

MINISTERIE VAN DE VLAAMSE GEMEENSCHAP

Administratie Milieu-, Natuur-, Land- en Waterbeheer

INSTITUUT VOOR BOSBOUW EN WILDBEHEER

Gaverstraat 4  
9500 Geraardsbergen

## **MEETSTATION VOOR LUCHTVERONTREINIGING BRASSCHAAT JAARVERSLAG 2000**

Monitoring van de gasvormige luchtverontreiniging in het Level-II- proefvlak te Brasschaat

J. Neiryck en P. Roskams

Augustus 2001

**INHOUDSTABEL**

<b>1. Inleiding.....</b>	<b>3</b>
<b>2. Methodiek.....</b>	<b>4</b>
<b>2.1. Meetlocatie, -methodiek en -cyclus .....</b>	<b>4</b>
<b>2.2. Bepalingen depositiefluxen.....</b>	<b>5</b>
<b>3. Concentratieniveaus.....</b>	<b>9</b>
<b>3.1. Verloop concentraties gasvormige componenten.....</b>	<b>9</b>
<b>3.2. Trend 1995-2000.....</b>	<b>11</b>
<b>3.3. Kritieke normen.....</b>	<b>12</b>
<b>4. Fluxen.....</b>	<b>13</b>
<b>4.1. NH<sub>3</sub>.....</b>	<b>13</b>
<b>4.2. O<sub>3</sub>.....</b>	<b>18</b>
<b>5. Conclusies.....</b>	<b>22</b>
<b>6. Dankwoord.....</b>	<b>23</b>
<b>7. Literatuur.....</b>	<b>23</b>

## 1. Inleiding

Sinds 1995 worden in het Meetstation in “De Inslag” (Brasschaat) metingen verricht van gasvormige componenten en meteorologische variabelen boven en onder het kronendak van een Grove dennenbestand. Deze metingen leveren enerzijds een interessante tijdsreeks op voor de studie van trends in chemische luchtkwaliteit en de invloed van weersomstandigheden op de concentraties van de gemeten pollutanten. De concentratieniveaus en hun afgeleide indexen worden verder vergeleken met internationale normen betreffende bescherming van bosecosystemen.

De monitoring is vereist om effect van brongerichte maatregelen (UN-ECE protocol, mestactieplan) op de concentratieniveaus te evalueren. Het vernieuwende multi-effect, multi-polluent protocol van Goteborg (1999) betreft het achtste protocol in uitvoering van de “Convention on Long-range Transboundary Air Pollution” en wil gelijktijdig de problematiek van verzuring, vermesting en troposferisch ozon behandelen. Het Protocol schuift voor de UN/ECE regio ambitieuze emissieplafonds voor SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>, VOC en NH<sub>3</sub> naar voren die in 2010 moeten gehaald worden.

Sinds 1999 wordt in de meetlocatie meer aandacht besteed aan metingen en modellering van fluksen. De metingen van de fluksen geschiedt d.m.v. de gradiëntmethode (ammoniak en ozon). De metingen van ammoniakfluksen startten binnen het kader van het VLINA-project: “Bepaling van de verzuring- en vermestinggevoeligheid van Vlaamse Bosgebieden d.m.v. gemodelleerde depositiefluksen”. De fluksmetingen leveren interessante gegevens wat betreft de meteorologische condities waarin deposities (versterkt) optreden. Deze gegevens kunnen verder gebruikt worden voor parametrisaties van de beschikbare modellen. Deze modellen simuleren het transport van een pollutant over verschillende weerstanden waarbij uiteindelijk een depositieschatting van het desbetreffende pollutant verkregen wordt.

In het kader van de ozonproblematiek wordt ook aandacht besteed aan het optreden van mogelijke schade aan bossen ten gevolge van hoge ozonwaarden. Een kritisch niveau voor ozon is op Europees beleidsniveau geïntroduceerd. Jaarlijks zijn de EU-lidstaten verplicht om informatie rond ozon (overschrijdingen van drempelwaarden) te rapporteren binnen het kader van de “Council Directive 92/97/EEC omtrent luchtverontreiniging door ozon. In het middellange termijn plan van het IBW voor de periode 2001-2005 werden twee nieuwe activiteiten rond ozon naar voor geschoven. Een ervan heeft betrekking op het meten van ozonfluksen in het Grove dennenbestand. Het meten van ozondepositie heeft tot doel om de “sinks” van ozon binnen een bosecosysteem te bepalen en kan op termijn leiden tot een flux-geörienteerde bepaling van een ozondrempelwaarde.

## 2. Methodiek

### 2.1. Meetlocatie, -methodiek en -cyclus

Het meetstation voor luchtverontreiniging is opgesteld in een wetenschappelijke zone rondom een permanent proefvlak voor de intensieve monitoring van bosccosystemen (bosbodemmeetnet), gelegen in een *Pinus sylvestris* bestand te Brasschaat, provincie Antwerpen (51°18'33" N, 4°31'14" E). Het dennenbestand maakt deel uit van het 150 ha groot domeinbos 'De Inslag' en is aangeplant in 1929. Grote overgangen in vegetatie (bv bos-heide) treden in de sector van 20° tot 250° niet op in een straal van 800 m rond de meetlocatie. De omringende vegetatie bestaat naast Grove den ook uit loofhout. Deze beperking inzake homogeniteit wordt gecompenseerd door het feit dat de bestandstypes ongeveer eenzelfde bestandshoogte hebben.

Het stamtal van het dennenbestand bedroeg 542 bomen/ha en de gemiddelde boomhoogte bedroeg 20.5 m in 1995 (Cermak et al., 1998). In het najaar van 1999 werd een dunning uitgevoerd. Uit recente metingen (UIA, voorjaar 2001) blijkt dat het huidig stamtal gedaald is tot 376 ex ha<sup>-1</sup> (met overeenstemmend grondvlak = 27.1 m<sup>2</sup> ha<sup>-1</sup>). De gemiddelde hoogte en dominante hoogte bedragen resp. 21.0 en 23.5 m. De gemiddelde diepte van de kronen bedraagt 6.2 m. Het betreft een homogeen bestand met een geringe ondergroei van hoofdzakelijk Pijpestrootje (*Molinia caerulea*) en mossen als Klauwtjesmos (*Hypnum cupressiforme*) en Gewoon haarmos (*Polytrichum commune*).

In 2000 werden SO<sub>2</sub>, NO, NO<sub>2</sub> en O<sub>3</sub> met dezelfde Environment-monitoren gemeten (Tabel 1). Deze monitoren zijn reeds sinds begin 1995 in gebruik en vertoonden de laatste tijd steeds meer defecten. Begin juli 2000 kwam definitief einde aan de kamer van de SO<sub>2</sub>-monitor. I.p.v. een nieuwe kamer te kopen werd geopteerd om een nieuwe monitor (Thermo Analytical; met pulserende UV-lamp) te kopen. Tijdens de tweede helft van 2000 werd een vervangmonitor van deze firma gebruikt. Uiteraard wordt volgens hetzelfde meetprincipe verdergemeten. Een zelfde verhaal kan overgedaan worden voor de NO<sub>x</sub>-monitor die eerder in 1999 getroffen werd door een kortsluiting. Einde 2000 waren er eveneens defecten (chopper-wiel). Gezien de problemen in het verleden en het hoge onderhoud van deze monitor werd eveneens een offerte uitgeschreven. Begin 2001 werd deze monitor door een accurater en gebruiksvriendelijker toestel van Ecophysics. Deze monitor beschikt eveneens over twee meetkamers i.p.v. één hetgeen leidt tot een synchrone meetcyclus (on-line analyse) van NO en NO<sub>2</sub>.

Tabel 1: Monitoren voor de bepaling van de luchtconcentraties van gasvormige pollutanten.

Polluent	Merk	Type	Meetprincipe
SO <sub>2</sub>	Environnement	AF 21 M	UV-fluorescentie
O <sub>3</sub>	Environnement	O3 41 M	UV-fotometrie
NO, NO <sub>2</sub>	Environnement	AC 31 M	Chemieluminescentie
NH <sub>3</sub>	ECN	AMANDA	Geleidbaarheid

Voor NH<sub>3</sub> werd verder gewerkt met de AMANDA (Ammonia measurement by Annular Denuder sampling with on line analysis) (Wyers et al., 1993). De 3 denuders worden doorlopen met een cyclus van 6 minuten. Dit prototype vraagt vele uren onderhoud, is

bijzonder vorstgevoelig en is gezien de grote hoogteverschillen van de verschillende denuders (verschillen in hydrostatische druk) onderhevig aan talrijke defecten. Tot de meest gerapporteerd defecten behoren:

- verzadiging ionenwisselaar (tengevolge van ontstaan van luchtballen in sample stroom van denuder 3, lage liquid flow van denuder 1
- verstopping glasvezelfilters, teflonfilters debubblers
- barsten tubes slangenpompsysteem
- lage liquidflow sample stream van denuder 1 door hogere hydrostatische druk denuder 2 en 3; slechte toevoer absorptieoplossing
- defecten met vacuümpomp voor de aanzuig van luchtmonsters: vervanging door waterringpomp

Voor verdere informatie omtrent de meetmethodiek, opstelling meteorologische apparatuur op de meettoren kan verwezen worden naar Neiryck & Roskams (2000). Eveneens voor de ijking van de monitoren werd hetzelfde onderhoudsschema aangehouden als voorgaande jaren.

