



Rijksinstituut voor Volksgezondheid
en Milieu
*Ministerie van Volksgezondheid,
Welzijn en Sport*

Drogedepos metingen

Drogedepositiemetingen van ammoniak in
Natura 2000 gebied Bargerveen.

van ammoni

in Natura 2000



Rijksinstituut voor Volksgezondheid
en Milieu
*Ministerie van Volksgezondheid,
Welzijn en Sport*

Drogedepositiemetingen van ammoniak in Natura 2000-gebied Bargerveen.

RIVM Rapport 680029001/2014

Colofon

© RIVM 2014

Delen uit deze publicatie mogen worden overgenomen op voorwaarde van bronvermelding: Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM), de titel van de publicatie en het jaar van uitgave.

A.P. Stolk
H. Noordijk
M.C. van Zanten

Contact:
Margreet van Zanten
Centrum voor Milieukwaliteit
margreet.van.zanten@rivm.nl

Dit onderzoek werd verricht in opdracht van het ministerie van Economische Zaken, in het kader van Project 'Depositietingen in het kader van de PAS'. Het onderzoek is deels gefinancierd door de provincie Drenthe in het kader van een Interreg-project. Het onderzoek maakte tot eind 2012 deel uit van dit Interreg-project, waarbij zowel in het Nederlandse Bargerveen als in het Duitse Bourtanger Moor de stikstofbelasting werd onderzocht (Interreg, 2013).

Rapport in het kort

De gemiddelde droge depositie van ammoniak in Natura 2000-gebied Bargerveen (Drenthe) ligt per jaar tussen 7 en 10 kilo stikstof (N) per hectare. Dit blijkt uit metingen van het RIVM, die tussen september 2011 en september 2012 zijn uitgevoerd. Het is de eerste keer dat de droge depositie van ammoniak gerapporteerd wordt op basis van metingen met de zogeheten COTAG-opstelling (Conditional Time Averaged Gradient). Droge depositie is een proces waarbij ammoniak vanuit de lucht neerslaat, zonder dat daar neerslag aan te pas komt. Natura 2000 is een Europees netwerk van natuurgebieden waar planten en dieren worden beschermd.

De metingen zijn in opdracht van het ministerie van Economische Zaken uitgevoerd in het kader van de aanpak van de hoge stikstofdepositie op de Nederlandse natuur (Programmatische Aanpak Stikstof, PAS). Door een overmaat aan stikstof vermist de natuur, waardoor het aantal soorten dieren en planten afneemt. In Nederlandse natuurgebieden draagt ammoniak, dat voornamelijk afkomstig is uit de landbouw, in belangrijke mate bij aan de totale stikstofdepositie.

De totale stikstofdepositie op Natura 2000 gebieden wordt met modelberekeningen bepaald. Meetgegevens zijn belangrijk om de berekeningen te toetsen. De COTAG-opstelling is in het Verenigd Koninkrijk ontwikkeld en de afgelopen jaren binnen een Europees onderzoeksproject (NitroEurope) in meerdere landen gebruikt. Het meet de ammoniakconcentratie op twee hoogtes, waarna deze gegevens worden gecombineerd met meteorologische gegevens over windsnelheid en temperatuur om de droge depositie te bepalen. Meteorologische omstandigheden zijn namelijk van invloed op de mate waarin de concentraties tussen de twee hoogte 'uitwisselen'.

Op basis van de resultaten van dit eerste meetjaar lijkt de COTAG-meetopstelling geschikt om de droge ammoniakdepositie in Nederland te meten. De resultaten komen onder andere overeen met de metingen van de ammoniakconcentraties die vanuit het Meetnet Ammoniak in Natuurgebieden in Bargerveen zijn uitgevoerd. Dit meetnet, opgezet in 2005, meet de concentraties ammoniak in een zestigtal natuurgebieden in Nederland.

Abstract

The average dry deposition of ammonia in Natura 2000 area Bargerveen (in the province of Drenthe) is estimated to be 7-10 kilogram nitrogen (N) per hectare per year. This estimate is based on measurements by the RIVM, conducted for the first time with the so called COTAG (Conditional Time Averaged Gradient) instrument between September 2011 and September 2012.

Dry deposition is a process in which ammonia is deposited on the ground and vegetation without the aid of rain. Natura 2000 is a European network of nature areas in which vegetation and animals are being protected.

The measurements are conducted on behalf of the Ministry of Economic Affairs owing to high nitrogen deposition on Dutch nature areas (Integrated Approach to Nitrogen, PAS). Excessive nitrogen deposition leads to eutrophication which adversely affects biodiversity. In Dutch nature areas ammonia, which is mainly emitted by agricultural activities, has a large contribution to the total nitrogen deposition.

Total nitrogen deposition estimates for Natura 2000 areas are based on model calculations. Measurements are important in order to check the computations. The COTAG instrument was developed in the United Kingdom and was used in several countries within an European research project (NitroEurope) in the past years. The instrument measures ammonia concentrations at two heights; after combining these data with measurements of air temperature and wind velocity the dry deposition can be determined. Meteorological conditions namely influence the extent to which concentrations at two different heights mix.

Based on the first year of results, the COTAG appears to be suitable for measuring dry deposition of ammonia in the Netherlands. Among others the measurements match with ammonia concentration measurements obtained in Bargerveen within the Monitoring network Ammonia in Nature areas (MAN). This monitoring network, established in 2005, currently measures in sixty-odd nature areas in the Netherlands.

Inhoudsopgave

1	Inleiding–7
2	Meetpunten in het Bargerveen–8
3	Meetmethoden–10
3.1	Meetprincipe passieve samplers–10
3.2	Kwaliteitsbewaking passieve samplers–10
3.3	Meetprincipe COTAG-depositiemeetopstelling–12
3.4	Kwaliteitsbewaking COTAG–14
4	Resultaten–18
4.1	Passievasamplermetingen–18
4.2	Depositiemetingen–19
5	Vergelijking metingen met modelberekeningen–27
6	Discussie en conclusies–30
	Literatuur–31

Samenvatting

Voor het meten van de droge depositie van ammoniak in natuurgebieden is in september 2011 in Bargerveen een COTAG (Conditional Time Averaged Gradient) depositiemeetopstelling geplaatst. In Nederlandse natuurgebieden levert ammoniak in de lucht namelijk een belangrijke bijdrage aan de totale stikstofdepositie. Een overmaat aan stikstof leidt tot vermesting en verzuring van de bodem met verlies aan biodiversiteit tot gevolg. Een te hoge stikstofdepositie is, naast verdroging, in veel Natura 2000-gebieden de belangrijkste bedreiging voor de instandhouding van het gebied.

Om het gedrag van ammoniak in de Natura 2000-gebieden beter in beeld te krijgen is in 2005 het Meetnet Ammoniak in Natuurgebieden (MAN) opgezet. In dit meetnet wordt inmiddels in 61 natuurgebieden de maandgemiddelde ammoniakconcentratie gemeten met behulp van passieve samplers. Het Bargerveen maakt sinds februari 2008 met drie meetlocaties deel uit van het MAN. Om echter een uitspraak te kunnen doen over de stikstofbelasting in natuurgebieden op basis van metingen is vaststelling van de concentratie niet voldoende, maar zijn ook depositiemetingen nodig.

De droge depositie van ammoniak kan op verschillende manieren bepaald worden. Bij de meest toegepaste methoden wordt de concentratie op minimaal twee hoogtes gemeten om op die manier de gradiënt te bepalen. Als gelijktijdig de mate van uitwisseling met het oppervlak wordt gemeten, kan uit de combinatie van beide gegevens de droge depositie worden berekend. Bij de COTAG wordt – om de kosten te verlagen – niet continu de concentratiegradiënt bepaald, maar wordt een maandgemiddeld verticaal concentratieverschil gemeten onder geselecteerde turbulente condities. De COTAG-methode heeft hierdoor wel de beperking dat een beperkt deel van de droge depositie niet in beeld wordt gebracht. Verder zijn de metingen toepasbaar voor monitoring maar minder geschikt voor procesonderzoek.

Op basis van de resultaten van het eerste jaar meten lijkt de COTAG-meetopstelling geschikt voor het meten van de droge depositie van ammoniak. De concentratiemetingen stemmen goed overeen met de metingen zoals deze in het MAN met passieve samplers worden uitgevoerd. Ook laten de depositiemetingen uit de verschillende meetperioden consistente resultaten zien. Aangezien de COTAG echter een deel van de tijd niet meet, zullen de resultaten altijd, weliswaar beperkte, onderschattingen van de droge depositie zijn. Analyse van de vergelijkende drogedepositiemetingen tussen een tweede COTAG en een geavanceerdere DOAS (Differentiële Optische Absorptie Spectroscopie) - opstelling op de Veenkampen te Wageningen moet uitwijzen hoe groot een eventuele onderschatting van de droge depositie is onder Nederlandse meteorologische omstandigheden.

Op basis van de nu beschikbare metingen met de COTAG is de droge jaardepositie van ammoniak voor het Bargerveen vastgesteld op circa 7-10 kg N/ha/jr. Dit is gebaseerd op metingen die verricht zijn van september 2011 tot september 2012. Berekeningen met het OPS (Operationeel Prioritaire Stoffen) model voor de locatie van de COTAG geven voor realistische waarden van lokale parameters droge jaardepositiewaarden van ammoniak tussen de 8 en de 9 kg N/ha/jr. De berekende drogedepositiefluxen vallen hiermee binnen de bandbreedte van de meting en komen dus goed overeen.

1 Inleiding

In de Nederlandse natuurgebieden levert ammoniak in de lucht een belangrijke bijdrage aan de stikstofverrijking van deze gebieden. Door deze toename van de hoeveelheid stikstof wordt kenmerkende begroeiing verdrongen door algemene soorten zoals grassen, brandnetels, bramen en berken. Het gevolg is een afname van de biodiversiteit in het natuurgebied.

Om bijzondere natuurgebieden te beschermen zijn in EU-verband afspraken gemaakt. Volgens deze afspraken mag de natuur in deze zogenaamde Natura 2000-gebieden niet in kwaliteit achteruitgaan. In de Programmatische Aanpak Stikstof (PAS) wordt afgewogen in hoeverre, uitgaande van deze voorwaarde, er vergunningen voor stikstofemitterende activiteiten uitgegeven kunnen worden. In het kader van de PAS wordt de depositie van stikstof op de voor stikstofgevoelige Natura 2000-gebieden gedetailleerd in kaart gebracht. De depositie van ammoniak speelt daarin een belangrijke rol.

Om het gedrag van ammoniak in de Natura 2000-gebieden beter in beeld te krijgen is in 2005 het Meetnet Ammoniak in Natuurgebieden (MAN) van start gegaan. In dit meetnet werd aanvankelijk in 21 Natura 2000-gebieden de ammoniakconcentratie gemeten met behulp van passieve samplers. Inmiddels is dit meetnet uitgebreid naar 61 gebieden en zal het onderdeel gaan uitmaken van de monitoring in de PAS.

Ook het Bargerveen maakt sinds februari 2008 met drie meetlocaties deel uit van het MAN. Om echter een uitspraak te kunnen doen over de stikstofbelasting in natuurgebieden is meting van de concentratie niet voldoende, maar zijn ook depositiemetingen gewenst.

In het kader van dit project is alleen de droge depositie van ammoniak gemeten, enerzijds omdat de droge depositie van ammoniak (meestal) het grootste deel uitmaakt van de totale stikstofdepositie in Nederland, en anderzijds omdat de droge depositie van ammoniak in Nederlandse natuurgebieden nog weinig door metingen in kaart is gebracht. Voor het meten van de droge depositie in natuurgebieden is daarom in september 2011 in het Bargerveen een COTAG (Conditional Time Averaged Gradient) depositiemeetopstelling geplaatst. De COTAG-opstelling is ontwikkeld door het Centre for Ecology and Hydrology in Schotland (Famulari et al., 2010) en is ingezet voor drogedepositiemetingen van ammoniak in het kader van het Europese NitroEurope-project.

