

Wetenschappelijke Instelling van de
Vlaamse Gemeenschap



Instituut voor Bosbouw
en Wildbeheer
Gaverstraat 4
9500 Geraardsbergen



**MEETSTATION VOOR LUCHTVERONTREINIGING BRASSCHAAT
JAARVERSLAG 1999**

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

J. Neiryck en P. Roskams

Augustus 2000

IBW Bb R 99.005

INHOUDSOPGAVE

| | | |
|------------|--------------------------------------|-----------|
| 1 | INLEIDING | 2 |
| <hr/> | | |
| 2 | OVERZICHT POLLUTIEMETINGEN | 3 |
| <hr/> | | |
| 2.1 | SITE | 3 |
| 2.2 | MATERIAAL EN METHODEN | 3 |
| 2.3 | UITBATING VAN HET MEETSTATION | 5 |
| 2.4 | MEETRESULTATEN IN 1998 | 7 |
| 2.4.1 | SO ₂ | 7 |
| 2.4.2 | O ₃ | 7 |
| 2.4.3 | NO _x | 8 |
| 2.4.4 | NH ₃ | 9 |
| 2.5 | VERGELIJKING JAARGEMIDDELDEN | 12 |
| 2.6 | NORMEN | 14 |
| <hr/> | | |
| 3 | ANALYSE PROFIELMETINGEN | 16 |
| <hr/> | | |
| 4 | DANKWOORD | 20 |
| <hr/> | | |
| 5 | REFERENTIES | 20 |
| <hr/> | | |

1 INLEIDING

In de laatste twee decennia hebben zich enkele belangrijke verschuivingen voorgedaan in de emissiepatronen. In Vlaanderen bedragen de zwavelemissies in 1997 nog 30 % van deze in 1980. Ook gedurende de laatste 5 jaren is de tendens van de SO₂ concentraties dalend voor zowel industriële, stedelijke, voorstedelijke en landelijke stations (VMM, 1999).

Voor de stikstofoxides is de tendens van 1979 tot 1998 dalend alhoewel voor NO₂ tijdens de periode van 1994 tot 1997 een lichte stijging kon vastgesteld worden. In 1998 zijn de concentraties terug afgenomen in de subgroepen industrieel, stedelijk en voorstedelijk station. Ammoniak is met een aandeel van 34 % in de emissie een belangrijke bodemverzurende component in Vlaanderen wiens aandeel gestegen is van 16 % in 1980 tot 34 % in 1998.

Het relatieve aandeel van de stikstofemissies in de potentieel verzurende uitstoot is gestaag gegroeid.

In het kader van de ozonproblematiek wordt de aandacht ook gelegd op de mogelijke schade aan bossen. Meer en meer wijzen auteurs op het belang van ozonstress voor bossen, vnl. in Zuid-Europese landen. Een kritisch niveau ('critical level') voor ozon is op Europees beleidsniveau geïntroduceerd. Het onderzoek naar mogelijke effecten van ozon op de levensprocessen van bossen bevindt zich nog in een pril stadium. De voorgestelde AOT40 – waarden worden sterk bekritiseerd en momenteel ontwikkelt men meer depositiegebonden normen voor bosbestanden.

Ondanks de substantiële wijzigingen die het chemisch klimaat ondergaan heeft, zijn verdere reductiemaatregelen vereist om de critical loads te halen. De onderlinge interactie tussen pollutanten noopt tot een multi-polluent en multi-effect benadering. Deze benadering beschouwt de verschillende pollutanten SO_x, NO_x en NH₃ tesamen met de verschillende effecten gaande van verzuring tot vermesting en fotochemische smog als één geheel dat in zijn globaliteit dient aangepakt te worden. Ook op Europees beleidsniveau wordt in de onderhandelingen voor nieuwe emissie- en immissieplafonds (ontwerp tweede NO_x-protocol) de nadruk gelegd op meerdere pollutanten en meerdere effecten.