Een verschil met voorafgaande jaren betreft de meetcyclus en de geselecteerde aanzuigniveaus. Er werd geopteerd om begin 2000 geen metingen meer te verrichten op het niveau 4 en 5 (beide op 9 meter maar met verschillende lengte teflonleiding). Enkel de niveaus boven het kronendak werden dus nog verder aangezogen. Ook werd de tijd, uitgetrokken voor het “flushen” van de aanzuigleidingen verkort tot 1 minuut. De meetcyclus van de 3 overgebleven niveaus wordt aldus verkort tot 15 minuten wat resulteert in een hoger aantal metingen op halfuursbasis (8 t.o.v. 3 herhalingen per niveau). Deze wijzigingen waren vereist omdat de aanzuiging van de niveaus niet on-line maar consecutief verloopt. Voor gasvormige componenten met een uitgesproken dagverloop zoals ozon resulteert dit in een meer precieze bepaling van de gradiënt (lagere meetfout). Een cyclus van 30 minuten bevatte een hoger risico dat de concentratieverschillen tussen de niveaus gemaskeerd werden door het uitgesproken dagpatroon van de gasvormige component. Deze wijzigingen droegen dus bij tot een meer precieze bepaling van de fluxen via de gradiëntmethode.

## 2.2. Bepalingen depositiefluxen

### 2.2.1. Gradiëntmetingen

Uit voorgaande studies (Neiryck en Roskams, 2000; Overloop en Roskams,1999) bleken enkel ammoniak en ozon over verrekenbare gradiënten te beschikken. Om de depositiefluxen van  $\text{NH}_3\text{-N}$  en  $\text{O}_3$  te bepalen wordt teruggegrepen naar de standaard fluxgradiënt verbanden (Dyer and Hicks, 1970; Duyzer et al., 1992):

$$F = K \frac{\partial[\text{NH}_3]}{\partial z}$$

Waarbij  $K$  staat voor een turbulent diffusiecoëfficiënt (turbulente energie, uitgedrukt in  $m^2 s^{-1}$ ). Voor de bepaling wordt uitgegaan dat  $K_s = K_m = K_h$ .

$$K = \frac{k(z-d)u_*}{\phi}$$

De turbulente diffusiecoëfficiënt wordt bepaald uit de von Karman constante ( $k = 0.4$ ), de nulvlakverplaatsing  $d$  ( $d = 20m$ , persoonlijke mededeling Carrara A.) en de wrijvingsnelheid  $u_*$  (sonische anemometer). De hoogte  $z$  is de referentiehoogte ( $\sqrt{z_1 z_3}$ ); de geometrische hoogte van het interval 23-39m.

Gezien niet altijd in neutrale condities gemeten kan worden, worden voor stabiele en onstabiele atmosfeer empirische stabiliteitscorrecties ingevoerd. Deze dimensieloze fluxprofiel verbanden ( $\phi_c$ ) zijn voor trace gassen niet beschikbaar en worden berekend met formules voor warmtetransportfuncties (Dyer & Hicks, 1970) op basis van de veronderstelling dat transport van warmte en “trace gasses” gelijkaardig is (Duyzer et al., 1992):

$$\phi_h = \begin{cases} L \leq 0 \dots \dots \alpha * \left( 1 - 16 \frac{(z-d)}{L} \right)^{-\frac{1}{2}} \\ L > 0 \dots \dots \alpha + 5 \frac{(z-d)}{L} \end{cases}$$

De hoogteafhankelijke correctiefactor  $\alpha$  werd ingevoegd om aan de voorwaarde van de constante fluxlaag te voldoen (Duyzer et al., 1992). Deze bedroeg voor het interval 23-39 m 0.87. Deze factor werd bepaald uit gradiëntmetingen van windsnelheid en directe fluxmetingen van momentum. Daar deze laatste niet beschikbaar was, werd  $\phi_m$  uitgezet tegen  $z-d/L$  en de  $\phi_m$  bij neutrale condities uit de grafiek afgeleid werd.  $L$  staat voor de Monin-Obukhov lengte en geeft informatie over de atmosferische stabiliteit.

De verticale ammoniakgradiënt (in  $\mu g/m^4$ ) wordt gemeten tussen niveau 23 ( $z_1$ ) en 39 m ( $z_3$ ) en wordt benaderd als:

$$\frac{\partial NH_3}{\partial z} = (NH_3 3 - NH_3 1) / \bar{z} \ln(z_3 / z_1)$$

met:

$$\bar{z} = \sqrt{z_3 z_1}$$

### 2.2.2. Depositie modellen

De fluks van een gas wordt gedefinieerd als:

$$F = V_d(z)c(z)$$

Deze fluks is unidirectioneel en houdt geen rekening met een mogelijke emissie van het desbetreffende gas. Dergelijke emissie treedt op als de omgevingsconcentratie  $C$  hoger ligt dan het compensatiepunt van de vegetatie:  $C_p$ .

De depositiesnelheid  $v_d$  wordt berekend voor de referentiehoogte van 40 m en wordt geschat als een inverse van drie weerstanden:

$$V_d(z) = \frac{1}{R_a(z-d) + R_b + R_c}$$

Voor de berekening van de weerstanden wordt uitgegaan van de hypothese dat het transport van een gas doorheen de constante fluxlaag dezelfde is als die van warmte (Hicks et al., 1987).

De aërodynamische weerstand ( $R_a$ ; weerstand die ondervonden tijdens transport door de turbulente laag) werden berekend volgens Garland (1978).

$$R_a(z-d) = \frac{1}{k u_*} \left[ \ln \left[ \frac{z-d}{z_0} \right] - \Psi_h \left( \frac{z-d}{L} \right) + \Psi_h \left( \frac{z_0}{L} \right) \right]$$

Daarbij worden de atmosferische stabiliteitscorrecties gebruikt als voor warmte (zie gradiëntmethode) zoals weergegeven in Erisman en Draaijers (1995). De ruwheidslengte bedroeg 1 m (Carrara, niet gepubliceerd).

De laminaire grenslaagweerstand wordt geassocieerd met transport door de quasi-laminaire grenslaag die in contact is met het vegetatieoppervlakte en wordt door Hicks et al. (1987) voorgesteld als:

$$R_b = \frac{2}{k u_*} \left( \frac{Sc}{Pr} \right)^{2/3}$$

Waarbij  $Sc$  en  $Pr$  respectievelijk het Schmidt en Prandtl nummer voorstellen en pollutantafhankelijk zijn.

De oppervlakteweerstand  $R_c$  is nog meer afhankelijk van het beschouwde component. Voor de oppervlakteweerstand werd gebruik gemaakt van de parametrisaties voorgesteld door Erisman et al. (1994).

$$R_c = \left[ \frac{1}{R_{stom} + R_m} + \frac{1}{R_{inc} + R_{soil}} + \frac{1}{R_{ext}} \right]^{-1}$$

De stomatale weerstand ( $R_{stom}$ ) wordt gemodelleerd via het SECRETS-model (Sampson, 2000) maar zijn nog niet beschikbaar voor 2000. Ter vervanging wordt de stomatale geleidbaarheid gemodelleerd via de methode van Baldocchi et al. (1987). Als input is de globale straling en oppervlaktetemperatuur vereist. De stomatale weerstand wordt afhankelijk van het pollutant in kwestie gecorrigeerd met de ratio van diffusiecoëfficiënt van het gas tot dat van water. In deze studie wordt de mesofylweerstand aan nul gelijkgesteld.

Voor de begroting van de weerstand doorheen het kronendak ( $R_{inc}$ ) wordt beroep gedaan op basis van een model waarin naast de LAI, vegetatiehoogte, de wrijvingsnelheid betrokken wordt. Erisman et al. (1994) maken voor  $R_{soil}$  een opdeling naargelang het pollutant. Voor  $NH_3$  ligt de  $R_{soil}$  tussen 0 en  $50 \text{ s m}^{-1}$  (resp. droge en natte condities). Ozon wordt moeilijk afgebroken op een nat oppervlak door haar lage wateroplosbaarheid.  $R_{soil}$  varieert tussen 500 en  $100 \text{ s m}^{-1}$  (resp. nat en droog bodemoppervlak).