Afhankelijk van de ondergrond (soort vegetatie, hoeveelheid stikstof in plant en bodem) en de heersende meteorologische condities (vochtigheid, turbulentie) vindt er bij een gegeven luchtconcentratie meer of minder uitwisseling (droge depositie) met de ondergrond plaats. De droge depositie is dus de hoeveelheid gasvormig ammoniak of stikstofoxiden die rechtstreeks vanuit de lucht in een natuurgebied neerslaat. Naast belasting door droge depositie wordt het gebied ook belast door natte depositie van ammoniak en stikstofoxiden. Deze wordt veroorzaakt doordat, bijvoorbeeld, ammoniak oplost in regendruppels tot ammonium. Wanneer deze regen in het natuurgebied valt, levert dit een extra belasting met stikstof op.

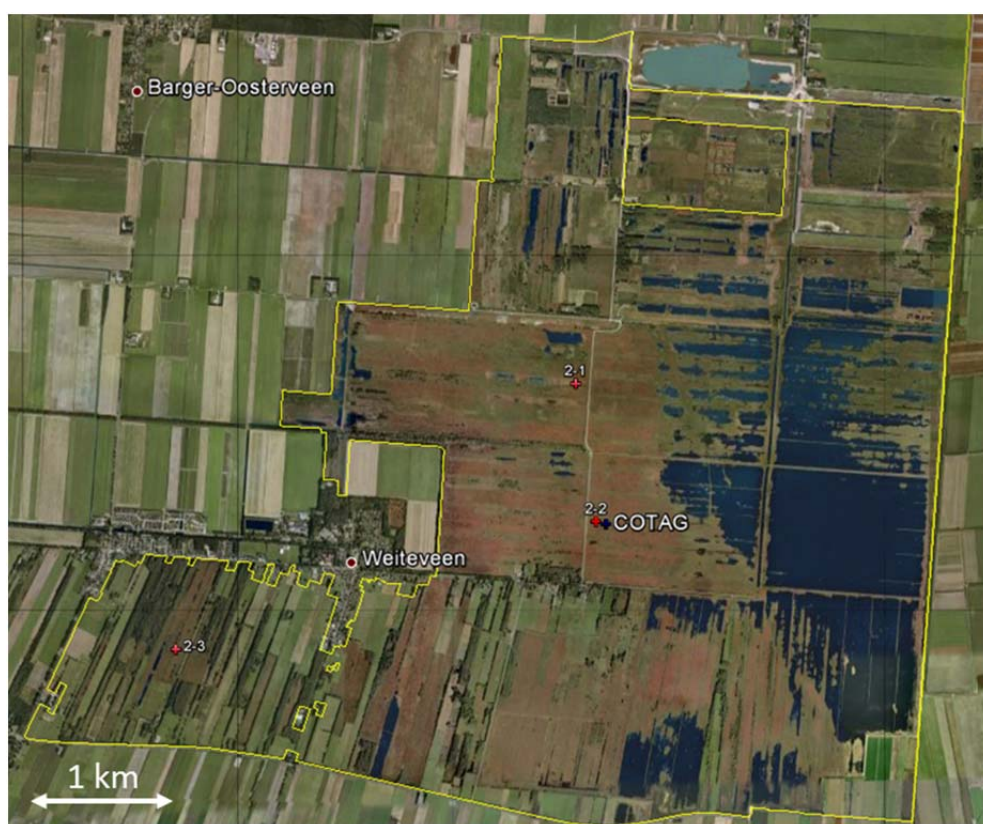
In deze rapportage worden de resultaten van zowel de passievasamplermetingen uit het MAN als van de depositiemeetopstelling gepresenteerd.

2 Meetpunten in het Bargerveen

In Figuur 1 zijn de meetlocaties in het Bargerveen weergegeven. De meetpunten met de passieve samplers liggen:

- in het noorden (Amsterdamseveld noord; meetpunt 2-1);
- in het midden (Amsterdamseveld zuid; meetpunt 2-2);
- in het zuidwesten (Schoonebeekerveld; meetpunt 2-3) van het gebied.

Op zo'n 100 meter ten oosten van meetpunt 2-2 ligt de locatie van de COTAG-depositiemeetopstelling.



Figuur 1 Meetlocaties in het Bargerveen. De rode markeringen geven de meetlocaties van de passieve samplers weer. De blauwe markering toont de plaats van de COTAG-depositiemeetopstelling.

Op de meetpunten met passieve samplers worden al sinds maart 2008 metingen verricht. Om de nauwkeurigheid van deze metingen te verhogen worden sinds september 2011 op meetpunt 2-2 de metingen in drievoud uitgevoerd, een zogeheten triplometing. Vanaf dat moment zijn ook de metingen met de COTAG in het Bargerveen van start gegaan (zie Figuur 2 en Figuur 3). Om de metingen van passieve samplers en COTAG zo goed mogelijk op elkaar aan te laten sluiten wordt ernaar gestreefd de monsterperioden zo veel mogelijk samen te laten vallen. Dit betekent dat de verwisseling van de monsters in beide gevallen maandelijks rond de 28ste van de maand wordt uitgevoerd.

De locaties van de meetpunten zijn zodanig gekozen dat zij een goede beschrijving geven van de in het Bargerveen heersende ammoniakconcentraties. Tevens is het voor een depositiemeetopstelling van belang dat er zich op korte

afstand geen grote bronnen van ammoniak bevinden en dat de opstelling rondom een obstakelvrije aanstroming heeft van zo'n 300 meter. Om de kosten voor installatie van de opstelling zoveel mogelijk te beperken is de keuze voor de meetlocatie van de COTAG mede bepaald door de aanwezigheid van een stroomvoorziening op niet al te grote afstand van de gewenste meetlocatie.



Figuur 2 Plaatsing van de passieve samplers op meetpunt 2-2

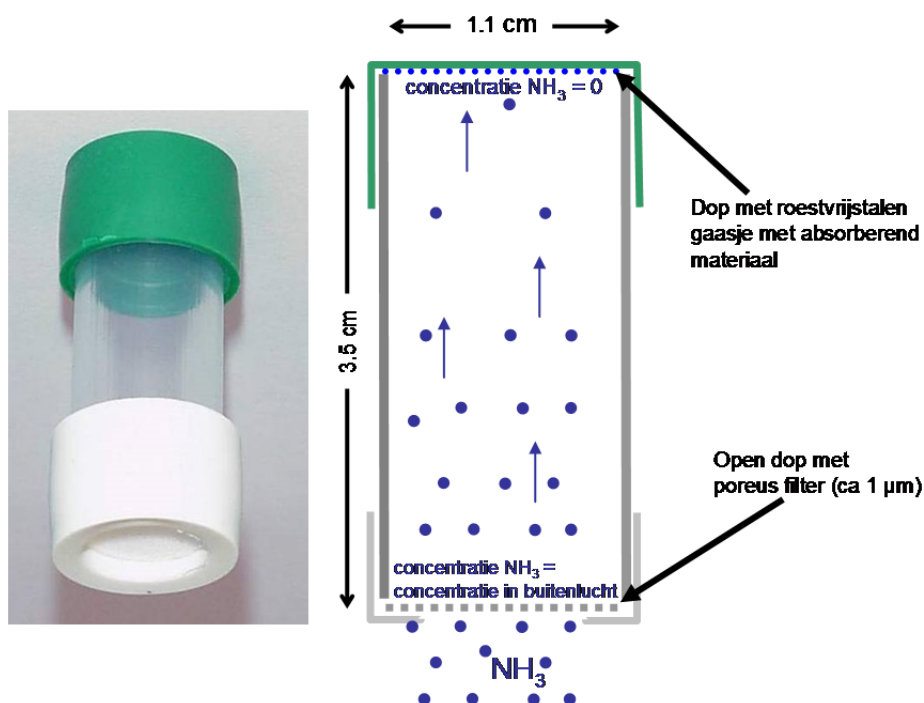


Figuur 3 De meetmast van de COTAG-depositiemeetopstelling

3 Meetmethoden

3.1 Meetprincipe passieve samplers

In het MAN worden de ammoniakconcentraties gemeten met zogeheten passieve samplers. Het gebruikte type bestaat uit een teflon buisje, dat aan de boven- en onderzijde is voorzien van een dop. In de bovenste dop bevindt zich een roestvrijstalen gaasje waarop zich absorptiemateriaal bevindt. In de dop aan de onderzijde bevindt zich een poreus filter (zie Figuur 4). Dit filter dient de versturende invloed van wind in de sampler zelf tegen gaan en opname van aerosolen te voorkomen.



Figuur 4 Schematische weergave van een passieve sampler

In de sampler reageert de ammoniak met het absorptiemateriaal op het roestvrijstalen gaasje. De ammoniak wordt daarbij omgezet in ammonium. Door deze omzetting is de ammoniakconcentratie bij het gaasje nul. Aan de andere zijde wordt de sampler blootgesteld aan de heersende concentratie ammoniak in de buitenlucht. Vanwege de concentratiegradiënt in de sampler vindt er via diffusie transport van ammoniak naar het absorptiemateriaal plaats. De totale hoeveelheid gebonden ammonium wordt na afloop van de veldmeting in het laboratorium bepaald. Hieruit kan vervolgens de gemiddelde ammoniakconcentratie in de lucht tijdens de blootstellingsperiode worden afgeleid.

3.2 Kwaliteitsbewaking passieve samplers

De in het MAN gebruikte samplers hangen vrij in het veld. Hierdoor kunnen naast temperatuur en druk ook andere blootstellingscondities van invloed zijn op de gevoeligheid van de samplers. Denk hierbij aan regen, vocht en wind (CEN 13528, 2003). Ook bij productie, transport, behandeling en analyse van de samplers kunnen zich omstandigheden voordoen die van invloed zijn op de

prestaties van de samplers. Voor een deel kan deze invloed worden ondervangen door gebruik te maken van blanco samplers. Voor elke maandelijkse meetperiode worden hiervoor vier samplers gebruikt. Met de resultaten die uit deze metingen komen, worden de samplers uit het veld gecorrigeerd.

Om de passieve samplermetingen te kalibreren wordt echter gebruik gemaakt van ammoniakmetingen die worden uitgevoerd in het Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit (LML). In dit meetnet worden op een groot aantal locaties in Nederland verschillende luchtverontreinigende stoffen gemeten, waaronder ammoniak (zie van Elzakker, 2001). Voor de meting van ammoniak wordt in het LML gebruik gemaakt van geavanceerde meetapparatuur waarmee met een hoge tijdsresolutie de ammoniakconcentratie nauwkeurig gemeten kan worden.

Voor vergelijking van de passieve samplers met de LML-metingen worden gelijktijdig met de veldmetingen op zes meetstations van het LML drie samplers opgehangen (zie Figuur 5). De keuze van de locaties is hierbij zodanig dat een groot bereik aan ammoniakconcentraties wordt gedekt. Aan de hand van deze metingen worden vervolgens de veldmetingen gekalibreerd.



Figuur 5 Meetstations van het LML die gebruikt worden voor kalibratie van de passieve samplers

Na kalibratie van de metingen volgt nog een validatieprocedure waarbij alle metingen kritisch bekeken worden en eventuele uitbijters en verstoorde metingen worden verwijderd.