Een meetstation in bos levert op regionaal niveau de nodig basisgegevens voor de wetenschappelijk ondersteuning van het milieubeleid. Het meetstation voor luchtverontreiniging te Brasschaat levert sinds 1995 waardevolle gegevens over de luchtkwaliteit in een gemengd boscysteem. Hierbij is van in het begin geopteerd om verschillende componenten in de lucht te analyseren: SO₂, O₃, NO_x en NH₃. Voor de bepaling van NH₃ werd beroep gedaan op nieuwe meetapparatuur. Het gaat om een annulaire denuder die in het kader van een VLINA-project werd aangekocht.

In hoofdstuk 2 wordt een overzicht gegeven van de pollutiemetingen gedurende het werkjaar 1999. Er wordt tevens een vergelijking gemaakt met de resultaten van voorgaande jaren. De evaluatie van de pollutieniveaus naar hun effect op het boscysteem wordt gevoerd aan de hand van internationaal gestelde normen.

In hoofdstuk 3 wordt het verticaal concentratieprofiel, gemeten aan de meettoren, geanalyseerd. De relatie met de windsnelheid naargelang het concentratieniveau wordt besproken.

2 OVERZICHT POLLUTIEMETINGEN

2.1 SITE

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. Het stamtal bedroeg 542 bomen/ha en de gemiddelde boomhoogte bedroeg 20.6 m in 1995 (Cermak et al., 1998). 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*).

2.2 MATERIAAL EN METHODEN

Op de meettoren van Brasschaat worden sinds april 1995 metingen verricht van de luchtconcentraties van gasvormige pollutanten.

De 40 m hoge toren is uitgerust met vier monitoren (SO₂, O₃, NO_x) die dag in dag uit de luchtconcentraties registreren op vier niveaus boven en onder het kronendak van een Grove dennenbestand. Hiervoor is een containerkabine geplaatst op de sokkel van de toren, waarin de monitoren zich bevinden. Via teflonleidingen tot de top van de toren, wordt lucht aangezogen naar gelijkvloers niveau. Een automatisch kleppensysteem (LPC) bepaalt van welk niveau lucht wordt aangezogen. Elke 6 minuten wijzigt het niveau. Vooraf is een filter (0.5 mm) geplaatst om grove partikels uit de leidingen te weren.

Voor de bepaling van NH₃ werd in het kader van een VLINA-project een nieuw meettoestel gekocht die eveneens on-line metingen toelaat. Het gaat om de AMANDA Gradient Module (Wyers et al., 1993), een annulaire denuder die ontworpen is voor continu metingen van ammoniak op 3 verschillende hoogtes (23, 31 en 39 m). In tegenstelling tot de NH₃ (NH 30 M) monitor (Overloop en Roskams, 1999) beschikt de AMANDA over korte "sample lines" waardoor verliezen in de aanvoerleidingen (ten gevolge van condensatie) beperkt worden. De detectielimiet van het apparaat is lager dan 0.1 µg/m³ hetgeen rekening houdende met de bestaande gradiënten het apparaat geschikt maakt voor gradiëntmetingen.

Op elke hoogte is een denuder opgesteld die bestaat uit 2 concentrische glazen cilinders waartussen een zwak zurige oplossing (NaHSO₄) met een constant debiet stroomt. De omringende lucht wordt laagsgewijs door de annulaire ruimte aangezogen, waardoor ammoniak in de absorptieoplossing terechtkomt. De sample stroom wordt vervolgens naar een 3-weg klep gepompt waar het ofwel naar het detectiesysteem wordt gestuurd of naar het afvoervat wordt getransporteerd. Om de 2 minuten wordt de sample stroom van een van de denuders via één van de 3-weg kleppen naar het detectiesysteem geleid waar het gedurende 90 seconden stabilisatie ondergaat en de overige 30 seconden aan een meetprocedure onderworpen wordt. Na verstrijken van deze 2 minuten is de sample stroom van de volgende denuder aan de beurt.