Vele studies toonden aan dat het externe naaldoppervlak een belangrijke sink is voor gemakkelijk wateroplosbare pollutanten zoals  $NH_3$  en  $SO_2$ . Meteorologische variabelen die bij de schatting van  $R_{ext}$  (cuticulaire weerstand) gebruikt worden zijn o.a. relatieve vochtigheid, temperatuur en bladnatheid. Tevens wordt rekening gehouden met de wederzijdse stimulus van beide componenten (Erisman en Wyers, 1993). Voor ozon wordt de  $R_{ext}$  gelijkgesteld aan:

$$R_{ext} = (2000 - 1000 * LW)$$



### 3. Concentratieniveaus

#### 3.1. Verloop concentraties gasvormige componenten

Het verloop van de concentraties is duidelijk seizoensgebonden. Voor SO<sub>2</sub> en NO<sub>x</sub> worden de hoogste concentraties tijdens de winterperiode opgetekend (Tabel 2). De maandgemiddelde maxima vallen voor SO<sub>2</sub>, NO en NO<sub>2</sub> in resp. februari, januari en maart (met resp. 45.8, 123.4 en 75.6 µg/m<sup>3</sup>). Ozon en ammoniak hebben hun hoogste daggemiddelde concentratie in mei en juni (resp. 111.5 en 27.7 µg/m<sup>3</sup>). In 1999 ligt het maximum daggemiddelde van NH<sub>3</sub> 56.4 µg/m<sup>3</sup> in de maand juli. Uit Tabel 3 blijkt een groot verschil te bestaan tussen mediane en gemiddelde concentraties voor NO en NH<sub>3</sub>.

Uit vorige rapporten blijkt voor elke component een duidelijke afhankelijkheid van de windrichting te bestaan. Voor zwaveldioxide en stikstofoxiden gaat wind uit de ZW-sector meestal gepaard met hoge pieken. Winden uit NO-sector voeren veel ammoniak aan uit de agro-industriële omgeving van Brecht en Wuustwezel. Ozon is als secundair pollutant afhankelijk van de aanvoer van stikstofoxiden en de aanwezigheid van VOC. In tabel 4 wordt de verdeling van de windrichting over de verschillende sectoren weergegeven. De invloed van de windrichting wordt in tegenstelling tot vorige jaren overschaduwd door het temporele verloop van de gasvormige component in kwestie.

Tabel 2: Maandgemiddelde concentraties in µg/m<sup>3</sup>, berekend uit daggemiddelden. Gearceerde waarden liggen boven jaargemiddelde concentraties.

	jan	feb	maa	apr	mei	jun	jul	aug	sep	okt	nov	dec
SO <sub>2</sub>												
Gem	15.9	17.2	13.5	9.1	11.7	12.5	na	na	na	8.6	8.6	12.3
Max	40.2	45.8	32.8	18.0	30.7	42.7	na	na	na	23.4	14.9	27.6
O <sub>3</sub>	jan	feb	maa	apr	mei	jun	jul	aug	sep	okt	nov	dec
Gem	26.5	31.9	39.2	54.6	63.8	61.7	49.2	50.0	33.8	26.9	25.7	21.5
Max	62.5	57.2	78.8	87.4	111.5	106.2	75.5	87.3	59.9	60.6	50.6	52.3
NO	jan	feb	maa	apr	mei	jun	jul	aug	sep	okt	nov	dec
Gem	12.2	11.6	6.6	1.7	2.3	1.1	1.8	3.8	7.3	7.3	14.8	na
Max	123.4	65.2	37.3	16.1	12.1	6.4	16.0	20.9	33.4	24.9	85.5	na
NO <sub>2</sub>	jan	feb	maa	apr	mei	jun	jul	aug	sep	okt	nov	dec
Gem	21.5	42.3	32.3	22.9	23.8	18.5	14.7	21.5	26.6	26.9	14.1	na
Max	55.6	72.2	75.6	37.1	40.5	36.7	42.1	37.8	48.6	38.3	33.3	na
NH <sub>3</sub>	jan	feb	maa	apr	mei	jun	jul	aug	sep	okt	nov	dec
Gem	1.7	1.6	2.1	4.4	8.4	14.8	5.7	0.3	0.5	1.3	0.5	1.0
Max	5.9	6.8	8.7	19.3	10.4	27.7	11.9	1.1	2.0	4.4	0.7	3.3

Tabel 3: Percentielverdeling van de daggemiddelden in  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ .

	P10	P30	P50	P60	P70	P80	P90	P95	P98	max	Gem
SO <sub>2</sub>	3.6	7.8	11.3	13.0	16.1	19.4	25.1	32.3	40.9	45.8	13.1
O <sub>3</sub>	13.0	30.0	42.6	46.2	51.2	58.7	66.7	76.9	91.1	111.5	41.0
NO	0.0	0.3	1.5	2.7	4.7	7.9	18.8	33.7	53.8	123.4	6.3
NO <sub>2</sub>	8.1	16.0	22.4	25.6	29.4	33.9	39.2	47.9	65.5	75.6	24.0
NH <sub>3</sub>	0.1	0.6	1.3	2.0	2.6	5.0	9.3	12.3	25.9	27.7	3.1

Tabel 4: Windrichtingfrequenties (in %) per maand. Overheersende winden worden voor iedere maand in vet weergegeven.

Maand	jan	feb	maa	april	mei	jun	jul	aug	sep	okt	nov	Dec
N	14.0	16.3	25.9	3.3	8.6	3.3	6.6	6.4	0.6	0.7	9.5	0.1
NNO	9.4	9.5	18.3	9.8	12.1	4.2	4.5	5.4	0.2	4.1	6.5	1.5
NO	6.0	6.2	9.0	9.7	8.2	3.7	8.9	8.0	1.1	3.2	9.8	9.3
ONO	2.3	4.6	2.7	4.3	4.8	2.0	4.6	5.2	0.6	2.6	13.1	1.9
O	1.4	3.6	3.4	2.8	4.3	1.4	1.0	4.8	3.7	2.6	4.9	7.3
OZO	1.2	2.4	1.9	4.9	3.9	5.3	1.3	1.2	4.8	7.3	10.6	7.3
ZO	1.4	3.8	0.8	11.1	4.2	6.4	0.9	4.4	13.4	11.8	14.1	7.6
ZZO	1.8	3.8	1.5	13.9	5.9	5.2	1.9	5.4	11.6	14.2	4.3	10.1
Z	4.3	2.4	1.2	8.8	8.7	7.4	3.2	4.8	12.6	12.9	4.8	9.1
ZZW	7.0	1.6	2.5	11.5	8.2	6.9	7.3	10.4	13.2	13.9	6.0	18.2
ZW	11.8	4.8	2.9	4.6	5.3	5.6	6.9	11.6	11.1	12.3	2.7	16.1
WZW	8.6	3.6	1.5	2.5	5.3	5.8	3.6	7.4	3.9	5.3	1.3	4.5
W	3.1	2.2	1.5	2.4	4.3	9.1	6.2	6.5	4.6	4.3	6.0	3.9
WNW	6.8	4.3	2.9	3.5	7.4	11.1	9.2	6.5	5.5	2.8	0.4	2.1
NW	7.1	10.4	5.4	4.4	6.5	13.6	13.9	6.9	9.2	1.3	2.4	0.4
NNW	13.9	20.5	18.6	2.5	2.1	8.9	18.5	5.0	4.0	0.8	3.6	0.5

Tabel 5 geeft de percentielverdeling van de halfuurswaarden weer. Concentraties zijn log-normaal verdeeld. Pieken van de halfuurswaarden liggen in 2000 lager dan in 1999. Enkel het halfuursmaximum van ozon ( $198 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) komt in de buurt van het 1999-maximum ( $203 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ). Voor stikstofoxiden en ammoniak liggen de maxima de helft onder de 1999-halfuursmaxima.

Tabel 5: percentielverdeling van de halfuurswaarden in  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ .

	P10	P30	P50	P60	P70	P80	P90	P95	P98	max	Gem
SO <sub>2</sub>	2.0	5.2	9.2	12.2	15.7	21.0	31.0	39.7	50.2	160.7	13.3
O <sub>3</sub>	3.7	20.8	39.3	47.5	54.0	63.7	79.0	93.3	120.1	198.0	41.0
NO	0.0	0.0	0.0	0.0	1.3	4.2	16.7	38.3	73.4	383.9	6.5
NO <sub>2</sub>	3.8	11.5	20.4	25.3	31.2	38.7	49.0	60.2	75.8	121.0	24.1
NH <sub>3</sub>	0.0	0.4	1.1	1.7	2.6	4.4	7.8	13.2	22.5	57.3	3.1

### 3.2. Trend 1995-2000

Tabel 6: Jaargemiddelde concentraties in  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ , berekend uit halfuurwaarden.

	SO <sub>2</sub>	O <sub>3</sub>	NO	NO <sub>2</sub>	NH <sub>3</sub>
1995	17.0	36.0	15.1	33.4	-
1996	19.3	37.2	11.7	33.9	-
1997	18.7	39.3	13.9	34.7	-
1998	18.1	40.2	10.4	29.4	-
1999	15.5	42.2	7.8	25.3	7.1
2000	13.3	41.0	6.5	24.1	3.1

Het verloop van de jaarlijkse mediaanwaarden wijkt lichtjes af van dat van de gemiddelde waarden (tabel 6 en 7). Zo komt de daling van zwaveldioxide minder expliciet tot uiting als bij de rekenkundig gemiddelden. Een en ander kan het gevolg zijn van het feit dat in 1995 meetwaarden van de eerste drie (winter)maanden ontbraken.

Voor stikstofoxiden wordt de dalende tendens zowel bij gemiddelden als medianen bevestigd. In 1997 werden de hoogste mediane concentraties van NO en NO<sub>2</sub> gemeten.

Tabel 7: Jaarlijkse mediaanconcentraties in  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ , berekend uit halfuurwaarden.

	SO <sub>2</sub>	O <sub>3</sub>	NO	NO <sub>2</sub>	NH <sub>3</sub>
1995	10.5	26.7	2.1	31.8	-
1996	13.1	32.7	2.5	30.6	-
1997	11.3	34.0	4.1	34.4	-
1998	12.2	38.0	0.8	25.5	-
1999	11.4	38.2	0.0	21.6	2.5
2000	9.2	39.3	0.0	20.4	1.1

De jaargemiddelden van ozon liggen tussen die van 1998 en 1999 in. Uit de reeks van de jaargemiddelden komt een zekere plafonnering naar voren, waarschijnlijk veroorzaakt door de sombere zomer (juli) van 2000. De jaarlijkse mediane ozonconcentraties vertonen daarentegen een constant stijgende tendens.

De gemiddelde en mediane concentraties van ammoniak concentraties liggen lager dan in 2000. In 1999 werd echter enkel vanaf eind juni gemeten. Het jaar 1999 werd daarenboven gekenmerkt door hoge concentraties in de maand juli ( $14.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) ten gevolge van dominantie van NO-winden die veel NH<sub>3</sub> aanvoeren (Neiryck en Roskams, 2000).

### 3.3. Kritieke normen

Voor SO<sub>2</sub> blijven de daggemiddelde en jaargemiddelde concentraties niet als in 1999 ruimschoots onder de norm voor acute als chronische effecten (resp. 70 en 20 µg/m<sup>3</sup>). Hetzelfde geldt voor NH<sub>3</sub> (resp. 270 en 8 µg/m<sup>3</sup>)

Voor stikstofoxiden wordt het 4-uurgemiddelde van 95 NO<sub>x</sub> 70 maal overschreden in 2000. Het kritieke niveau voor langdurige blootstelling (30 µg/m<sup>3</sup>) met een jaargemiddelde NO<sub>x</sub> concentratie wordt net overschreden (zie tabel 8).

Tabel 8: Toetsing van kritische waarden voor kortstondige (aantal overschrijdingen) en langdurige blootstelling van NO<sub>x</sub> over de periode 1996 tot 2000.

Jaar	NO <sub>x</sub>	
	Acuut	Chronisch
1996	121	51.8
1997	124	56.2
1998	116	45.4
1999	95	37.2
2000	70	30.7

Voor ozon blijven de AOT40-waarde op de 3 meetniveaus ruim onder de kritieke AOT40-waarde voor langdurige blootstelling van 10000 ppbuur (zie tabel 9). Het aantal overschrijdingen van de drempelwaarden voor bescherming van vegetatie (ozone directive 92/97/EEC) betrof 0 en 38 voor resp. de uurlijkse (200 µg/m<sup>3</sup>) en dagnorm (65 µg/m<sup>3</sup>).

Tabel 9: AOT40-waarde in ppbuur op verschillende hoogtes (ppbuur)

Hoogte	40 m	32 m	24 m
AOT40-waarde	7749	7586	7333

## 4. Fluksen

### 4.1. NH<sub>3</sub>

#### 4.1.1. Gradiëntmetingen

##### 4.1.1.1. Rejectie-criteria

Door optreden van technische defecten tengevolge van de frêle uitrusting (herhaaldelijke pannes en vervanging van vacuümpomp gelijkspanningsmotoren, thermistor,...) en artefacten (door lage liquid- en air-flows, verzadiging ionenwisselaar) moest een strenge selectie van de data-set doorgevoerd worden. Dit leidde er toe dat bij de berekening van de maandelijkse gemiddelde fluks slechts op een gering percentage gradiëntmetingen beroep kon gedaan worden (tabel 10). Fluxmetingen voor de maand maart, mei en september kunnen moeilijk representatief genoemd worden.

Tabel 10: Jaaroverzicht van de beschikbare gradiënten per maand na kwaliteitscontrole.

<i>Maand</i>	<i>% metingen</i>
2000-1	33.1
2	32.6
3	19.1
4	75.2
5	5.4
6	30.4
7	38.6
8	22.0
9	11.0
10	37.0
11	30.0
12	24.0

Om de soms kleine gradiënten door te rekenen naar fluksen, moeten de gegevens aan een standaard analytische kwaliteit voldoen. Voor de meetcampagne 2000 zijn de resultaten van een aantal criteria weergegeven voor de periode januari tot juli 2000 in tabel 11.

Tabel 11: Kwaliteitsnormen gradiëntmetingen 2000

<i>Percentiel</i>	<i>se avgC</i>	<i>CV/avg</i>	<i>se/grad</i>	<i>CVgrad</i>
P10	0.3	0.6	-17.5	-40.4
P20	0.7	1.6	1.0	2.3
P30	1.1	2.6	2.4	5.6
P40	1.6	3.6	3.9	9.2
P50	2.1	4.8	5.8	13.8
P60	2.7	6.4	8.6	20.4
P70	3.5	8.2	12.7	30.8
P80	4.9	11.5	20.4	48.1
P90	8.4	19.7	39.3	91.3
	1 à 4 %	< 20 %	< 10%	< 30 %
Auteur	Fowler,89	Duyzer,92	Hicks,88	Duyzer,92

Volgens criterium 1 (verhouding standard error op gemiddelde halfuurlijkse  $C < 4 \%$ ) zijn zowel in 2000 tussen 70 en 80% van de metingen geschikt voor fluksmetingen. Aanname van criterium 2 (variatioëfficiënt halfuurlijkse gemiddelde  $C < 20 \%$ ) leidt tot een volledige aanvaarding van de dataset. Volgens criterium 3 (verhouding standard error op gemiddelde halfuurlijkse concentratiegradiënt  $< 10 \%$ ) zijn in 2000 ruim 60% van de data precies genoeg voor doorrekening tot fluksen. Criterium 4 houdt in dat de variatioëfficiënt van de halfuurlijkse gradiënten kleiner moet zijn dan 30 %. In 2000 is voor 70 % van de gevallen aan dit criterium voldaan.