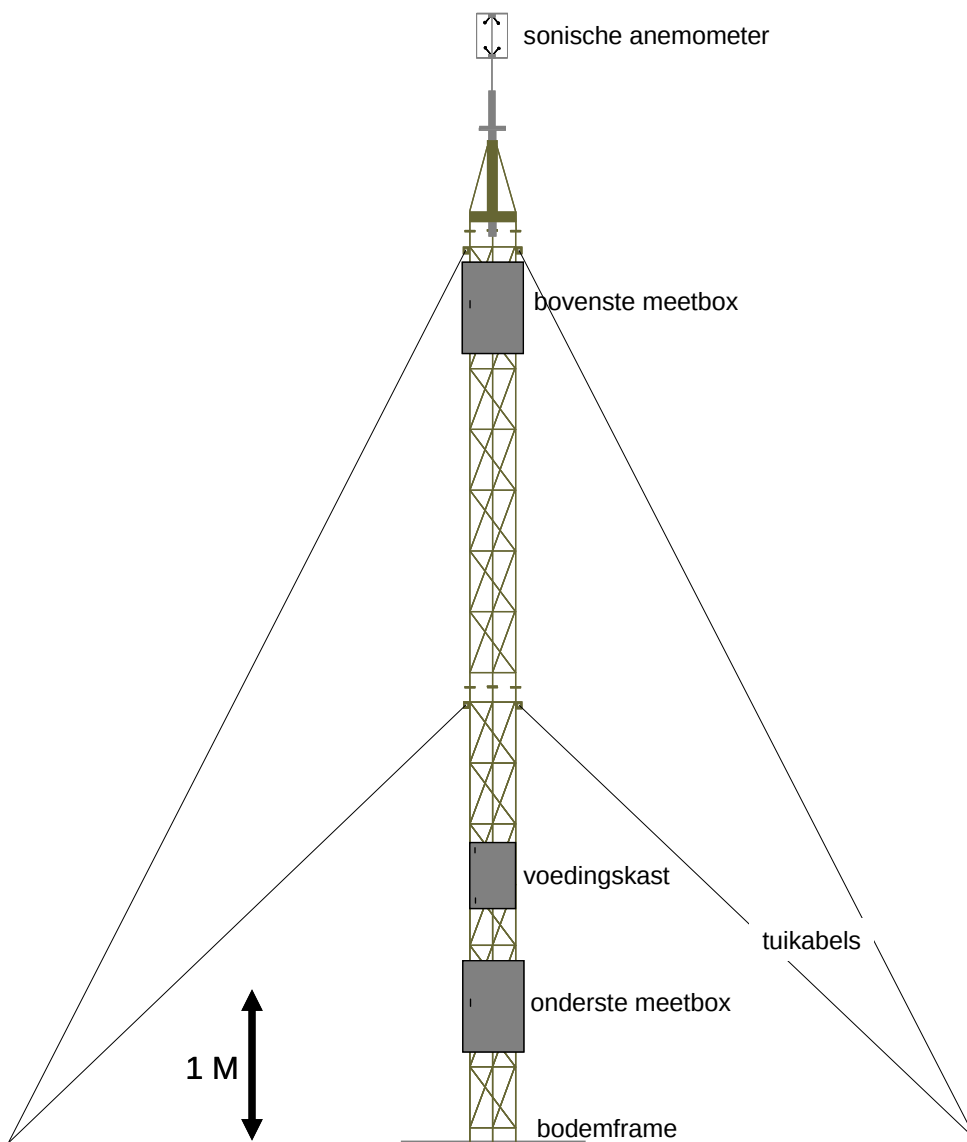
Een uitgebreide beschrijving van de kalibratie- en validatieprocedure is te vinden in Stolk et al. (2009).

3.3 Meetprincipe COTAG-depositiemeetopstelling

De droge depositie van ammoniak kan op verschillende manieren bepaald worden. Bij de meest toegepaste methoden wordt de ammoniakconcentratie op minimaal twee hoogtes boven de vegetatie gemeten. Omdat ammoniak bij de vegetatie wordt weggevangen is de concentratie net boven de vegetatie lager dan op grotere hoogte boven de vegetatie. De mate van turbulentie bepaalt hierbij de snelheid waarmee de ammoniak naar de vegetatie wordt getransporteerd. Wanneer nu zowel de mate van turbulentie als de concentratiegradiënt boven de vegetatie worden gemeten, kan hieruit de grootte van de ammoniakdepositie worden berekend.

Gedetailleerde depositiemetingen zijn erg kostbaar, omdat voortdurend hele kleine concentratieverschillen gemeten moeten worden. Dit stelt hoge eisen aan de te gebruiken apparatuur. Met de COTAG-meetopstelling (zie Famulari et al., 2010) is getracht de kosten van de meting te reduceren door niet continu zowel de concentratiegradiënt en de mate van turbulentie vast te stellen, maar door slechts een gemiddeld concentratieverschil onder geselecteerde turbulente condities vast te stellen. Onder condities met weinig turbulentie wordt niet gemeten. Op verschillende hoogtes kunnen dan weliswaar grote concentratieverschillen voorkomen, maar vanwege de beperkte turbulente uitwisseling is de droge depositie dan erg klein. De COTAG-methode heeft hierdoor wel de beperking dat een klein deel van de droge depositie niet in beeld wordt gebracht. Bij onderzoek aan de COTAG in Schotland (Famulari et al., 2010) is vastgesteld dat de onderschatting van de depositie voor zwaveldioxide circa 20 procent bedroeg. In hoeverre deze waarde bruikbaar is voor de meting van de ammoniakdepositie onder Nederlandse omstandigheden is nog onduidelijk. Momenteel loopt hiernaar een onderzoek, waarbij de metingen van de COTAG vergeleken worden met een meetopstelling die met een hoge tijdsresolutie de depositie meet. Een ander nadeel van de COTAG is dat er slechts één waarde voor de gemiddelde droge depositie over langere tijd kan worden afgeleid. Problemen met de meetopstelling kan dan snel leiden tot een groot verlies aan meetdata.

De COTAG-meetopstelling bestaat uit een zes meter hoge meetmast met daarin een voedingskast en twee meetboxen (zie Figuur 6). Op de top van de mast staat een sonische anemometer, waarmee de mate van turbulentie, de windrichting en de windsnelheid kunnen worden bepaald.



Figuur 6 Schematische weergave van de COTAG-meetopstelling

In elk van de twee meetboxen bevinden zich een aantal glazen buisjes die gecoat zijn met citroenzuur. Deze stof reageert met de ammoniak in de lucht onder de vorming van ammoniumcitraat. Vervolgens wordt de verzamelde hoeveelheid ammoniak in de buisjes in het laboratorium als ammonium gemeten.

Wanneer de mate van turbulentie voldoet aan de gestelde voorwaarden, wordt lucht door drie buisjes in zowel de onderste als de bovenste meetbox gezogen. Er worden drie buisjes gebruikt om de nauwkeurigheid in de metingen te verhogen. De resultaten van deze drievoudige metingen worden uiteindelijk gemiddeld en gebruikt om het concentratieverschil tussen de bovenste en onderste meetbox vast te stellen.

In de opstelling zitten zowel boven als onder in totaal twee sets van drie buisjes. Eén set wordt gebruikt wanneer de turbulente condities neutraal zijn. De andere set wordt gebruikt onder onstabiele omstandigheden. Door voor verschillende

turbulente condities aparte sets meetbuizen te gebruiken kan de depositie nauwkeuriger worden gemeten, omdat de mate van uitwisseling onder beide omstandigheden verschillend is.

Onder zeer onstabiele condities en onder stabiele condities wordt geen depositie gemeten. In deze situaties wordt in de onderste box de lucht door een aparte meetbuis gezogen, zodat toch over de hele meetperiode een gemiddelde concentratie kan worden bepaald. In paragraaf 4.2 wordt dieper ingegaan op de manier waarop de COTAG omgaat met het meten onder deze verschillende condities.

Omdat tijdens het verzamelen van de ammoniak ook voortdurend de luchtdoorvoer door de buisjes is gemeten, kan de maandgemiddelde ammoniakconcentratie op beide meethoogtes berekend worden. Daarnaast is gedurende de hele meetperiode met de sonische anemometer de turbulentie (i.c. de wrijvingssnelheid u_*) gemeten. Hieruit wordt een gemiddelde turbulente uitwisselingscoëfficiënt afgeleid. Vervolgens wordt de depositie van ammoniak berekend uit het concentratieverschil tussen de twee meetboxen en de gemiddelde turbulente uitwisselingscoëfficiënt.

3.4 Kwaliteitsbewaking COTAG

Chemische analyse

Om contaminatie van de buizen tijdens productie, transport en opslag zoveel mogelijk te voorkomen worden bij alle handelingen met de buizen vinyl handschoenen gebruikt. Zodra de buizen zijn gereinigd en gecoat, worden zij aan beide zijden afgesloten met een dop om opname tijdens opslag en transport zoveel mogelijk te voorkomen. Tevens worden zij bewaard in een afgesloten doos samen met een vel met citroenzuur geïmpregneerd vloeipapier. Eventueel in de doos aanwezig ammoniak zal dan voornamelijk opgenomen worden door het filtreerpapier en niet door de meetbuis.

Om de invloed van contaminatie verder uit te sluiten wordt bij elke meetserie een set van drie blanco buizen geprepareerd. Hiermee worden verontreinigings-effecten in het monstermateriaal als gevolg van schoonmaak, preparatie, opslag, transport en analyse geminimaliseerd. De analyseresultaten van de meetbuizen worden met deze blanco metingen gecorrigeerd.

Daarnaast worden de buizen van de profielmetingen altijd in drievoud gemeten en vervolgens gemiddeld om de meetonzekerheid zo klein mogelijk te houden.

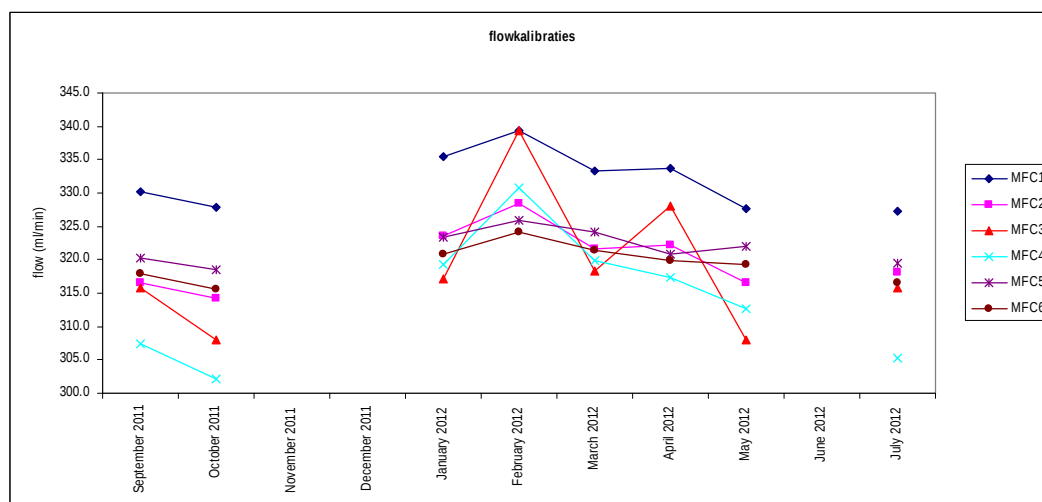
Nadat de buizen in het veld bezogen zijn, wordt in het laboratorium de geaccumuleerde hoeveelheid ammonium bepaald. Deze meting vindt plaats volgens een onder NEN-EN-ISO/IEC 17025 geaccrediteerde methode.

Flowkalibratie

Om een concentratieverschil te kunnen meten is niet alleen de geaccumuleerde hoeveelheid ammonium van belang, maar ook de hoeveelheid lucht waaruit deze afkomstig is. Om deze hoeveelheid nauwkeurig te kunnen regelen en bepalen is de meetopstelling voorzien van zes massaflowcontrollers.