In de detector wordt de sample stroom basisch gemaakt waardoor ammoniak gasvormig wordt. Het monster wordt binnen de ionenwisselaar langsheen een permeabele membraan

geleid. Aan de andere zijde van de membraan die alleen voor gassen permeabel is, stroomt gedemineraliseerd water waarin ammoniak opgenomen wordt. De conductiviteit van dit monster is een maat voor de ammoniakconcentratie in de omgevende lucht.

Tabel 1 geeft een overzicht van de ingezette monitoren. Voor een verdere beschrijving wordt verwezen naar Overloop en Roskams (1996).

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

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

Daarnaast worden ook micrometeorologische parameters opgemeten. Tabel 2 geeft een overzicht. De Netradiometer Didcot werd in de loop van 1999 vervangen door een REDS netradiometer. Omwille van een defect was de solarimeter gedurende meer dan 2 maanden buiten strijd.

Tabel 2: Opstelling meteorologische apparatuur op meettoren.

| PARAMETER | LOCATIE | SENSOR: MERK/TYPE | MEETPRINCIPE |
|---|--------------------------|---|--|
| Regenval | 39 m | Pluviometer Didcot DRG-51 | Tipping bucket 0.1 mm |
| Luchttemperatuur & Relatieve lucht- vochtigheid | 1.5, 9, 23, 31 en 39m | Psychrometer Didcot DTS-5A | Natte en droge boltemperatuur met PT100 en geforceerde ventilatie |
| Windsnelheid | 23, 31 en 39m | Cup-anemometer Didcot DWR-205G | Tachogenerator met een magnetische koppeling |
| Windrichting | 39 m | Windvaan Didcot DWD-105 | Potentiometer met magnetische koppeling |
| Windsnelheid in 3 dimensies | 39 m | Sonische anemometer Gill Instruments | Ultrasonisch meting |
| Inkomende kortgolvlige straling | 39 m | Solarimeter Kipp & Zonen CM6B | Thermokoppel |
| Netto-straling | 39 m | Netradiometer Didcot DRN-305 + REBS | Thermokoppel |
| Bodemwarmteflux | -0.09m | Warmtefluxplaatjes Campbell HFT-3 | Thermokoppel |
| Bodemtemperatuur | -0,02 en 0.09 m | Bodemthermometer Didcot DPS-404 | PT100 |
| Luchtdruk | 1.5 m | Barometer Didcot DBP-4 | Druksensor |

2.3 UITBATING VAN HET MEETSTATION

Voor de goede werking van het meetstation werden de procedures die in het vorige werkjaar werden toegepast, voortgezet.

- Driemaal per week worden de gegevens van de gasmonitoren via de telefoonlijn opgehaald en gecontroleerd op goede werking van de apparatuur. Hiervoor worden de minuutwaarden met behulp van Excel97-macro's grafisch weergegeven en gecontroleerd.
- Maandelijks preventief onderhoud van de gasmonitoren, inclusief ijkingen met gecertificeerde gasflessen, uitbesteed aan een onderhoudsfirmma ENVITEC en later (vanaf juli 1999) uitgevoerd door de deskundige van het IBW
- Zesmaandelijks ijking van de gasmonitoren door de Vlaamse Milieumaatschappij (VMM) ter controle van de ijkingen uitgevoerd door de deskundige en de aannemer van het onderhoudscontract (ijkbank VMM).
- Zesmaandelijks ijking van de ozonmonitor aan een primaire standaard en tweemaandelijks ijking van de SO₂ en NO_x gasflessen op het Brussels Instituut voor Milieubeheer (BIM), als enige referentie ijking.

Het onderhoud van de natte denuder is arbeidsintensief. Door de deskundige van het IBW wordt volgend onderhoudsschema gevolgd:

- Wekelijkse calibratie (3 standaarden), meting en correctie van luchtstroom door 3 denuders, reiniging van de drie glasfilters, bijvullen absorptieoplossing en ledigen van afvoervat, controle klok datalogger
- Tweewekelijks bijvullen van demi- en loogwater
- Driewekelijks vervangen van slangenpompdarmpjes
- Zeswekelijks afhaken en reinigen denuders (in cyclus van 2 weken)

Tabel 3 geeft een overzicht van het aantal en de oorzaak van ontbrekende metingen. Voor dagen met minder dan 80 % geldige metingen werden geen daggemiddelden berekend en worden deze als ontbrekende dagwaarde genoteerd. Aan de hand van technische bemerkingen in het logboek en fiches opgesteld bij elk onderhoud wordt een beknopt overzicht gegeven van pannes.