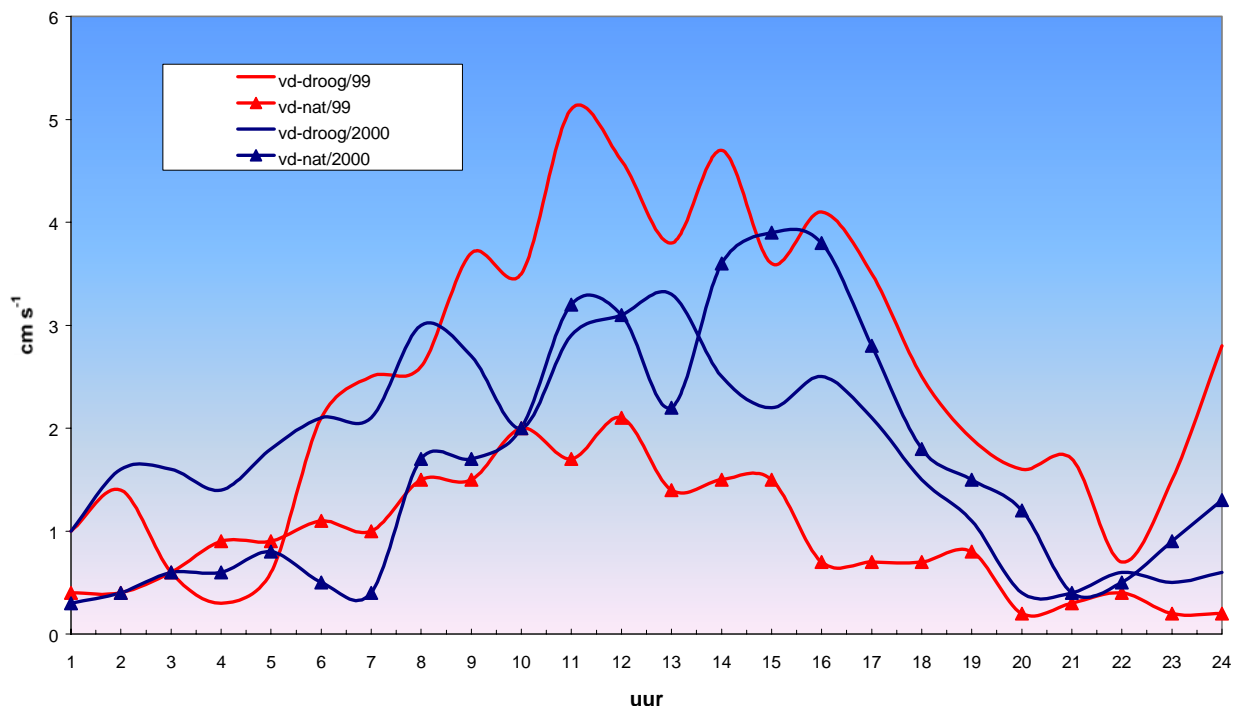
De gemiddelde maandelijkse depositiesnelheden (F/C) varieerden tussen 0.4 en 2.5  $\text{cm s}^{-1}$  in 1999 en 0.4 (februari) en 2.8  $\text{cm s}^{-1}$  (juni-juli) in 2000 (tabel 12). In de maand august, gekenmerkt door lage ammoniakconcentraties (tabel 2) worden mediane negatieve depositiesnelheden (emissie) geregistreerd.

Tabel 12: Invloed van atmosferische stabiliteit (L), bladnatheid (LW) en relatieve vochtigheid (RV) op mediane maandelijkse depositiesnelheden van ammoniak tussen juli 1999 en juli 2000 (in  $\text{cm s}^{-1}$ ).

Maand	Mediaan	L < 0	L > 0	LW = 0	LW > 0	RV < 60	60 < RV < 80	RV > 80
1999-7	2.4	4.3	0.8	3.3	0.6	3.1	2.8	1.2
8	0.8	1.7	0.3	1.0	0.5	1.7	0.6	0.6
9	1.9	4.4	1.0	8.4	0.8	6.2	3.9	1.3
10	0.5	1.4	0.3	0.3	0.7	-	0.2	0.6
11	0.4	1.5	0.3	1.4	0.2	-	1.3	0.4
12	2.5	2.8	2.5	1.5	7.3	-	1.0	3.3
2000-1	0.4	-0.1	0.7	3.1	0.0	-	2.9	0.4
2	2.4	2.2	2.5	2.4	2.4	1.6	3.3	1.7
4	0.7	1.2	0.5	0.5	1.1	0.5	0.5	0.9
5	2.3	2.7	1.4	2.2	2.6	-	2.6	2.1
6	2.8	4.6	0.8	2.8	2.7	3.5	2.3	2.2
7	2.7	4.5	1.8	4.3	1.6	12.9	5.3	1.9
8	-1.9	-2.8	-0.1	-1.6	-2.5	0.0	-1.0	-4.6
9	1.4	-10.4	1.5	0.7	2.3	-	-	-
10	0.8	0.7	0.9	0.4	1.1	-	2.2	0.5
11	1.9	1.7	2.0	1.1	2.4	-	-	2.0

Uit tabel 12 blijkt duidelijk de invloed van de verhoogde turbulentie tijdens de dag (L < 0). Depositiesnelheden zijn het hoogst tussen 9 en 16 uur wanneer er veel turbulentie is en stomata geopend zijn (Figuur 1).

De rol van bladnatheid (LW) verschilt naargelang het meetjaar. Tijdens de zomerperiode van 1999 wordt bij kroondroogte hogere deposities gemeten. Dergelijke vaststellingen blijken ook bij het nagaan van de invloed van de relatieve vochtigheid; periodes met lage relatieve vochtigheid < 60 % vallen samen met de hoogste depositiesnelheden. De negatieve invloed van de bladnatheid in 1999 blijkt ook uit het dagverloop (figuur 1); depositiesnelheden lopen op tot 5  $\text{cm s}^{-1}$  bij droge omstandigheden tegen 2  $\text{cm s}^{-1}$  bij natte omstandigheden. Voor 2000 worden dergelijke grote verschillen niet opgemerkt; beide curven hebben de neiging om samen te vallen. Rond 15 uur wordt een piek bereikt van 4  $\text{cm s}^{-1}$ , ditmaal wanneer het naaldoppervlak met een waterfilm bedekt is. De gunstige invloed van “canopy wetness” treedt voornamelijk op in het laatste kwartaal van 2000 (tabel 12).



Figuur 1: Dagverloop van de mediane depositiesnelheid ( $v_d$ ) tijdens 1999 en 2000 voor droge en natte omstandigheden.

Erismen en Wyers (1993) duiden op het belang van de oppervlaktenatheid waarbij natte omstandigheden leiden tot versnelde depositie. Droge omstandigheden vertragen de depositie en kunnen leiden tot emissie. Anderzijds beperken de aanwezigheid van waterfilms de opname van ammoniak via de stomata (Peters en Bruckner, 1995).

Tabel 13: Temperatuurafhankelijkheid van depositiesnelheden

$T$ ( $^{\circ}C$ )	$v_d$ -1999	$v_d$ -2000
< 0	0.1	-0.0
0 – 5	0.4	1.7
5 – 10	1.2	2.5
10 – 15	1.4	1.3
15 – 20	1.3	1.3
20 – 25	2.9	2.3
> 25	2.9	3.1

De toename van de depositiesnelheden bij hogere temperatuur duidt op een hogere fysiologische activiteit (meer verdamping) (tabel 13). De verdubbeling van de depositiesnelheid boven temperaturen van  $20^{\circ}$  kan ook het gevolg zijn van flux divergentie veroorzaakt door verschuivingen binnen het chemisch evenwicht in het salpeterzuur-ammoniak-ammoniumnitraat systeem. Op die manier is niet aan de constante flux voorwaarde voldaan en ontstaat er een ruis op de gradiëntmetingen.

## 4.1.2. Modellen

In tabel 14 en 15 worden de metingen vergeleken met de gemodelleerde waarden voor resp. 1999 en 2000. Voor deze laatste is van een zelfde depositiemodel vertrokken. Enkel de waarden voor stomatale geleidbaarheid verschillen onderling. Bij gebruik van de SECRETS-waarden voor stomatale geleidbaarheid wordt gewerkt met uurlijkse i.p.v. halfuurlijkse waarden. De vergelijkende studie duidt aan dat de modellen de depositiefluks van ammoniak in maanden met hoge ammoniakbelasting (groeiseizoen) onderschatten. Toepassing van de Secrets-waarden voor 1999 data leidt tot hogere depositieschattingen voor de maand juli, augustus en september in vergelijking tot de modelwaarden waarbij de stomatale geleidbaarheid geschat wordt met het model van Baldocchi.

Het is eveneens mogelijk dat er omwille van verschuivingen in het evenwicht tussen gas-aërosol flux divergentie optreedt en de gradiëntmetingen beïnvloed worden. De tijdschaal van deze omzettingen kan klein zijn in vergelijking met die waarin het turbulent en diffuus transport plaatsvindt. Ammoniak kan niet met een hogere snelheid afgezet worden dan via turbulentie ( $R_a$ ) mogelijk is. Het blijkt dat in ca 15 tot 20 % van de gevallen de gemeten fluks de  $v_{max}$ , de maximaal mogelijk depositiesnelheid wanneer alleen turbulent transport in beschouwing genomen wordt, overschreden wordt. In de maand maart en december 2000 is deze overschrijding (meting te grote gradiënten) echter buitensporig (>90 %); deze data worden verder niet in beschouwing genomen.