Tijdens de meetperiode wordt de flow door de buizen vastgelegd door een in de meetopstelling aanwezige datalogger. Hiermee wordt tevens het totaal doorgezogen volume per meetbuis geregistreerd. Om het exacte doorgezogen volume per meetbuis vast te stellen wordt aan het begin en einde van iedere meetperiode de door de massaflowcontrollers geregelde flow gekalibreerd met

behelp van een gekalibreerde massaflowmeter. Met dit apparaat wordt een temperatuur- en drukonafhankelijke flowmeting uitgevoerd. Aan de hand van deze metingen vindt een correctie plaats van het per meetbuis geregistreerde totaalvolume.

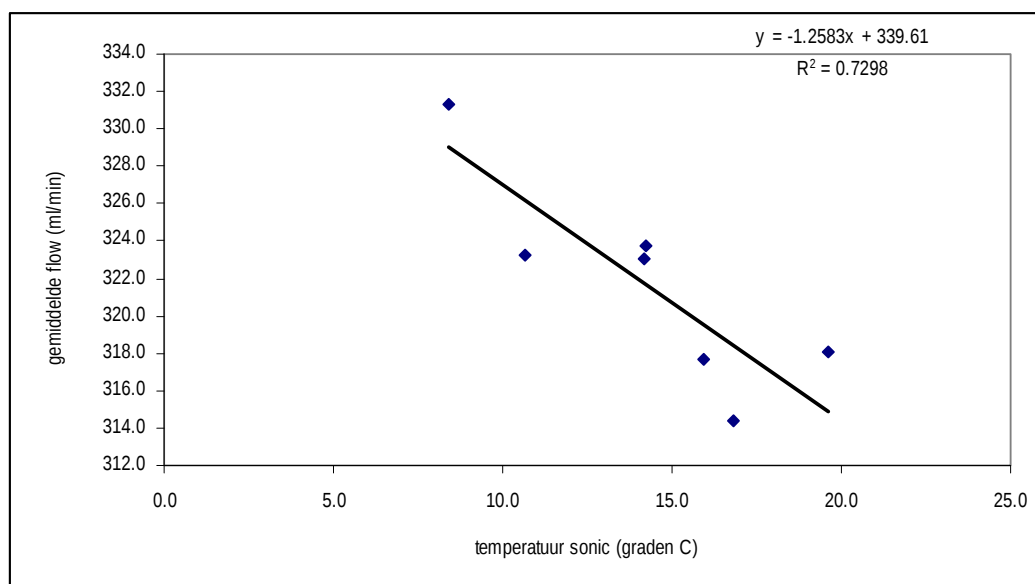


Figuur 7 Resultaten van de flowkalibraties [ml/min]

In Figuur 7 staan de resultaten van de maandelijkse flowkalibraties weergegeven. De resultaten zijn herleid naar standaard druk (1013,25 hPa) en een luchttemperatuur van 20 °C. De grafiek toont de metingen van de zes verschillende massaflowcontrollers (MFC's). MFC 1 t/m 3 regelen de luchtflow van de onderste meetbox. MFC 4 t/m 6 doen dat voor de bovenste meetbox.

Uit Figuur 7 blijkt dat voor vrijwel alle massaflowcontrollers het verschil tussen opeenvolgende kalibraties gering is. Bij massaflowcontroller 3 zijn deze verschillen wat groter, maar blijven ook in dit geval altijd onder de 8 procent. De invloed van een sprong in de luchtflow op het eindresultaat zal altijd kleiner zijn dan dit individuele verschil, omdat de gemiddelde flow in de meetperiode tussen de bij de kalibraties gemeten flowwaarden zal liggen. Bovendien wordt de luchtconcentratie berekend uit het gemiddelde over drie meetbuizen. De invloed van een individuele sprong op het eindresultaat wordt hierdoor nog verder beperkt.

Verder blijkt uit Figuur 7 dat bij veranderingen tussen opeenvolgende flowmetingen de veranderingen tussen de verschillende massaflowcontrollers correleren. Deze verandering vertoont verband met de temperatuur (zie Figuur 8). Doordat deze verschillen tussen de massaflowcontrollers correleren, is de bijdrage aan de meetonzekerheid in de depositieflux beperkt, omdat het bij een depositiemeting gaat om een verschilmeting.



Figuur 8 Relatie tussen de gemiddelde flow [ml/min] van alle massaflowcontrollers en de met de sonische anemometer gemeten luchttemperatuur

Gemiddeld gesproken blijft de invloed van de meetonzekerheid in de flowmeting op het eindresultaat beperkt tot minder dan 3 procent.

Uiteindelijk resulteert de meetonzekerheid in de flowmeting in een onzekerheid in de luchtconcentratie. Omdat alle concentraties die gebruikt worden voor de depositiebepaling in drievoud gemeten worden, is de spreiding tussen deze triplometingen een maat voor de onnauwkeurigheid ervan. In paragraaf 4.2 zal hier nog verder op worden ingegaan.

Validatie

Na afloop van een set metingen worden de meetresultaten gevalideerd. In theorie kunnen buizen gecontamineerd of slecht gecoat zijn. Dit resulteert in afwijkende lage of hoge meetwaarden. Daarom wordt er bij de validatie getoetst of er in de blanco's of triplo's van de profielmetingen uitbijters voorkomen. Indien dit het geval is, worden deze afgekeurd. Bij de metingen die in deze rapportage vermeld worden, is dit echter nog niet voorgekomen. Ook wordt getoetst of er geen grote variatie is tussen de opeenvolgende flowkalibraties.

Kwantificering niet gemeten deel van de droge depositie

Omdat de COTAG niet onder alle weersomstandigheden de depositie meet, zal de vastgestelde depositie altijd iets lager zijn dan de werkelijke droge depositie. Ook bij weinig turbulentie zal er immers toch nog sprake zijn van enige depositie.

Uit de metingen tot nog toe blijkt dat de COTAG gedurende ongeveer twee derde deel van een meetperiode gradiëntmetingen uitvoert en dat gedurende een derde deel van de tijd de opstelling in de UIT-stand staat, waarbij slechts de ammoniakconcentratie in de onderste box wordt gemeten. Uit analyse van de geregistreerde stabiliteiten blijkt dat wanneer de COTAG in de UIT-stand staat, in circa 80 procent van de gevallen de atmosfeer te stabiel is en in circa 20 procent van de gevallen te onstabiel. Zie in dit kader ook paragraaf 4.2, waar verder ingegaan zal worden op de manier waarop de COTAG omgaat met het meten onder deze verschillende condities

Bij onderzoek onder Schotse omstandigheden is vastgesteld dat het door de COTAG niet gemeten deel van de depositie circa 20 procent bedraagt (zie Famulari et al., 2010). Om het niet gemeten deel van de droge depositie onder Nederlandse meteorologische omstandigheden te kunnen kwantificeren is in 2012 op meetveld "de Veenkampen" van de Universiteit Wageningen een tweede COTAG-meetopstelling geplaatst. Op deze meetlocatie kunnen de metingen van de COTAG vergeleken worden met de metingen van een DOAS-depositiemeetopstelling (zie Volten et al., 2012). Deze opstelling meet per dertig minuten de droge depositie van ammoniak en is dus in staat om de depositie tijdens de UIT-stand van de COTAG te kunnen kwantificeren. Tevens kan de opstelling gebruikt worden om de door de COTAG vastgestelde deposities onder neutrale en onstabiele omstandigheden te verifiëren. De vergelijking tussen deze twee meetmethoden heeft op dit moment nog niet plaatsgevonden.

4 Resultaten

4.1 Passievesamplermetingen

Gebruikte meetgegevens

In deze paragraaf worden de meetresultaten van de passieve samplers in het Bargerveen gepresenteerd. Hiervoor is gebruik gemaakt van de gevalideerde meetresultaten uit de periode van maart 2008 tot februari 2013.

Bij de passievesamplermetingen heeft een enkele meetwaarde een beperkte zeggingskracht, omdat de meetonzekerheid ongeveer 40 procent bedraagt. Om deze reden worden in deze rapportage kwartaalgemiddelden gepresenteerd. Hiervoor is de meetonzekerheid rond de 20-25 procent.

In paragraaf 4.2 zijn voor de vergelijking tussen de COTAG en de passievesamplermetingen maandelijkse meetwaarden gebruikt, omdat sinds medio 2011 op meetpunt 2.2 de passievesamplermetingen in drievoud worden uitgevoerd. De gepresenteerde waarden betreffen het gemiddelde van deze triplometing.

Ammoniakconcentraties Bargerveen

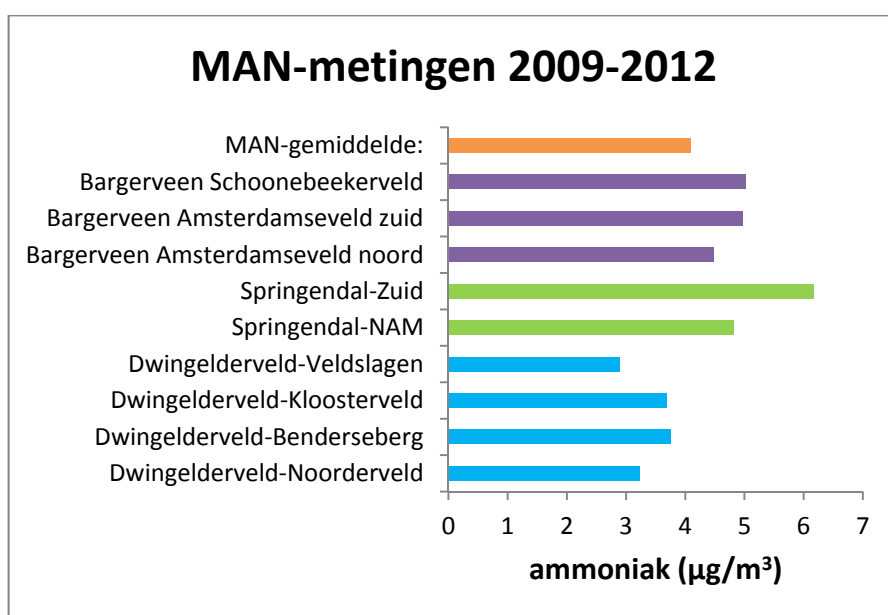
Tabel 1 toont de driemaandsgemiddelde ammoniakconcentraties van het Bargerveen uit de periode van 2008 tot en met 2012. Indien één maandwaarde ontbreekt, wordt deze geschat met behulp van gap-filling op basis van metingen van de omliggende meetpunten binnen hetzelfde gebied (indien beschikbaar) of uit gebieden in de nabije omgeving. Er wordt geen gemiddelde berekend wanneer er twee of drie maanden ontbreken. Dit is de standaardprocedure voor het berekenen van een driemaandsgemiddelde binnen het MAN.

*Tabel 1 Overzicht van de in het Bargerveen gemeten driemaandsgemiddelde ammoniakconcentraties [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]. Ter vergelijking worden ook de gemiddelde concentratie over alle meetlocaties in het MAN gepresenteerd. Een * achter de concentratie betekent dat er bij de bepaling van het driemaandsgemiddelde gebruik gemaakt is van een maandwaarde die op basis van gap-filling tot stand is gekomen.*

		2-1	2-2	2-3	MAN
Feb-april	2008	4,2*	4,3*	3,8*	4,3
Mei-juli		7,5	6,1*	5,5	5,9
Aug-okt		3,7	4,1*	4,0	3,9
Nov-jan		1,4	2,2	2,3	2,6
Feb-april	2009	5,4	6,7	5,7	5,1
Mei-juli		3,4	3,7	3,7	4,5
Aug-okt		4,7	6,1	4,8	5,1
Nov-jan		2,8	2,8	2,6	2,4
Feb-april	2010	4,8	6,2	6,1	4,6
Mei-juli		4,7	4,8	5,7	5,4
Aug-okt		4,5*	4,2	4,3	3,8
Nov-jan		1,8	1,9	1,8	2,7
Feb-april	2011	9,0	8,9	7,3	6,6
Mei-juli		4,5	5,6*	6,6	5,3
Aug-okt		4,8*	4,7*	5,7	3,9
Nov-jan		2,6*	3,3	2,7*	2,8

Feb-april		7,6	7,1	7,9*	6,2
Mei-juli	2012	4,6*	4,7	6,0*	4,8
Aug-okt		4,6	5,0	5,3*	4,5
Nov-jan		2,4	2,7	3,1	2,2

De in 2009-2012 gemeten ammoniakconcentraties in het Bargerveen zijn hoger dan in het westelijker gelegen Dwingelderveld, maar lager dan het Twentse Springendal (Figuur 9). De concentraties zijn iets verhoogd ten opzichte van wat er gemiddeld over heel Nederland in het MAN is gemeten. De verschillen tussen de meetpunten in het Bargerveen zijn gemiddeld genomen kleiner dan $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$.