- Het preventief onderhoud voor de ozonmonitor hield tweemaal een ijking op verplaatsing (gemiddelde duur = 14 dagen) in. Hiertoe werd het toestel vervoerd naar het BIM. Doel was een ijking aan een primaire ozonstandaard. Daarnaast werd de ozonmonitor ook voor onderhoud bij ENVITEC gebracht. Al deze verplaatsingen namen 33 dagen in beslag.
- Pannes, waarvoor beroep werd gedaan op het correctief onderhoudscontract van ENVITEC, maakten langdurige interventies noodzakelijk bij de O₃-monitor (o.a. nieuwe meetlamp).
- Een foutieve interventie van ENVITEC (verkeerde instelling van ranges, slechte actieve koolfilter) veroorzaakte gegevensverlies voor 12 dagen in de maand januari.

- Een elektriciteitspanne veroorzaakt door ELECTRABEL leidde tot een uitval van alle functies. De klok van de datalogger, op batterij, houdt hier geen rekening mee zodat een verschuiving van meetgegevens in de tijd ontstaat die achteraf niet te corrigeren is. In totaal werden hierdoor 3 dagen aan gegevens verloren.
- Foutieve uitlezing van de datalogger via de modem resulteerde in 6 dagen verlies aan data (einde mei).

Tabel 3: Indeling van het aantal dagen met ontbrekende dagwaarden naar oorzaak.

| Oorzaak | Monitoren | | | | |
|------------------------------|-----------------|----------------|-----------|-----------------|-----------------|
| | SO ₂ | O ₃ | NO | NO ₂ | NH ₃ |
| Preventief onderhoud | 0 | 33 | 0 | 0 | - |
| Foutieve interventie ENVITEC | 12 | 15 | 12 | 12 | - |
| Panne monitor | 2 | 2 | 10 | 10 | - |
| Panne elektriciteit | 3 | 3 | 3 | 3 | - |
| Defecte koppeling datalogger | 6 | 6 | 6 | 6 | - |
| Totaal | 23 | 59 | 31 | 31 | - |
| % onbeschikbaarheid in 1999 | 7 | 16 | 9 | 9 | - |
| % onbeschikbaarheid in 1998 | 5 | 6 | 2 | 2 | - |
| % onbeschikbaarheid in 1997 | 2 | 10 | 15 | 17 | - |
| % onbeschikbaarheid in 1996 | 12 | 15 | 10 | 10 | - |
| % onbeschikbaarheid in 1995 | 14 | 23 | 9 | 9 | - |

Globaal kan gesproken worden van een verminderd rendement van de metingen ten opzichte van 1998. In dit jaar werd voor alle monitoren het hoogste rendement sinds de operationalisering van de meettoeren gehaald.

De SO₂-monitor scoorde alleen slechter in 1995 en 1996. Het rendement van de O₃-monitor evenaarde dat van 1996 en was alleen slechter in 1995. Dit is te wijten aan de lange verblijftijden van de O₃-monitor in het BIM voor de ijking aan de primaire ozonstandaard en de talrijke technische problemen (vervanging meetlamp). De NO_x-monitor presteerde beter t.o.v. 1996 en 1997. Voor de bepaling van ammoniak werd overgeschakeld op nieuwe meetapparatuur vanaf einde juni 2000.

Voor de ammoniakbepaling zal pas in 2000 een jaarrondbepaling uitgevoerd worden. In 1999 bedroeg het rendement van de AMANDA hooguit 75%.

2.4 MEETRESULTATEN IN 1998

De resultaten besproken in dit hoofdstuk hebben betrekking op het jaar 1999. Alle geregistreerde metingen werden gecontroleerd en gevalideerd voordat verdere verwerking en interpretatie plaatsvond. Validatie gebeurde aan de hand van de technische verslagen in een logboek en macro's.