Tabel 14: Vergelijking van maandelijkse mediane fluxmetingen met depositiemodellen voor 1999 (in  $\mu\text{g}/\text{m}^2\text{s}$ )

<i>Maand</i>	<i>meting</i>	<i>model Secrets</i>	<i>model Bald</i>
1999-7	0.205	0.112	0.086
8	0.078	0.065	0.059
9	0.061	0.039	0.036
10	0.003	0.005	0.006
11	0.013	0.031	0.031
12	0.017	0.015	0.015

Tabel 15: Vergelijking van maandelijkse fluxmetingen met depositiemodellen voor 2000 (in  $\mu\text{g}/\text{m}^2\text{s}$ )

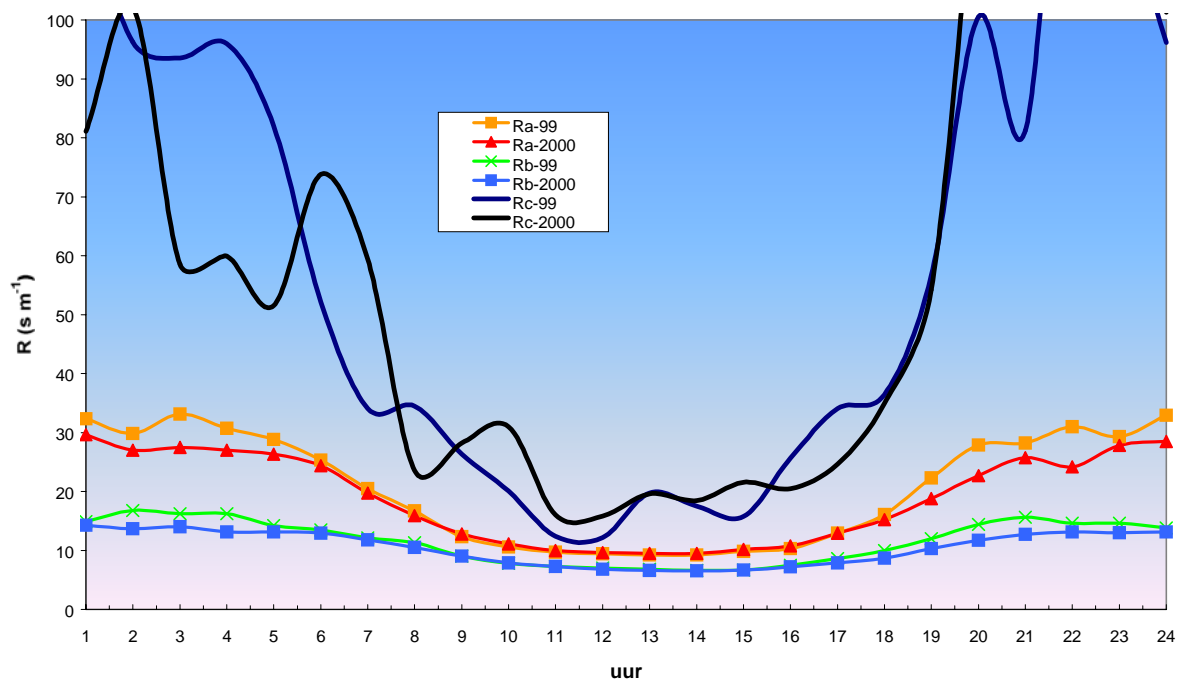
<i>Maand</i>	<i>meting</i>	<i>model</i>
2000-1	0.006	0.030
2	0.014	0.013
4	0.015	0.028
5	0.150	0.193
6	0.185	0.068
7	0.084	0.060
8	0.000	0.001
10	0.004	0.019
11	0.007	0.016



Uit de kennis van de gemeten depositiesnelheid ( $v_d$ ), de berekende aërodynamische weerstand ( $R_a$ ) en de laminaire grenslaagweerstand ( $R_b$ ) kon de “Canopy resistance” ( $R_c$ ) berekend worden. Dit gebeurde door voor alle uurklassen de mediane  $R_a$  en  $R_b$  te berekenen en van de mediane depositiesnelheid van de desbetreffende uurklasse af te trekken.

Uit figuur 2 blijkt dat de drie weerstanden overdag ongeveer van dezelfde grootte-orde zijn; tussen 10 en 30  $s\ m^{-1}$ . Daaruit kan geconcludeerd worden dat de depositiesnelheid overdag door de drie weerstanden in gelijke mate gestuurd worden.

's Nachts nemen de weerstanden in waarde toe. Voor  $R_a$  en  $R_b$  heeft dit te maken met een daling van de wrijvingsnelheid (stabiele condities). Vooral de gemodelleerde aërodynamische weerstand neemt toe maar blijft op jaarbasis toch onder de 40  $s\ m^{-1}$ . De “canopy resistance” loopt op tot 100-150  $s\ m^{-1}$  (sluiting stomata) en controleert bijgevolg 's nachts de depositie van ammoniak.



Figuur 2: Dagverloop van mediane aërodynamische weerstand ( $R_a$ ), laminaire grenslaagweerstand ( $R_b$ ) en “Canopy resistance” ( $R_c$ ) tijdens 1999 en 2000 (in  $s\ m^{-1}$ ).

## 4.2. O<sub>3</sub>

### 4.2.1. Gradiëntmetingen

Voor de jaren 1999 en 2000 werden de fluksen en corresponderende depositiesnelheden berekend. Strikt genomen kunnen beide meetjaren niet vergeleken worden daar de meetmethodiek begin 2000 aangepast werd; door het uitschakelen van de onderste meetniveaus werden per halfuur meer meetwaarden verkregen wat leidt tot een meer precieze bepaling van de gradiënt.

Depositiesnelheden zijn in 2000 beduidend hoger dan in 1999 (tabel 16). De hoogste depositiesnelheden (0.4 cm s<sup>-1</sup>) worden gemeten in september (1999) en juli, september en oktober (2000).

Tabel 16: Maandelijks mediane depositiesnelheden ozon (v<sub>d</sub>) (in cm s<sup>-1</sup>)

Maand	1999	2000
1	0.1	0.0
2	0.1	0.2
3	0.1	0.2
4	0.1	0.2
5	0.0	0.3
6	0.1	0.2
7	0.2	0.4
8	0.2	0.3
9	0.4	0.4
10	0.2	0.4
11	0.3	0.3
12	0.0	0.2

De invloed van de bladnatheid wordt geïllustreerd in tabel 17. Tijdens dagomstandigheden blijkt de bladnatheid de depositie van ozon te versterken. De depositiesnelheid loopt op tot 1.7 cm s<sup>-1</sup> (september 2000). 's Nachts wanneer ozon wordt afgebroken en stomata gesloten zijn, valt de depositie terug en vervagen de verschillen voor verschillende vochtomstandigheden.

Tabel 17: Maandelijks mediane ozondepositiesnelheden in 2000 voor verschillende condities in bladnatheid (LW) tijdens dag (L<0) en nachtomstandigheden (L>0).

Maand	L < 0		L > 0	
	LW = 0	LW > 0	LW = 0	LW > 0
1	0.8	0.2	0.0	0.0
2	0.5	0.6	0.1	0.0
3	0.4	0.7	0.1	0.0
4	0.4	0.7	0.1	0.1
5	0.6	0.6	0.1	0.2
6	0.3	0.9	0.1	0.1
7	0.6	0.9	0.2	0.3
8	0.6	1.4	0.2	0.2
9	0.7	1.7	0.3	0.3
10	0.7	1.2	0.3	0.4
11	0.7	1.1	0.3	0.3
12	0.6	0.0	0.2	0.0

In figuur 3 wordt het dagverloop voorgesteld van de ozonconcentraties en -fluxen. Daar waar de ozonconcentraties van 1999 (juni 99-dec99) en 2000 nagenoeg samenvallen, tekenen er zich duidelijke verschillen op tussen het dagverloop van de fluxen in 1999 en 2000. Beide fluxen lijken in hun verloop beïnvloed te worden door de ozonconcentraties maar in 2000 tekent de piek zich in de middag op terwijl de piekfluxen in 1999 in de (late) namiddag optreden. Dit komt ook tot uiting in het dagverloop van de depositiesnelheden (figuur 4) die in 2000 in de voormiddag (8-12h) pieken. In 1999 wordt na een eerste piek in de morgen (8 h) een duidelijke daling in de depositiesnelheden waargenomen rond de middag. Nadien worden in de middag opnieuw hogere depositiesnelheden waargenomen.

Verder moet gewezen worden op de bijdragen van ozonfluxen tijdens de nacht. Ondanks de sluiting van de stomata vindt 's nachts depositie van ozon plaats waarvoor andere opnameprocessen behalve stomatale diffusie verantwoordelijk zijn.