Figuur 9 Vergelijking van de in 2009-2012 gemeten ammoniakconcentraties [$\mu\text{g}/\text{m}^3$] in het Bargerveen met die in nabijgelegen gebieden binnen het MAN en het gemiddelde over Nederland

4.2 Depositietmetingen

De depositietmetingen met de COTAG-meetopstelling zijn van start gegaan in september 2011. Tot en met augustus 2012 zijn in totaal gedurende acht maandelijkse perioden geslaagde depositietmetingen uitgevoerd. In de overige perioden zijn de metingen niet gelukt door problemen met de stroomvoorziening (november 2011 tot medio januari 2012 en juni 2012) en door een technisch probleem aan de meetopstelling (augustus 2012).

Meteorologische condities

Met de COTAG-opstelling worden met behulp van een sonische anemometer de windsnelheid, windrichting en de stabiliteit van de atmosfeer bepaald. Op basis van deze metingen wordt bepaald of er een ammoniakgradiënt moet worden gemeten en, zo ja, welke set buizen bemonsterd moet worden.

Als maat voor het vaststellen van de stabiliteit van de atmosfeer wordt de waarde van $(z-d)/L$ gebruikt. Hierbij staat z voor de meethoogte van de sonische anemometer; in het Bargerveen is deze zeven meter. d is de verplaatsingshoogte; deze hoogte staat voor de fictieve verplaatsing van het werkelijke grondvlak vanwege de aanwezigheid van vegetatie op het grondvlak.

Voor een vegetatie met veel Molinea, zoals in de omgeving van de meetmast, is deze verplaatsingshoogte circa 0,36 m (Moors et al., 1998). L staat voor de Obhukovlengte (zie bijvoorbeeld Stull, 1989) en is een maat voor de stabiliteit van de atmosfeer. De waarde hiervan wordt afgeleid uit de turbulentiemetingen met de sonische anemometer.

Indien de waarde van $(z-d)/L$ positief is, is de atmosfeer stabiel en wordt de uitwisseling met het aardoppervlak onderdrukt. Bij een negatieve waarde is de atmosfeer onstabiel. Convectie (opstijgende bellen warme lucht) zorgt dan voor een heel gemakkelijke uitwisseling met het aardoppervlak. Is de waarde rond nul, dan is de atmosfeer neutraal. In dat geval zorgt de wind voor veel turbulentie. Ook dit zorgt voor een gemakkelijke uitwisseling met het aardoppervlak.

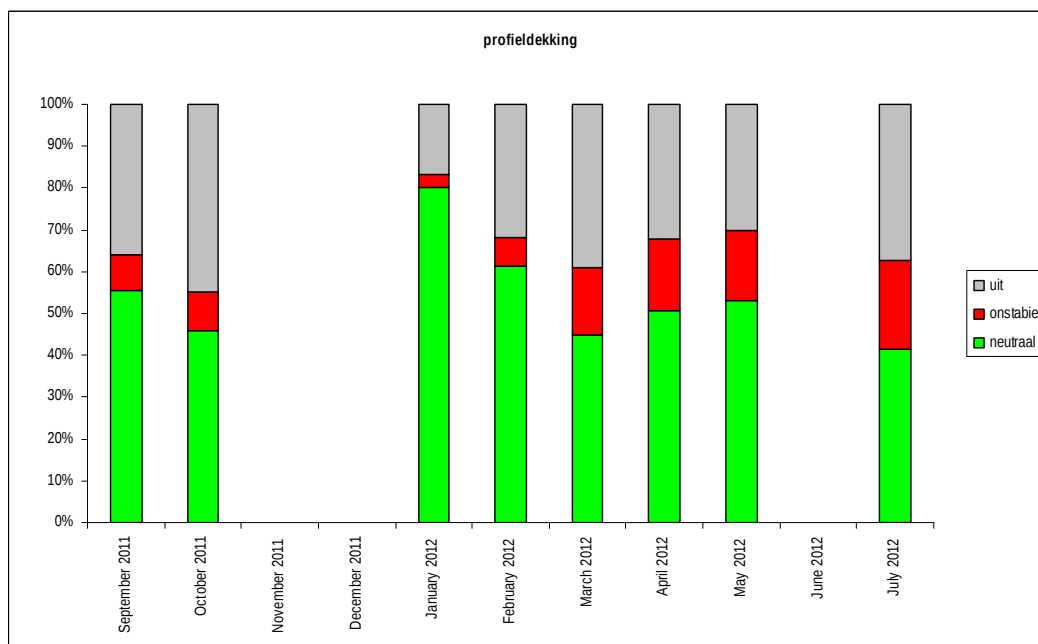
De condities waaronder door de COTAG gradiëntmetingen worden uitgevoerd zijn de volgende:

- gradiënt rond neutrale omstandigheden ($-0,1 < (z-d)/L < 0,1$);
- gradiënt onder onstabiele omstandigheden ($-0,5 < (z-d)/L < -0,1$).

Onder alle overige condities wordt geen gradiëntmeting uitgevoerd. Er wordt dan alleen een concentratiemeting in de onderste meetbox verricht.

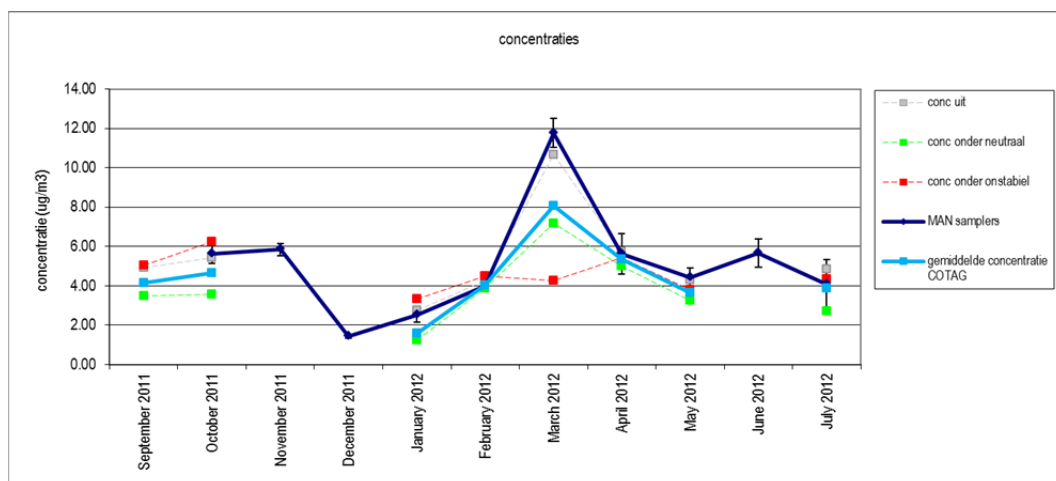
Op grond van deze instellingen worden door de COTAG gedurende ongeveer twee derde deel van de tijd gradiëntmetingen verricht. Van de gradiëntmetingen valt ruim 80 procent in de categorie neutraal. Bijna 20 procent van deze metingen valt in de onstabiele categorie. Wanneer de COTAG in de UIT-stand staat, is dit in 80 procent van de gevallen, omdat de atmosfeer te stabiel is. In de overige 20 procent is deze te onstabiel.

In Figuur 10 is per meetperiode de verdeling over de verschillende profieltypen weergegeven.



Figuur 10 Verdeling van de metingen over de verschillende profieltypen
Concentratie en depositiemetingen

Figuur 11 toont de gemeten ammoniakconcentraties in de onderste meetbox voor de verschillende profieltypen. Ook is het tijdsgewogen gemiddelde van de drie profieltypen weergegeven. Daarnaast toont Figuur 11 de ammoniakconcentratie zoals gemeten met de passieve samplers op het nabijgelegen MAN-meetpunt 2-2 (zie Figuur 1).

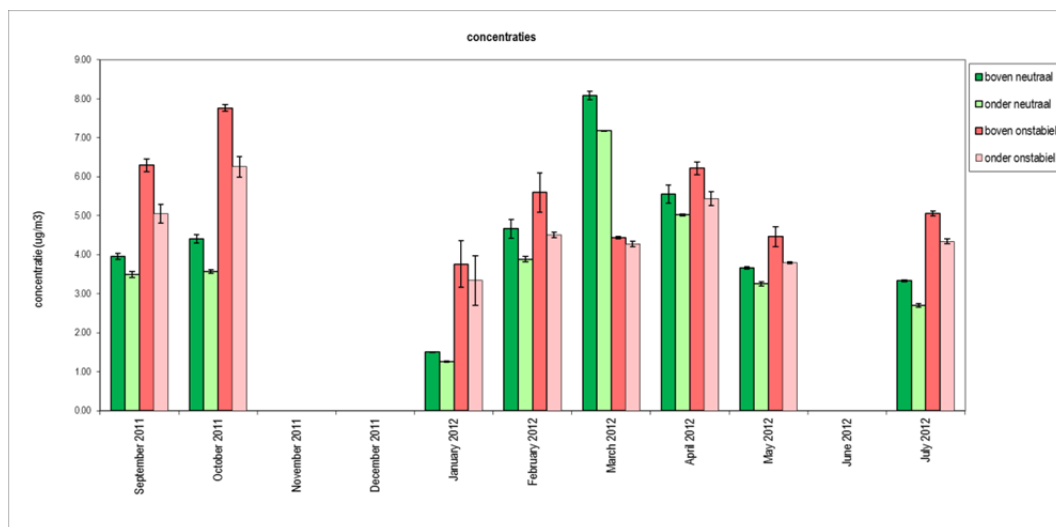


Figuur 11 Met passieve samplers op MAN-meetpunt 2-2 en met COTAG gemeten ammoniakconcentraties [$\mu\text{g}/\text{m}^3$].

De metingen van de COTAG en de passieve samplers vertonen een goede overeenstemming. Verschillen kunnen het gevolg zijn van een verschil in meethoogte, een verschil in locatie en niet exact identieke meetperiodes. Berekeningen van jaargemiddelde concentraties met OPS laten zien dat een lokaal verschil in hoogte van circa 1,2 meter (meethoogte COTAG 0,8 meter; meethoogte passieve samplers 2 m) kan leiden tot een verschil van circa 15-20 procent in de concentraties, waarbij de concentratie toeneemt met de hoogte.

Opvallend is dat de passievesamplermetingen in maart relatief hoog zijn ten opzichte van de COTAG. Eenzelfde fenomeen is in deze periode ook gemeten met een tweede COTAG-meetopstelling die in de buurt van Wageningen staat opgesteld. Ook hier zien we in deze periode dat de passieve samplers een hogere meetwaarde laten zien dan de COTAG. Bovendien zien we ook hier dat de concentratie in de UIT-stand dan veel hoger is dan de concentraties onder onstabiele en neutrale omstandigheden. Een mogelijke verklaring voor het verschil tussen de passieve samplers en de COTAG is de andere hoogte waarop de passievesamplermetingen worden uitgevoerd. In deze periode (mestuitrijseizoen) komen vaak hoge concentraties voor, met name onder UIT-condities (meestal is er dan sprake van een te stabiele atmosfeer). In een zeer stabiele atmosfeer is er erg weinig uitwisseling met het aardoppervlak. Hierdoor kunnen er verticaal gezien grote concentratieverschillen ontstaan, met als gevolg dat de hoger geplaatste passieve samplers een hogere waarde te zien geven dan de buizen in de onderste COTAG-box.