Voor de onderstaande bespreking werd uitgegaan van berekende halfuurswaarden op hoogte 40 meter. Een halfuurgemiddelde is berekend uit vier opeenvolgende minuten metingen per dertig minuten op het niveau 40 m. Per dag worden in normale omstandigheden 47 halfuurswaarden genoteerd waaruit een daggemiddelde berekend wordt. Het eerste halfuur van de dag worden de monitoren aan een automatische calibratie (zero- en spancheck d.m.v. automatisch kleppensysteem) onderworpen. Indien voor een dag minder dan 80 % van de halfuurswaarden voorhanden zijn, werd het daggemiddelde niet berekend.

In figuren 1 en 2 zijn de daggemiddelden weergegeven van de luchtconcentraties van SO₂, O₃, NO, NO₂ en NH₃ gemeten op 40 m hoogte te Brasschaat.

2.4.1 SO₂

De concentraties van dit pollutant zijn duidelijk seizoensgebonden (figuur 1). Doorgaans worden hogere concentraties buiten het vegetatie seizoen gemeten. In de maanden februari, maart, mei, oktober, november en december lag het maandgemiddelde hoger dan het jaargemiddelde van 15.6 µg/m³ (tabel 4). Januari kende lagere concentraties door een overheersende N en NO-wind (tabel 6). De locatie wordt immers gekenmerkt door een belangrijke SO₂-bron ten ZW, namelijk de petrochemische industrie in het Antwerps havengebied. De maand oktober kende de hoogste concentratie.

De mediaanwaarde van de daggemiddelden voor SO₂ bedroeg 14.4 µg/m³ (tabel 5). De maximum daggemiddelde waarde bedroeg 55.4 µg/m³. De jaargemiddelde concentratie bedroeg 15.6 µg/m³.

De hoogste SO₂-concentraties kwamen voor bij winden uit zuidwesten (ZW—WZW-ZZW) (figuur 3). De laagste concentraties werden opgetekend bij zuidoostelijke en noordelijke winden.

2.4.2 O₃

Ozonconcentraties zijn in eerste instantie onderhevig aan de temperatuur (figuur 2) maar worden ook duidelijk beïnvloed door de windrichting. De maanden mei tot en met augustus kenden een hoger maandgemiddelde dan het jaargemiddelde van 42.2 µg/m³ (tabel 4) met juli als ozonrijkste maand. Ozonconcentraties liggen het hoogst bij winden uit de noordoostelijke sector. Dit patroon is tegengesteld aan het verloop van de NO en NO₂-concentraties in functie van de windrichting (figuur 3). Ozon ontstaat als resultaat van een fotolyse waarbij lichtinstraling inwerkt op stikstofoxiden en vluchtige organische componenten. Ozon staat anderzijds ook bekend als een fotochemische oxidant die NO converteert naar NO₂; een reactie waarbij een zuurstofradicaal verloren gaat. De aanwezigheid van NO leidt daarom tot een depletie van ozon uit de atmosfeer (Fowler et al., 1997).

De hoogste daggemiddelde concentratie werd opgemeten in de maand augustus met 123.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. De mediaan van de daggemiddelden bedroeg 39.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (tabel 5).

2.4.3 NO_x

Ook stikstofoxides zijn onderhevig aan sterke seizoenale schommelingen (figuur 1). Daarbij komt nog dat winden uit de zuidwestelijke sector hogere hoeveelheden aan stikstofoxiden aanvoeren (figuur 3). De maandgemiddelde concentraties van NO lagen in de maanden oktober, november, december, januari en februari dubbel zo hoog als het jaargemiddelde van 7.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. De maanden maart en oktober hadden een gemiddelde gelegen rondom het jaargemiddelde. De maanden mei, juni en juli hadden een gemiddelde 10 maal kleiner dan dat van de wintermaanden. Ook voor NO_2 kon een gelijkaardig seizoensverloop herkend worden met hoge concentraties in de wintermaanden: januari, februari, maart, september, oktober en november, december. Laagste concentraties worden gemeten in de julimaand.