In 1999 zijn de maandelijkse mediane fluxen tot en met mei door afwezigheid van meetbare gradiënten verwaarloosbaar laag (tabel 18). Slechts vanaf juni 1999 worden fluxen gemeten.

#### 4.2.2. Depositie modellen

Voor 1999 werd 2 schattingen gemaakt van de depositieflux (tabel 18). Daarbij werd in een eerste oefening de stomatale geleidbaarheid gemodelleerd aan de hand van het model van Baldocchi (1987). Daarnaast werden ook de waarden van oppervlaktegeleidbaarheid uit het voor het Grove dennenbestand gevalideerd SECRETS-model gebruikt om de stomatale geleidbaarheid te bepalen (uurlijkse meetgegevens).

Doorgaans leveren de modellen hogere fluxen op dan de metingen zelf wat waarschijnlijk het gevolg is van een minder nauwkeurige bepaling van de ozongradiënt in 1999 en de veelvuldig optredende ozonpieken. De gemodelleerde depositiehoeveelheden liggen bij gebruik van de SECRETS-output hoger dan bij gebruik van het eenvoudige Baldocchi model.

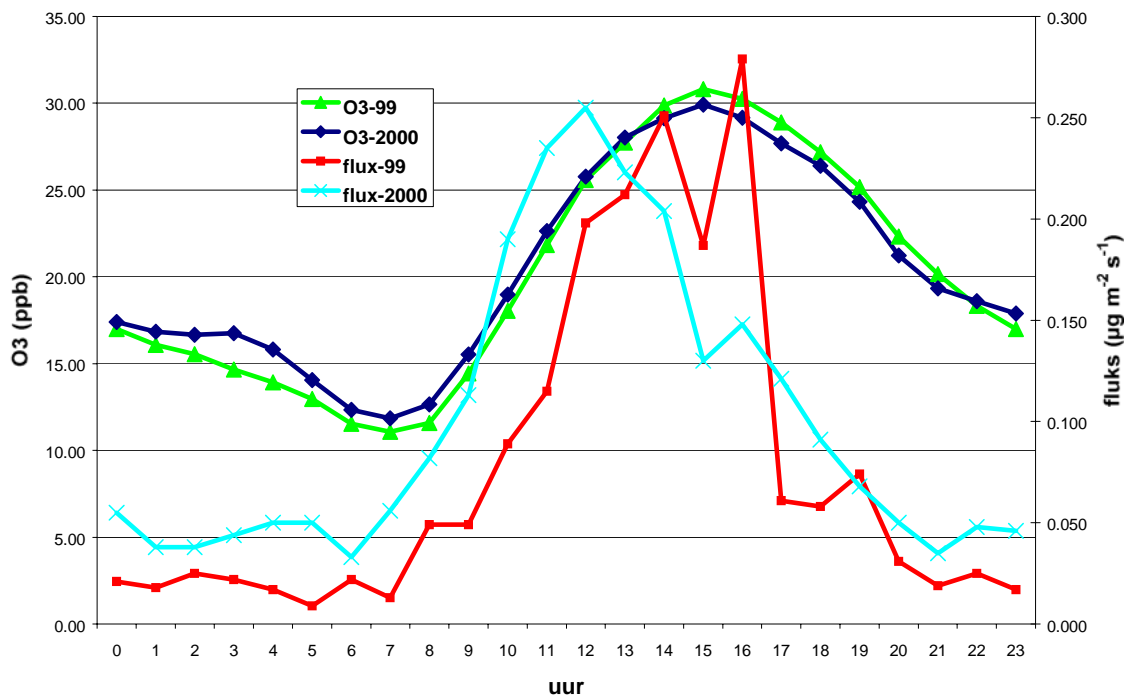
Tabel 18: Vergelijking depositiefluxen d.m.v. gradiëntmetingen en modellen (in  $\mu\text{g}/\text{m}^2\text{s}$ ) tijdens het meetjaar 1999.

<i>Maand</i>	<i>meting</i>	<i>model</i> <i>(Secrets)</i>	<i>model</i> <i>(Bald)</i>
1999-1	0.004	0.082	0.054
2	0	0.065	0.041
3	0	0.071	0.047
4	0	0.103	0.080
5	0	0.167	0.133
6	0.063	0.171	0.133
7	0.092	0.165	0.130
8	0.076	0.106	0.080
9	0.078	0.070	0.053
10	0	0.051	0.040
11	0	0.031	0.022
12	0	0.100	0.069

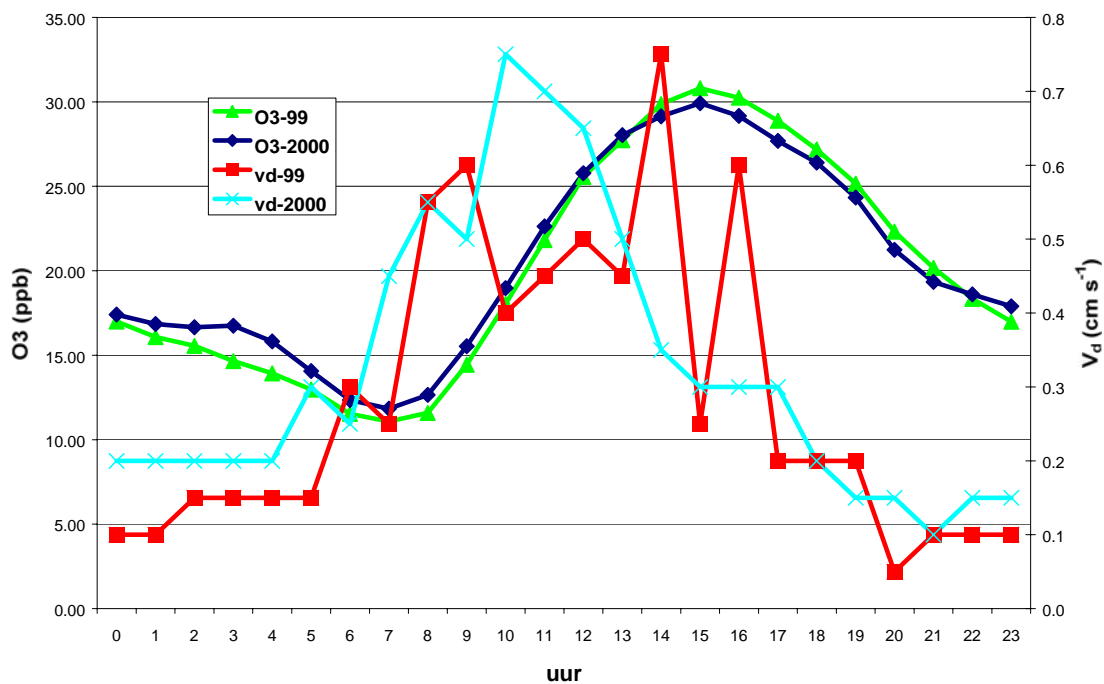
In 2000 liggen de meetwaarden doorgaans hoger dan de gemodelleerde waarden (enkel Baldocchi) alhoewel enige overeenkomst gevonden wordt voor de maanden februari, oktober, november en december (tabel 19). De onderschatting door modellen kan duiden op de aanwezigheid van andere ozonsinks buiten de klassieke stomatale opname.

Tabel 19: Vergelijking depositiefluxen d.m.v. gradiëntmetingen en modellen (in  $\mu\text{g}/\text{m}^2\text{s}$ ) tijdens het meetjaar 2000.

<i>Maand</i>	<i>meting</i>	<i>model</i>
2000-1	0.000	0.016
2	0.026	0.023
3	0.054	0.027
4	0.100	0.040
5	0.134	0.056
6	0.118	0.061
7	0.165	0.042
8	0.101	0.069
9	0.081	0.051
10	0.065	0.042
11	0.053	0.049
12	0.021	0.025



Figuur 3: Dagverloop van mediane ozonconcentraties en -fluxen



Figuur 4: Dagverloop van mediane ozonconcentraties en -depositiesnelheden

## 5. Conclusies

De monitoring van de luchtkwaliteit in het Grove dennenbestand geeft na 6 jaar een beter beeld van een mogelijke trend in de concentraties van gasvormige componenten. In eerste plaats is de voortgezette afname in SO<sub>2</sub>-concentratie een feit. Noch chronische noch acute kritieke normen worden voor zwavel overschreden. Er kan ook gewag gemaakt worden van een afname in stikstofoxiden, in het bijzonder voor NO. Voor NO<sub>x</sub> werd de chronische drempelwaarde (30 µg/m<sup>3</sup>) maar net overschreden. De afname van deze verzurende componenten wordt ook vastgesteld in de meetstations van de VMM alhoewel de snelheid van afname en de concentratieniveaus afhankelijk zijn van de graad van verstedelijking en industrialisering van de betreffende regio (VMM, 2000).

