaarde is wel dat wordt uitgegaan van emissies op bedrijfsniveau.
- Of op dezelfde ruimtelijke schaal ook de droge depositie goed kan worden beschreven is op basis van het onderzoeksmateriaal niet te zeggen. Dit vereist meer onderzoek van typische depositiesnelheden voor ecosystemen en landbouwgronden.
- Het bereik van lokale maatregelen (schaal 2 x 2 km) in termen van reductie van depositie is in het gekozen proefgebied maximaal ongeveer 30%.
- Op basis van het huidige modelinstrumentarium kan bedrijfsvestigings- en bedrijfsverplaatsingsbeleid redelijk tot goed worden ondersteund. Voorwaarde is wel dat informatie over emissiesterken van bronnen op hoog ruimtelijk detailniveau beschikbaar is.

## **Dankwoord**

Het hier beschreven onderzoek is mede tot stand gekomen door de inzet van velen. Allereerst willen wij de STOP begeleidingscommissie bedanken voor de sturing tijdens de uitvoering. Deze commissie bestond uit Jep Karres (LNV, directie Natuurbeheer, voorzitter), Stan Smeulders (VROM, directie Lucht en Energie, secretaris), Arthur Eijs en Germt de Vries (VROM), Marc de Bode (LNV, directie Landbouw), Chris Venderbos en Kees van Laarhoven (provincie Noord-Brabant), Leny Lekkerkerk (IKC-L), Henk Beije (IKC-N), Sjef van der Lubbe (LNV, directie Noord) en Evelien Steenland (LNV, directie Oost). De veld experimenten in de Driesprong zouden niet mogelijk zijn geweest zonder de medewerking van de ondernemers in het gebied. Voor de ondersteuning bij de uitvoering van de experimenten en het beschikbaar stellen van gegevens zijn wij G. Butz en A. van der Ende van de gemeente Ede zeer erkentelijk. Tenslotte zeggen wij dank aan Hub Diederens (RIVM-LLO) voor het kritisch doorlezen van het rapport.