Omdat voor de vaststelling van de depositie de gemeten concentratieverschillen bepalend zijn, is de nauwkeurigheid van de concentratiemetingen sterk van invloed op de nauwkeurigheid van de vast te stellen depositie. Zowel onder neutrale als onder onstabiele omstandigheden worden daarom de concentraties in drievoud gemeten. De spreiding in deze metingen zegt dan iets over de onzekerheid in de depositiemetingen. In Figuur 12 zijn deze gemeten

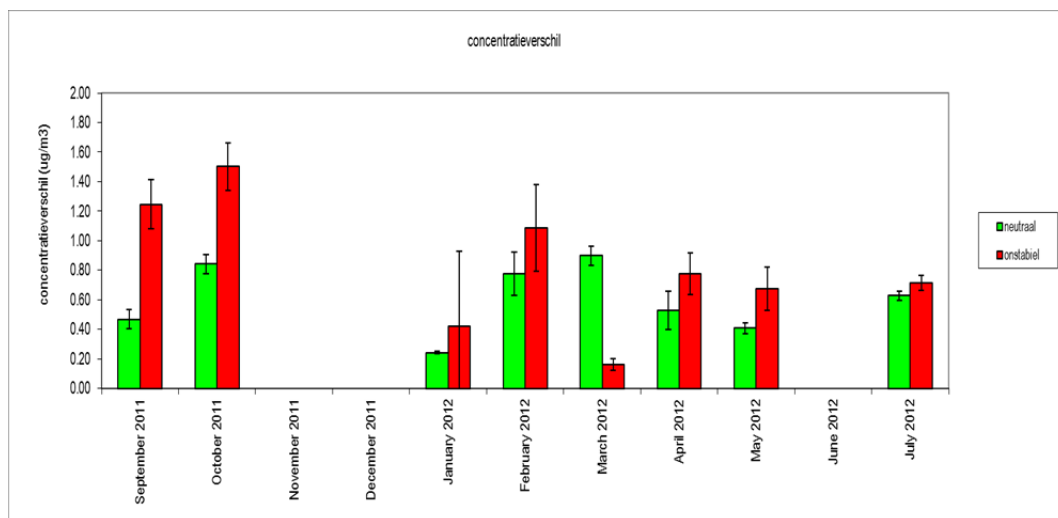


Figuur 12 Gemeten concentraties [$\mu\text{g}/\text{m}^3$] in onderste en bovenste box onder neutrale en onstabiele omstandigheden

concentraties weergegeven, inclusief de standaarddeviatie over de drie meetbuizen. Figuur 12 toont dat onder neutrale omstandigheden de standaarddeviaties over de drie buizen klein zijn ten opzichte van de gemeten verschillen tussen de onderste en de bovenste meetbox. Onder onstabiele omstandigheden is de spreiding groter. Dit wordt veroorzaakt door de veel kortere bemonsteringsduur van deze buizen, waardoor onnauwkeurigheden in de chemische analyse zwaarder meetellen. Vanwege de kortere bemonsteringsduur heeft deze onzekerheid echter slechts een beperkte invloed op de onzekerheid in de bepaling van de totale depositie. Gemiddeld is de relatieve onzekerheid in de concentratiebepaling $\pm 3,5$ procent onder neutrale omstandigheden en $\pm 9,4$ procent onder onstabiele omstandigheden (bij een betrouwbaarheidsinterval van 95 procent).

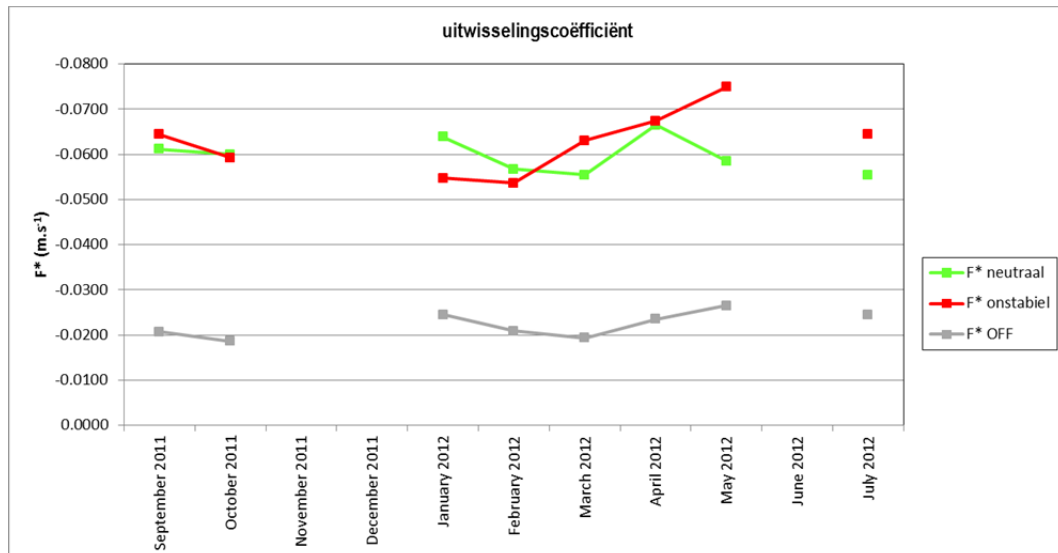
In Figuur 13 zijn de gemeten verticale concentratieverschillen gepresenteerd. De maandgemiddelde concentratieverschillen zijn altijd positief, dat wil zeggen dat in de meetmast de gemiddelde concentratie op het bovenste meetpunt altijd hoger is dan op het onderste meetpunt. Dat betekent dat er gemiddeld genomen depositie van ammoniak plaatsvindt.

Opmerkelijk is dat de concentraties en concentratieverschillen (zie Figuur 12 en Figuur 13) onder neutrale condities over het algemeen iets lager zijn dan onder onstabiele condities.



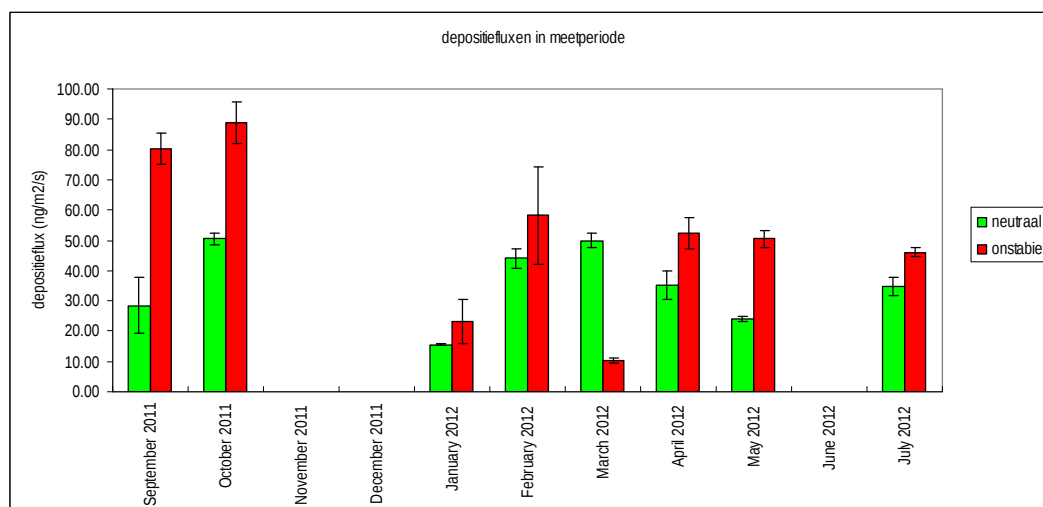
Figuur 13 Gemeten concentratieverschillen [$\mu\text{g}/\text{m}^3$] onder neutrale en onstabiele condities

Om uit een gemeten concentratieverschil de depositie te berekenen wordt gebruik gemaakt van een uitwisselingscoëfficiënt die bepaald wordt uit de met de sonische anemometer gemeten wrijvingsnelheid (u_*). De aldus berekende uitwisselingscoëfficiënten zijn weergegeven in Figuur 14.



Figuur 14 Berekende uitwisselingscoëfficiënten F^* [m/s] bij de verschillende stabiliteitsregimes

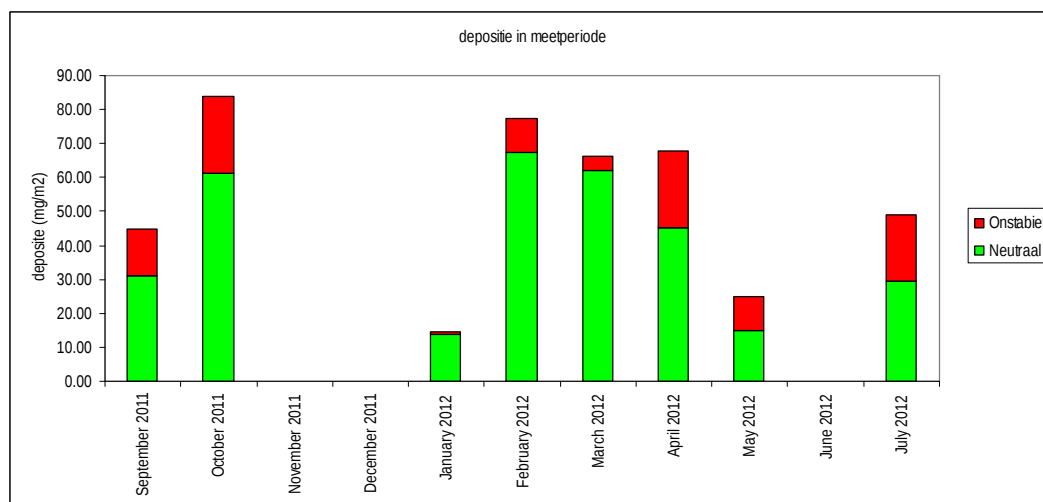
In Figuur 14 is te zien dat er geen grote verschillen zijn in uitwisseling onder neutrale dan wel onstabiele omstandigheden. Wel is te zien dat de uitwisseling onder UIT-condities een stuk lager is. Dit is te verwachten, omdat onder deze omstandigheden gedurende 80 procent van de tijd de atmosfeer te stabiel is en er dus weinig uitwisseling plaatsvindt. Behalve onder onstabiele omstandigheden is er weinig verloop in de uitwisselingscoëfficiënten gedurende het jaar. Onder onstabiele omstandigheden is de uitwisseling in het zomerhalfjaar wel duidelijk groter dan in het winterhalfjaar. Omdat in de zomer de instraling van de zon veel groter is dan in de winter, is de uitwisseling door convectie ook sterker en is een grotere uitwisselingscoëfficiënt te verwachten.