Tabel 4: Maandgemiddelde concentraties in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, berekend uit daggemiddelden. Grijs gearceerde waarden liggen boven het jaargemiddelde.

| | | jan | Feb | maa | apr | mei | jun | jul | aug | sep | okt | nov | dec |
|---------------|-----|------|------|------|------|-------|-------|-------|-------|------|-------|-------|------|
| SO_2 | M | 11.0 | 18.9 | 17.4 | 15.0 | 18.2 | 12.0 | 11.4 | 14.8 | 15.1 | 19.6 | 16.0 | 16.7 |
| | Max | 32.6 | 44.1 | 41.8 | 55.4 | 36.3 | 27.4 | 34.7 | 34.9 | 32.0 | 53.0 | 48.9 | 38.0 |
| O_3 | M | 30.1 | 30.9 | 29.6 | 42.6 | 63.9 | 65.5 | 70.1 | 55.3 | 37.3 | 24.2 | 20.3 | 27.2 |
| | Max | 60.1 | 69.9 | 55.1 | 80.1 | 110.3 | 105.9 | 123.7 | 107.9 | 80.4 | 43.5 | 48.9 | 38.0 |
| NO | M | 10.6 | 13.1 | 4.6 | 3.4 | 1.9 | 1.9 | 1.7 | 4.1 | 5.4 | 16.2 | 20.2 | 9.5 |
| | Max | 83.7 | 65.5 | 19.3 | 39.5 | 14.2 | 13.3 | 20.3 | 33.2 | 33.1 | 177.4 | 105.6 | 81.3 |
| NO_2 | M | 31.3 | 33.8 | 29.3 | 22.0 | 17.4 | 16.0 | 13.4 | 19.6 | 26.7 | 33.2 | 31.2 | 30.8 |
| | Max | 52.0 | 74.9 | 45.4 | 56.9 | 38.7 | 31.3 | 34.6 | 36.7 | 48.0 | 91.3 | 58.2 | 57.7 |
| NH_3 | M | - | - | - | - | - | 9.1 | 14.5 | 14.1 | 4.8 | 1.7 | 4.8 | 0.8 |
| | Max | - | - | - | - | - | 30.4 | 56.4 | 41.3 | 16.1 | 7.0 | 21.0 | 2.9 |

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

| | Aantal | P10 | P30 | P50 | P60 | P70 | P80 | P90 | P95 | P98 | Max | M |
|---------------|--------|------|------|------|------|------|------|------|------|-------|-------|------|
| SO_2 | 340 | 4.6 | 9.9 | 14.4 | 16.5 | 19.1 | 22.3 | 27.6 | 32.2 | 41.2 | 55.4 | 15.6 |
| O_3 | 303 | 12.0 | 28.8 | 39.8 | 45.4 | 57.1 | 64.2 | 75.5 | 85.0 | 104.1 | 123.7 | 42.8 |
| NO | 333 | 0.0 | 0.4 | 1.5 | 3.1 | 5.7 | 9.9 | 19.7 | 33.2 | 57.4 | 177.4 | 7.5 |
| NO_2 | 333 | 8.0 | 16.3 | 23.4 | 27.2 | 31.4 | 36.5 | 43.6 | 48.4 | 55.2 | 91.3 | 25.0 |
| NH_3 | 124 | 0.3 | 1.4 | 3.3 | 4.9 | 6.8 | 10.3 | 19.9 | 29.0 | 36.3 | 56.4 | 7.1 |

Tabel 6: Windrichtingfrequenties (in %) per maand.