Afname van primaire pollutanten zoals NO<sub>x</sub> wordt ook elders in Europa vastgesteld (Kuebler et al., 2001; Barrett et al., 2000).

Ondanks de daling in hun precursoren, zijn secundaire pollutanten zoals ozon niet altijd onderhevig aan een trend. De Leeuw en De Paus (2001) melden dat de trend in ozonconcentratie sterk verschilt naargelang de regio in Europa. In NW-Europa worden zowel dalende als stijgende trends tijdens de laatste decade waargenomen. Trendstudie van gerapporteerde gegevens van EU lidstaten duiden er doorgaans op dat een significante trend ontbreekt. Ozonconcentraties van ongepollueerde luchtmassa's blijken daarentegen onderhevig te zijn aan een stijgende trend.

De eerste fluksmetingen van ammoniak werden verricht voor de tweede jaarhelft van 1999 en het volledige meetjaar 2000. In 1999 bedroeg de mediane fluks 0.037 µg/m<sup>2</sup>s (9.6 kg NH<sub>3</sub>-N/ha jaar). Voor 2000 bedroeg deze slechts 0.022 µg/m<sup>2</sup>s (6.0 kg NH<sub>3</sub>-N/ha jaar). De depositiesnelheden waren resp. 1.5 en 1.7 cm/s. Deze verschillen zijn eerder te wijten aan lagere concentratieniveaus van ammoniak in 2000 dan aan verschillen in turbulente diffusie. Duyzer et al. (1992) meten een droge depositiesnelheid in Speulderbos van 2.2 cm/s (overeenkomend met een ammoniakfluks van 40 kg NH<sub>3</sub>-N/ha jaar).

De rol van bladnatheid blijkt te verschillen naargelang het meetjaar. Bijkomende metingen zijn vereist om na te gaan door welke meteorologische omstandigheden ammoniakdepositie in het bestand (opname stomata, oplossing in waterfilm naaldoppervlak) gecontroleerd wordt.

Bij de bepaling van de depositiemetingen van ozon voor 1999 en 2000 werd gewezen op de grote verschillen tussen beide meetjaren. Wellicht speelt de wijziging van de meetmethodiek daarin een grote rol. De ozondepositie, in de eerste plaats gestuurd door stomatale geleidbaarheid, is in beide jaren onderhevig aan een duidelijke jaar- en dagcyclus. In 1999 wordt echter vóór juni 1999 geen depositie gemeten. Een verklaring voor de uitgesproken verschillen in dagverloop tussen fluks en depositiesnelheid tussen 1999 en 2000 zal wellicht ook gezocht moeten worden in mogelijke verschillen in stomatale geleidbaarheid tussen beide jaren, die een meteorologische achtergrond kunnen hebben.

Voor schatting van de ozondepositie via modellen is de bepaling van de stomatale geleidbaarheid van belang (Padro, 1996). Mikkelsen et al. (2000) wijzen ook op de aanwezigheid van andere ozonverwijderingsprocessen zoals reacties met plantoppervlakte, partikels, gassen zoals VOC (terpeenemissie door coniferen) en NO. De aanwezigheid van deze processen wordt geïllustreerd door het feit dat de ozondepositie 's nachts en buiten het groeiseizoen nog steeds verder doorgaat. Dergelijke processen zijn in de gebruikte modellen buiten beschouwing gelaten, vandaar wellicht de onderschatting van de fluksen in 2000.

## 6. Dankwoord

Wij danken Yves Buidin en Luc de Geest werkzaam om het Instituut voor Bosbouw en Wildbeheer (IBW) voor hun assistentie bij het verzamelen van gegevens en het onderhoud van het meetstation. Wij zijn Filip Coopman erkentelijk voor het verzorgen van de lay-out en druk van dit rapport.

## 7. Literatuur

Baldocchi D., Hick, B., Camara, P., 1987. A canopy stomatal resistance model for gaseous deposition to vegetated surfaces. *Atmospheric Environment* 21, 91-101.

Barrett, K., Schaug, J., Bartonova, A., Semb, A., Hjellbrekke, AG, Hanssen, JE, 2000. An contribution from CCC to the reevaluation of the observed trends in sulphur and nitrogen in Europe 1978-1998. Input for further evaluation by the national laboratories and for use in the TFMM assessment work. Norwegian Institute for Air Research, Kjeller, Norway, 193pp.

Peters, K., Bruckner-Schatt, 1995. The dry deposition of gaseous and particulate nitrogen compounds to a spruce stand. *Water, Air and Soil Pollution* 85, 2217-2222.

De Leeuw, F.A.M.n, De Paus T.A., 2001. Exceedance of EC ozone treshold values in Euorpe in 1997. *Water, Air and Soil Pollution* 128, 255-281.

Duyzer, J.H., Verhagen, H.L.M., Weststrate, J.H., Bosveld, F.C., 1992. Measurement of the dry deposition flux of NH<sub>3</sub> on to coniferous forest. *Environmental Pollution* 75 (1992), 3-13.

Dyer, A.J., Hicks, B.B., 1970. Flux-gradient relationships in the constant flux layer. *Quart.J.R. Met. Soc.* 96, 715-721.

Erisman, J., Wyers, G.P., 1993. Continuous measurements of surface exchange of SO<sub>2</sub> and NH<sub>3</sub>; implications for their possible interaction in the deposition process. *Atmospheric Environment* 27A, 1937-1949.

Erisman, J. W. & Draaijers, G. P. J., 1995. Atmospheric deposition in relation to acidification and eutrophication, Elsevier, *Studies in Environmental Science* 63, Amsterdam.

Fowler, D., Duyzer J.H., 1989. Micrometeorological techniques for the measurement of trace gas exchange. In: Andrae M.O. and Schimel D.S. (Eds.), *Exchange of trace gases between terrestrial ecosystems and the atmosphere*, John Wiley and Sons U.K.

Garland, J.A., 1978. Dry and wet removal of sulfur from the atmosphere. *Atmospheric Environment* 12, 349.

Hicks, B.B., Meyers, T.P. Baldocchi, D.D., 1988. Aerometric Measurement Requirements for Quantifying Dry Deposition. In *Principles of Environmental Sampling*. 297-315.

Kuebler, J., van den Bergh, H., Russell, A.G., 2000. Long-term trends of primary and secondary pollutant concentrations in Switzerland and their response to emission controls and economic changes. *Atmospheric Environment* 35, 1351-1363.

Mikkelsen, T.N., Ro-Poulsen, H., Pilegaard, K., Hovmand, M.F., Jensen, N.O., Christensen, C.S., Hummelshøj, P., 2000. Ozone uptake by an evergreen forest canopy: temporal variation and possible mechanisms. *Environmental Pollution* 109, 423-429.

Neiryneck, J., Roskams, P., 2000. Meetstation voor luchtverontreiniging Brasschaat. Jaarverslag 1995. Ministerie van de Vlaamse Gemeenschap. AMINAL. Instituut voor Bosbouw en Wildbeheer.

Overloop, S., Roskams, P., 1999. Meetstation voor luchtverontreiniging Brasschaat. Jaarverslag 1995. Ministerie van de Vlaamse Gemeenschap. AMINAL. Instituut voor Bosbouw en Wildbeheer.

Padro, J., 1996. Summary of ozone dry deposition velocity measurements and model estimates over vineyard, cotton, grass and deciduous forest in summer. *Atmospheric Environment* 30, 2363-2369.

Peters, K. & Bruckner-Schatt, G., 1995. The dry deposition of gaseous and particulate nitrogen compounds to a spruce stand. *Water, Air and Soil Pollution* 85, 2217-2222.

Sampson, D.A. and Ceulemans, R. 2000. SECRETS: Simulated carbon fluxes from a mixed coniferous/deciduous Belgian forest. In : *Forest Ecosystem Modelling, Upscaling and Remote Sensing*. Edited by R. Ceulemans, F. Veroustraete, V. Gond & J. Van Rensbergen. SPB Academic Publishing, The Hague; pp.95-108.

VMM, 2000. Lozingen in de lucht 1998-1999. Rapport Vlaamse Milieumaatschappij. Tekstgedeelte

Wyers, G. P., Otjes, R. P. & Slanina, J., 1993. A continuous-flow denuder for the measurement of ambient concentrations and surface-exchange fluxes of ammonia. *Atmospheric Environment*, 27A, 2085-2090.