Figuur 15 Droge depositiefluxen [ng/m²/s] van ammoniak onder neutrale en onstabiele condities

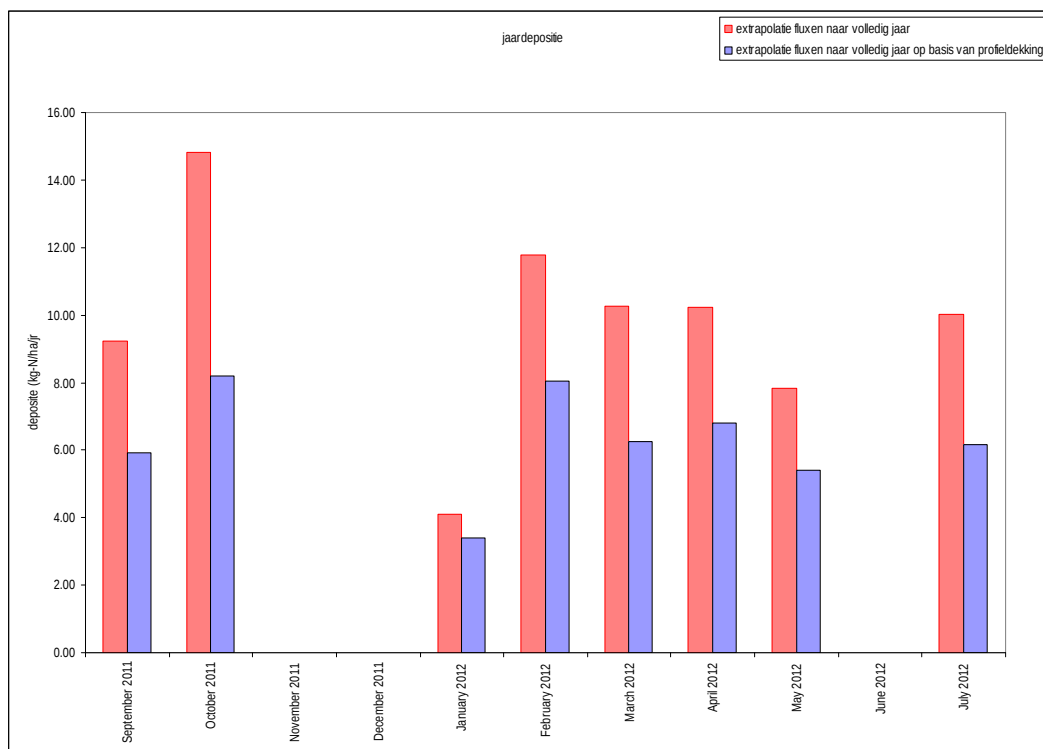
Figuur 15 toont de (uit de concentratieverschillen berekende) drogedepositiefluxen van ammoniak, inclusief meetonzekerheid. In vrijwel alle meetperioden zien we een grotere depositieflux onder onstabiele condities. Enige uitzondering op het algemene beeld zijn de metingen in maart; dan treden er grote concentratieverschillen tussen de UIT-, neutrale en onstabiele condities op. In deze periode zijn de concentraties gemeten tijdens de UIT-stand veruit het hoogst. Ook is de concentratie en het concentratieverschil onder neutrale condities dan duidelijk hoger dan onder onstabiele condities. We zien alleen in deze maand dat de flux onder neutrale condities hoger is dan onder onstabiele condities.

Omdat onstabiele condities echter minder vaak voorkomen, levert de drogedepositieflux onder neutrale condities toch de grootste bijdrage aan de totale droge depositie (zie Figuur 16).



Figuur 16 Per meetperiode vastgestelde droge depositie [mg/m²] onder neutrale en onstabiele omstandigheden

Omdat gedurende het jaar de meetperioden niet precies even lang zijn, zijn de deposities van de individuele meetperioden niet direct onderling te vergelijken. Om deze vergelijking mogelijk te maken is voor elke individuele meetperiode een extrapolatie gemaakt naar een totale droge depositie voor een volledig jaar. In Figuur 17 zijn de resultaten hiervan weergegeven.



Figuur 17 Berekende droge jaardepositie [kg N/ha/jaar] op basis van de bij elke meetperiode gemeten depositieflux

De extrapolatie naar een jaardepositie kan op twee manieren uitgevoerd worden. Bij de ene manier is eerst voor elke meetperiode de totale droge depositie bepaald op basis van de fluxen onder neutrale en onstabiele omstandigheden. Vervolgens is de tijdsduur bepaald waarin in de betreffende meetperiode de depositiefluxen zijn gemeten. Op basis van deze tijdsduur is totale droge depositie van de meetperiode geëxtrapoleerd naar een volledig jaar. Op basis van deze berekening zal de jaardepositie overschat worden, omdat ervan uit wordt gegaan dat in de periode waarin de COTAG in de UIT-stand staat de flux gelijk zal zijn aan die tijdens de fluxmeting. Omdat de UIT-stand voornamelijk betrekking heeft op stabiele omstandigheden, is de verwachting dat de werkelijke flux dan lager zal zijn en zal met deze methode de totale droge depositie dus worden overschat.

Bij de tweede methode wordt de bij de eerste methode berekende totale jaardepositie gecorrigeerd voor het percentage van de tijd dat er door de COTAG daadwerkelijk depositie is gemeten. In dit geval wordt er dus aangenomen dat de flux in de UIT-stand nul is. Deze berekening geeft een onderschatting van de werkelijke droge jaardepositie.

De daadwerkelijke droge jaardepositie zal uiteindelijk liggen tussen de jaardepositie berekend met de eerste methode en de jaardepositie berekend met de tweede methode.

Aan de hand van het volgende voorbeeld wordt het verschil tussen de beide methoden verduidelijkt. Stel dat in de maand april de totale depositie is vastgesteld op 50 mg/m^2 . Als in deze maand in totaal gedurende twintig dagen profielen zijn gemeten, is de jaardepositie berekend volgens de eerste methode: $50 \text{ mg/m}^2 \times (365/20) = 912,5 \text{ mg/m}^2$. Er wordt bij deze methode impliciet van uitgegaan dat de depositieflux in de periode waarin geen profielen zijn gemeten (tien dagen) even groot was als tijdens de profielmetingen.

Bij de tweede methode wordt ervan uitgegaan dat er in de periode waarin geen profielen zijn gemeten geen depositieflux aanwezig was. De berekende jaardepositie volgens deze methode is dan $50 \times (365/30) = 608 \text{ mg/m}^2$.

Uit Figuur 17 blijkt dat er tussen de op basis van de individuele meetperioden berekende jaardeposities geen grote verschillen optreden gedurende het jaar. In de maanden oktober en februari is de depositie wat hoger, terwijl deze in de maand januari wat lager is. Dit stemt overeen met de in deze maanden gemeten grotere respectievelijk kleinere concentratieverschillen.

Opvallend is verder dat in maart (de maand waarin (meestal) de meeste mest wordt uitgereden op het land), ondanks de verhoogde concentratie en het iets grotere concentratieverschil onder neutrale omstandigheden, geen verhoogde jaardepositie wordt berekend. Dit komt doordat de turbulente uitwisseling onder neutrale omstandigheden in deze maand gemiddeld genomen iets lager was dan in andere maanden (zie Figuur 14). Bovendien waren de flux en depositie onder onstabiele omstandigheden in deze maand relatief laag (zie Figuur 15 en Figuur 16).

Tenslotte is op basis van alle beschikbare metingen samen een waarde afgeleid voor de droge jaardepositie in het Bargerveen. Hierbij zijn alle deposities van de afzonderlijke meetperioden gesommeerd en is hiermee een extrapolatie naar een volledig jaar uitgevoerd. De extrapolatie naar een volledig jaar is volgens dezelfde methodiek uitgevoerd zoals dat ook bij de extrapolatie van de individuele maandwaarden is gedaan.

Op basis van extrapolatie volgens de eerste methode resulteert dit in een droge jaardepositie van circa 10 kg N/ha/jr . Extrapolatie volgens de tweede methode geeft een jaardepositie van 7 kg N/ha/jr . De werkelijke droge jaardepositie zal liggen tussen deze twee waarden. Uitgaande van het onder Schotse omstandigheden vastgestelde ontbrekende depositiedeel (zie Famulari et al., 2010) komt de jaardepositie uit op circa 8 kg N/ha/jr .

5 Vergelijking metingen met modelberekeningen

In het kader van het vaststellen van de Grootschalige Depositie Kaarten Nederland (GDN) wordt jaarlijks voor heel Nederland de totale stikstofdepositie berekend met het OPS-model (van Jaarsveld, 2004) met behulp van emissiegegevens. De totale stikstofdepositiecijfers zijn beschikbaar op een schaal van 1 bij 1 kilometer. Op basis van de GDN wordt voor de vierkante kilometer waar de meetlocatie van de COTAG zich in bevindt voor het jaar 2011 een totale stikstofdepositie bepaald van 26,4 kg N/ha/jr (Velders et al., 2012) en voor 2012 een totale stikstofdepositie van 23,3 kg N/ha/jr (Velders et al., 2013). In Tabel 2 is een uitsplitsing van de totale stikstofdepositie over de verschillende deelbijdragen te vinden.

Tabel 2 Totale stikstofdepositie en deelbijdragen daaraan in kg N/ha/jr voor 2011 en 2012 voor de GDN-gridcel waarin de COTAGmeetopstelling staat. Verschillen tussen de som van de deelbijdragen en de totale depositie zijn het gevolg van afronding.

	2011	2012
Droge depositie NHx*	13,4	9,3
Natte depositie NHx	6,3	6,7
Droge depositie NOy	3,7	3,7
Natte depositie NOy	3,2	3,7
Totale stikstofdepositie	26,4	23,3

* NHx bestaat uit NH₃ (het gas ammoniak) plus NH₄⁺ (ammoniumaerosolen); de bijdrage van NH₄⁺ aan de drogedepositieflux betreft gemiddeld minder dan een paar procent van het totaal.

Bovenstaande getallen zijn inclusief een bijtelling vanwege onverklaarde depositie (zie Velders et al., 2010). De bijtelling bij de droge depositie van ammoniak was in 2011 relatief groot met een correctiefactor van 1,33; voor 2012 bedroeg dezelfde factor 1,08. Een mogelijke verklaring voor de hoge correctiefactor in 2011 is het voorkomen van een droog voorjaar. Dit heeft waarschijnlijk geleid tot hogere emissies, met hogere ammoniakconcentraties tot gevolg. Dit soort meteorologische invloeden op de emissies zijn echter niet verdisconteerd in de modelberekeningen, zodat de vergelijking tussen de gemeten ammoniakconcentraties in het Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit en de berekende concentraties minder goed uitvalt met een hogere correctiefactor als resultaat.

Om de COTAG-metingen van de droge depositie van ammoniak nauwkeuriger te kunnen vergelijken met berekeningen zijn aparte receptorberekeningen uitgevoerd met het OPS-model (versie 4.3.16). Bij een receptorberekening wordt de berekening uitgevoerd voor een puntlocatie in plaats van een gridcel. In de berekeningen zijn voor alle jaren de meest recent beschikbare emissiegegevens gebruikt; voor 2011 en 2012 houdt dat in dat de emissies uit 2010 toegepast zijn. Voor de meteorologische gegevens zijn de gemeten waarden voor elk jaar toegepast. Zowel voor de COTAG-locatie als de drie MAN-locaties zijn diverse berekeningen uitgevoerd. In Tabel 3 is een overzicht van de berekende drogedepositiefluxwaarden te zien.

Tabel 3 Drogedepositieflux van NH_x in kg N/ha/jr voor diverse modelberekeningen. Gridcelwaardes op basis van de GDN worden aangeduid met 'GDN' gevolgd door het jaar waarin de kaart geproduceerd is (niet noodzakelijk gelijk aan het rekenjaar); receptorberekeningen worden aangeduid met 'OPS'. De gepresenteerde waarden uit de GDN-kaarten zijn zonder bijtelling.