## Literatuur

- Asman, W.A.H. en Jaarsveld, J.A. van (1992) A variable resolution statistical transport model applied for  $\text{NH}_x$  in Europe. *Atmospheric Environment* **26A**, 445-464.
- Barad, M.L. (Ed.) (1958) *Project Prairie Grass, A Field program in Diffusion*, vol. 1., Geophysics Research Paper no. 59, Geophysics Research Directorate, Air Force Cambridge Research Center.
- Beljaars A.C.M. and Holtslag A.A.M. (1990) A software library for the calculation of surface fluxes over land and sea. *Environ. Software* **5**, 60-68.
- Brost, R. en Wyngaard, J.C. (1978) A model study of stably-stratified planetary boundary layer. *J. Atmos. Sci.* **35**, 1427-1440.
- Businger, J.A. (1973) Turbulent transfer in the atmospheric surface layer. In: Haugen D.A., editor. Workshop on Micrometeorology. AMS, Boston MA., 67-100
- Draaijers, G.P.J and Erisman, J.W. (1996) A canopy budget model to assess atmospheric deposition from throughfall measurements. *Water, Air and Soil Pollut.*, **85**, 2253-2258.
- Draaijers, G.P.J., Erisman, J.W., Spranger, T., and Wyers, G.P. (1996) The application of throughfall measurements for atmospheric deposition monitoring. *Atmospheric Environment* **30**, 3349-3361.
- Duyzer, J.H., Weststrate, J.H., Erisman J.W., Bleeker, A. en Jaarsveld J.A. van (1998) Karakterisering van regionale concentratievelden van ammoniak 2<sup>e</sup> fase: Overzicht. TNO-MEP rapport R98/004, TNO, Apeldoorn.
- Duyzer, J.H. en Weststrate, J.H. (1999) Emissie en verspreiding van ammoniak in de Driesprong. De Bijdrage van TNO-MEP aan het STOP-project. TNO-MEP rapport R99/448, TNO, Apeldoorn.
- Golder D. (1972) Relations among stability parameters in the surface layer. *Boundary-Layer Met.* **3**, 46-58.
- Erbrink J.J (1995) Turbulent diffusion from tall stacks; The use of advanced boundary-layer meteorological parameters in the Gaussian model 'STACKS'. Proefschrift, Vrije Universiteit van Amsterdam.
- Erisman, J.W., Bobbink, R., Eerden L.J. van der (1996) Nitrogen pollution on the local and regional scale: the present state of knowledge and research needs. RIVM reportnr. 722108010, RIVM, Bilthoven, The Netherlands.
- Erisman, J.W. , Hensen, A., van der Bulk, P., Fonteijn, P, Möls, H.(1999) Verbetering van emissie-depositie relaties voor stikstofverbindingen; ECN bijdrage aan het Stikstofonderzoeksprogramma (STOP). ECN-C--99-080, Petten.
- Gifford F.A. (1961) Use of meteorological observations for estimating atmospheric dispersion. *Nuclear Safety* **2**, 47-51.
- Gryning, S.E., van Ulden, A.P. en Larsen S.E. (1983) Dispersion from a continuous ground-level source investigated by a *K* model. *Quart. J. R. Met. Soc.* **109**, 355-364.
- Gryning, S.E., Holtslag A.A.M., Irwin J.S. en Sivertsen B. (1987) Applied dispersion modelling based on meteorological scaling parameters. *Atmospheric Environment* **21**, 79-89.
- Hanna, S.R., Briggs, G.A., Deardorff, J., Egan, B.A., Gifford, F.A. Pasquill, F., (1977) AMS Workshop on stability classification schemes and sigma curves - summary of recommendations. Bulletin American Meteorological Society, Vol. 58, 12, 1305-1309.
- Hanna, S.R. en Chang J.C. (1993) Hybrid plume dispersion model (HPDM); improvements and testing at three field sites. *Atmospheric Environment* **27A**, 1491-1508.
- Hanna, S.R. en Chang J.C. (1995) Evaluation of HPDM-4 with the Kincaid dataset. *Int. J. Env. Poll.* **5/4-6**, 323-330.
- Hay, J.S, en Pasquill, F. (1959) Diffusion from a continuous source in relation to the spectrum and scale of turbulence. *Adv. in Geophysics*, Vol. 6.

- Hofschreuder, P., Vonk, A.W. en Heeres, P. (1999) Tracer gas experimenten in de Flevopolder; Vergelijking van gemeten concentraties met gesimuleerde concentraties met een Gauss model, het ASZ model en een K-type model. Rapport nr. R 835. Wageningen Universiteit, Wageningen.
- Horst T. W. (1977) A surface depletion model for deposition from a Gaussian plume. *Atmospheric Environment* **11**, 41-46.
- Monteny, G.J., Hol, J.G.M., Wever, A.C. en Scholtens, R.(1999) Ammoniakemissie op gebiedsniveau binnen het stikstofonderzoeksprogramma (STOP). IMAG-rapport 99-16, IMAG Wageningen.
- Nieuwstadt, F.T.M. (1978) The computation of the friction velocity  $U^*$  and the temperature scale  $T^*$  from temperature and windvelocity profiles by least squares methods. *Boundary Layer Met.* **14**, 235-246.
- Nieuwstadt, F.T.M. en van Ulden, A.P. (1978) A numerical study on the vertical dispersion of passive contaminants from a continuous source in the atmospheric surface layer. *Atmospheric Environment* **12**, 2119-2124.
- Oudendag, D.A. (1999) Validatie Mest- en Ammoniakmodel; vergelijking van de berekende ammoniakemissies bij stal- en aanwenden met metingen. LEI Den Haag, Interne notitie 99.33, 38 pg.
- Pasquill F. (1961) The estimation of the dispersion from windborne material. *Meteorol. Mag.* **90**, 1063, 33-49.
- Römer, F.G., te Winkel, B.H. en Scholten, R.D.A. (1999)  $NO_x$  -meting en -modellering in het kader van het stikstofonderzoeksprogramma STOP, KEMA rapportnr. 564972-KPS/MEC 99-3044.
- Rizza U., Mangia C. and Tirabassi T. (1996) Validation of an operational advanced gaussian model with Copenhagen and Kincaid datasets. In: Preprints of 4<sup>th</sup> Workshop on Harmonisation within Atmospheric Dispersion Modelling for Regulatory Purposes (eds: .G. Kretzchmar and G. Cosemans), 6-9 May 1996, Oostende , Belgium.
- Taylor, G.I. (1921) Diffusion by continuous movements. *Proc. London Math. Soc.* **20**, 196-202.
- Van der Molen, J., 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. *Netherlands journal of agricultural science*, **38**, 145-158
- Van der Molen, J., 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. *Netherlands journal of agricultural science*, **38**, 239-254.
- Van Jaarsveld, J.A. (1990) An operational atmospheric transport model for priority substances; specification and instructions for use. RIVM rapport 222501002, RIVM, Bilthoven
- Van Jaarsveld, J.A., Bleeker, A. en Hoogervorst, N.J.P. (2000) Evaluatie ammoniakredukties met behulp van metingen en modelberekeningen. RIVM rapport 722108025, RIVM, Bilthoven.
- Van Jaarsveld, J.A. (1995) Modelling the long-term atmospheric behaviour of pollutants on various spatial scales. Proefschrift Universiteit Utrecht. RIVM rapportnr. 722501005.
- Van Jaarsveld J.A. (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*, eds: S.E. Gryning and F.A. Schiermayer, Plenum Press, London, 333-344.
- Van Ulden A.P.(1978) Simple estimates for vertical diffusion from sources near the ground. *Atmospheric Environment* **12**, 2125-2129.
- Wesely, M.L. en Hicks, B.B. (1977) Some factors that effect the deposition rates of sulfur dioxide and similar gases on vegetation. *J.Air Pollut. Control Assoc.* **27**, 1110-1116.

## Bijlage 1 Verzendlijst

1. H. Baayen, DGM
2. M. Alessi, DGM
3. K. Sanders, DGM
4. J. Sliggers, DGM
5. S. Smeulders, DGM
6. G. de Vries, DGM
7. M. de Bode, LNV
8. J. Karres, LNV
9. A. Eijs, DGM
10. M. Roorda-Knape, V&W
11. L. Lekkerkerk, IKC-Landbouw
12. H. Beije, IKC-Natuurbeheer
13. K. van Laarhoven, Prov. Noord-Brabant
14. E. Steenland, LNV-Regio Oost
15. S. van der Lubbe, LNV-Regio Noord
16. R. Smeenge, Prov. Gelderland
17. W. de Boer, Prov. Friesland
18. C. Venderbos, Prov. Noord-Brabant
19. K. Folkertsma, Prov. Drenthe
20. A. van der Ende, Gem. Ede
21. W. de Vries, Alterra
22. J. Weststrate, TNO
23. W. Bruins, IKC Landbouw
24. L. van der Eerden, Alterra
25. F. Römer, KEMA
26. J. Roelofs, KUN
27. R. Bobbink, UU
28. H. van Dobben, Alterra
29. P. Hofschreuder, WUR
30. A. Tietema, UVA
31. R. van Diggelen, RUG
32. H. Leneman, LEI-DLO
33. L. van Staalduinen, LEI-DLO
34. J. Steenvoorden, Alterra
35. H. Spiertz, WUR
36. Depot Nederlandse Publikaties en Nederlandse Bibliografie
37. K. van Egmond,
38. K. van de Hoek
39. D. van Lith
40. H. Diederer
41. R. Albers
42. J. Aben
43. J. Beck
44. A. van Pul
45. A. Vonk
- 46-52. Auteurs
53. SBD/Voorlichting & Public Relations
- 54 Bureau Rapportenregistratie
- 55 Bibliotheek RIVM
- 56-76 Bureau Rapportenbeheer
- 76-100 Reserve exemplaren