	2011	2012
GDN 2012, representatief voor 1 bij 1 km	10,0	n.v.t.
GDN 2013, representatief voor 1 bij 1 km	n.v.t.	8,8
OPS, alle Nederlandse emissies op 1km-schaal, lokale ruwheidslengte 0,06 m	8,1	7,9
OPS, agrarische emissies op 500m-schaal, lokale ruwheidslengte 0,06 m	7,9	7,7
OPS, agrarische emissies op 500m-schaal, lokale ruwheidslengte 0,10 m	9,3	9,1

Gezien de onzekerheid in de berekening (70%; zie Velders et al. (2010)) en de meting stemmen de berekende waarden voor de droge depositie van ammoniak en de meting met de COTAG (tussen de 7-10 N kg/ha/jr voor de periode van september 2011 tot september 2012) goed overeen. Nederlandse agrarische emissies meenemen op een schaal van 500 bij 500 m in plaats van 1 bij 1 km (zoals in de GDN gebeurt) laat op de COTAG-locatie slechts een beperkte gevoeligheid zien. Het feit dat te Bargerveen de buitenlandse emissies - met meer dan de helft - de grootste bijdrage zijn aan de concentratie vormt hier de belangrijkste verklaring voor. De gevoeligheid voor de lokale ruwheidslengte is zoals verwacht relatief groot. De standaardwaarde voor de lokale ruwheidslengte van 0,06 m komt goed overeen met ruwheidslengtes van 0,04 tot 0,05 m zoals gerapporteerd in de literatuur voor Molinea (e.g. Moors et al., 1998). Molinea is de meest voorkomende vegetatie in de directe omgeving van de meetmast.

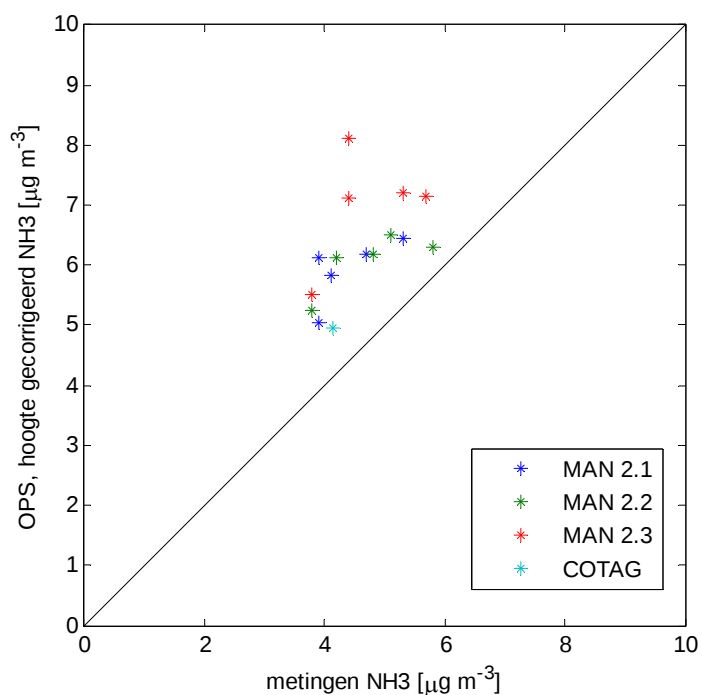
Aangezien de gebruikte emissies voor 2011 en 2012 hetzelfde zijn, is het verschil in depositie tussen de twee gepresenteerde jaren het gevolg van de opgetreden variatie in de meteorologische omstandigheden. Het verschil is in dit geval beperkt; verschillen ten gevolge van meteorologische omstandigheden kunnen 10-15 procent zijn.

In Figuur 18 zijn de beschikbare concentratiemetingen in Bargerveen uitgezet tegen gemodelleerde waarden. Voor de drie MAN-meetpunten zijn er elk vijf jaargemiddeldes beschikbaar en voor de COTAG een. Omdat OPS de concentratie berekent op vier meter hoogte, zijn de berekende concentraties geschaald naar de meethoogte van de desbetreffende locatie; de hiervoor gebruikte schalingsfactoren variëren tussen de 0,84 en de 0,65. De onzekerheid in zowel de metingen op de MAN-locaties als de berekeningen ligt rond de 10-15 procent.

De berekende concentraties laten een overschatting zien ten opzichte van de metingen. Dit komt voor op meerdere locaties in het MAN (e.g. Stolk et al., 2009); voor Bargerveen is de overschatting wel groter dan gemiddeld. De overschatting kan het gevolg zijn van verschillende factoren, onder andere lokale onnauwkeurigheid in de toegepaste generieke hoogteschaling, te hoge emissies, te lage transportdepositiesnelheid of een te lage lokale depositiesnelheid; ook een combinatie van factoren is mogelijk. Het is geen realistische optie om de vergelijking van de berekende en gemeten ammoniakconcentraties 'goed' te krijgen door de lokale depositiesnelheid aan te passen door middel van een aanpassing in de lokale ruwheidslengte. Het effect

van de lokale depositie op de lokale concentratie is namelijk beperkt (in tegenstelling tot het effect van de lokale depositiesnelheid op de lokale depositieflux). Het effect van droge depositie op de concentratie is meer het gevolg van de droge depositie gedurende het transport over grotere afstanden dan de droge depositie ter plaatse.

In detail uitzoeken wat de belangrijkste factor in de overschatting van de berekende concentraties is, zou een intensieve onzekerheidsanalyse vergen. Dit valt echter buiten de reikwijdte van deze studie.



Figuur 18 Gemeten versus met OPS berekende ammoniakconcentraties [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]; de met OPS berekende waarden zijn gecorrigeerd voor de hoogte

6 Discussie en conclusies

Op basis van de resultaten van het eerste jaar meten lijkt de COTAG-meetopstelling geschikt voor het meten van de droge depositie van ammoniak. De concentratiemetingen stemmen goed overeen met de metingen zoals deze in het MAN met passieve samplers worden uitgevoerd. Ook laten de depositiemetingen uit de verschillende meetperioden consistente resultaten zien.

Op basis van het eerste jaar aan meetgegevens van de COTAG is de droge jaardepositie van ammoniak voor het Bargerveen circa 7-10 kg N/ha/jr.

De ondergrens van 7 kg/ha/jr is het resultaat dat verkregen wordt wanneer de met de COTAG gemeten totale droge depositie wordt geëxtrapoleerd naar een volledig jaar. Hierbij wordt ervan uitgegaan dat er geen depositie is op de momenten waarop stabiliteit van de atmosfeer buiten het operationele bereik van de opstelling ligt. Tevens wordt aangenomen dat in perioden waarin de COTAG door technische problemen buiten werking is, de depositieflux even groot is als in de perioden waarin wel is gemeten.

De eerste aanname heeft tot gevolg dat de depositie onderschat wordt, omdat op het moment dat de stabiliteit van de atmosfeer buiten het operationele bereik van de opstelling ligt er altijd nog enige depositie zal plaatsvinden. Met behulp van vergelijkende metingen met een DOAS-depositiemeetopstelling zal dit ontbrekende deel gekwantificeerd kunnen worden. Op dit moment zijn er echter nog onvoldoende data beschikbaar om hier een uitspraak over te kunnen doen.

Wel kan al een schatting gemaakt worden van de bovengrens van de depositie. In dit geval wordt aangenomen dat de depositie in de perioden waarin de stabiliteit van de atmosfeer buiten het operationele bereik van de opstelling ligt, gelijk is aan de depositie die is gemeten in de perioden waarin wel door de COTAG depositie is gemeten. Deze schatting zal een overschatting van de depositie geven, omdat de depositiesnelheid onder deze overwegend stabiele omstandigheden lager zal zijn dan onder neutrale en onstabiele omstandigheden. De aldus berekende waarde kan hierdoor gebruikt worden als bovengrens van de droge depositie. De werkelijke droge jaardepositie zal dus liggen tussen de 7 en 10 kg N/ha/jr.

Bij onderzoek onder Schotse omstandigheden is vastgesteld dat het door de COTAG niet gemeten deel van de depositie circa 20 procent bedraagt (zie Famulari et al., 2010). Wanneer deze waarde ook voor het Bargerveen wordt gehanteerd, komt de droge jaardepositie hier uit op circa 8 kg/ha/jr.

Gezien de onzekerheid in de berekening (70%; zie Velders et al. (2010)) en de meting stemt de berekende waarde voor de droge depositie van ammoniak en de meting met de COTAG voor de periode van september 2011 tot september 2012 goed overeen.

Literatuur

CEN 13528-3, 2003, Ambient Air Quality – Diffusive samplers for the determination of concentrations of gases and vapours – Requirements and test methods – Part 3: Guide to selection, use and maintenance

Elzakker, B.G. van, 2001, Monitoring activities in the Dutch National Air Quality Monitoring Network in 2000 and 2001, RIVM Rapport 723101055, RIVM Bilthoven.

Famulari, D., Fowler, E., Nemitz, K.J., Hargreaves, R.L., Storeton-West, G., Rutherford, Y.S., Tang, M.A., Sutton, K.J., Weston, 2010, Development of a low-cost system for measuring conditional time-averaged gradients of SO₂ and NH₃, Environmental Monitoring and Assessment, February 2010, Volume 161, Issue 1-4, blz 11-27

Interreg, 2013, Erfassung der Stickstoffbelastungen aus der Tierhaltung zur Erarbeitung innovativer Lösungsansätze für eine zukunftsfähige Landwirtschaft bei gleichzeitigem Schutz der sensiblen Moorlandschaft. Abschlussbericht Projekt INTERREG IV a, Landkreis Emsland, Internationaler Naturpark Bourtanger Moor - Bargerveen e. V., Meppen

Jaarsveld, J.A. van, 2004. The operational Priority Substances model. Description and validation of OPS-Pro 4.1. RIVM Report 500045001, RIVM Bilthoven.

Moors, E.J., Stricker, J.N.M., Abeele, G. van den, 1998 Evapotranspiration of cut over bog covered by *Molinia Caerulea*., Rapport 73 / Afdeling Waterhuishouding, Wageningen Agricultural University

Stolk, A.P., van Zanten, M.C., Noordijk, H., van Jaarsveld, J.A., van Pul, W.A.J., 2009, Meetnet Ammoniak in Natuurgebieden'. Meetresultaten 2005-2007. RIVM Rapport 680710001, RIVM Bilthoven.

Stull, R.B., 1989, An Introduction to Boundary Layer Meteorology, Kluwer Academic Publishers

Velders, G.J.M., Aben, J.M.M., van Jaarsveld, J.A., van Pul, W.A.J., de Vries, W.J., van Zanten, M.C., 2010, Grootschalige stikstofdepositie in Nederland. Herkomst en ontwikkeling in de tijd. PBL-publicatienummer: 500088007, Planbureau voor de Leefomgeving (PBL) Den Haag/Bilthoven.

Velders, G.J.M., Aben, J.M.M., Jimmink, B.A., Geilenkirchen, G.P., van der Swaluw, E., de Vries, W.J., Wesseling, J., van Zanten, M.C., 2012, Grootschalige concentratie- en depositiekaarten Nederland. Rapportage 2012. RIVM Rapport 680362002, RIVM Bilthoven.

Velders, G.J.M., Aben, J.M.M., Jimmink, B.A., Geilenkirchen, G.P., den Hollander, H.A., van der Swaluw, E., de Vries, W.J., Wesseling, J., van Zanten, M.C., 2013, Grootschalige concentratie- en depositiekaarten Nederland. Rapportage 2013. RIVM Rapport 680362003, RIVM Bilthoven.

Volten, H., J.B. Bergwerff, M. Haaima, D.E. Lolkema, A.J.C. Berkhout, G.R. van der Hoff, C.J.M. Potma, R.J. Wichink Kruit, W.A.J. van Pul, D.P.J. Swart, 2012, Two instruments based on differential optical absorption spectroscopy (DOAS) to measure accurate ammonia concentrations in the atmosphere, Atmos. Meas. Tech. 5, 2012, blz. 413–427.

.....

A. P. Stolk | H. Noordijk | M.C. van Zanten

.....

RIVM rapport 680029001/2014

Dit is een uitgave van:

provincie Drenthe



Rijksinstituut voor Volksgezondheid
en Milieu

Postbus 1 | 3720 BA Bilthoven
www.rivm.nl

februari 2014