| | jan | Feb | maa | apr | mei | jun | jul | aug | sep | okt | nov | Dec |
|-----|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|
| N | 10.2 | 15.7 | 4.9 | 5.3 | 2.8 | 6.3 | 3.1 | 6.7 | 1.4 | 1.3 | 5.3 | 4.9 |
| NNO | 17.7 | 4.4 | 2.2 | 6.8 | 8.1 | 8.9 | 11.9 | 3.2 | 2.8 | 0.8 | 10.2 | 2.2 |
| NO | 9.2 | 2.0 | 2.2 | 7.6 | 10.6 | 6.5 | 19.8 | 7.6 | 4.5 | 6.7 | 8.3 | 2.2 |
| ONO | 4.0 | 2.1 | 2.1 | 3.8 | 10.6 | 5.8 | 5.9 | 9.2 | 7.1 | 14.0 | 3.2 | 2.1 |
| O | 2.3 | 3.1 | 1.9 | 3.5 | 7.4 | 3.9 | 1.7 | 8.3 | 6.0 | 7.8 | 1.3 | 1.9 |
| OZO | 4.7 | 1.8 | 1.9 | 5.5 | 4.7 | 1.3 | 2.3 | 5.0 | 7.9 | 5.5 | 1.1 | 1.9 |
| ZO | 3.0 | 1.6 | 5.5 | 6.0 | 4.0 | 1.4 | 1.6 | 2.6 | 7.1 | 7.4 | 6.0 | 5.5 |
| ZZO | 3.1 | 1.0 | 6.8 | 10.6 | 1.7 | 4.9 | 1.6 | 3.7 | 10.9 | 7.4 | 5.5 | 6.8 |
| Z | 3.1 | 2.2 | 8.5 | 6.1 | 2.8 | 10.0 | 2.3 | 4.9 | 13.3 | 7.1 | 5.1 | 8.5 |
| ZZW | 8.3 | 5.1 | 9.9 | 8.9 | 9.6 | 12.0 | 6.1 | 10.8 | 20.6 | 9.7 | 10.8 | 9.9 |
| ZW | 7.8 | 7.8 | 8.1 | 10.4 | 11.9 | 9.7 | 10.2 | 13.6 | 9.9 | 9.5 | 15.8 | 8.1 |
| WZW | 4.4 | 6.6 | 6.6 | 4.7 | 7.7 | 4.6 | 8.0 | 4.6 | 2.7 | 5.8 | 7.7 | 6.6 |
| W | 5.3 | 8.8 | 6.8 | 3.0 | 6.9 | 5.3 | 7.7 | 4.0 | 2.4 | 6.7 | 6.0 | 6.8 |
| WNW | 5.9 | 6.6 | 11.9 | 4.5 | 5.0 | 4.6 | 6.6 | 4.4 | 1.4 | 4.1 | 3.5 | 11.9 |
| NW | 5.0 | 6.8 | 12.1 | 6.7 | 4.0 | 9.6 | 5.6 | 4.9 | 0.8 | 4.4 | 4.7 | 12.1 |
| NNW | 5.9 | 24.4 | 8.5 | 6.6 | 2.2 | 5.2 | 5.6 | 6.6 | 1.3 | 2.0 | 5.5 | 8.5 |

Tabel 7: Percentielverdeling van de halfuurwaarden in $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

| | P10 | P30 | P50 | P60 | P70 | P80 | P90 | P95 | P98 | Max | Gem |
|-------------------|-----|------|------|------|------|------|------|-------|-------|-------|------|
| SO ₂ | 2.6 | 6.1 | 11.4 | 14.0 | 18.3 | 23.6 | 34.9 | 45.9 | 58.5 | 182.5 | 15.5 |
| O ₃ | 2.0 | 20.7 | 38.2 | 48.0 | 54.7 | 66.0 | 86.0 | 107.3 | 134.0 | 202.7 | 42.2 |
| NO | 0.0 | 0.0 | 0.0 | 0.0 | 1.7 | 5.0 | 20. | 42.2 | 83.8 | 625.0 | 7.8 |
| NO ₂ | 2.5 | 11.5 | 21.6 | 26.7 | 34.4 | 43.3 | 52.8 | 60.5 | 69.4 | 273.1 | 25.3 |
| NH ₃ * | 0.0 | 0.7 | 2.0 | 3.0 | 4.2 | 7.4 | 13.7 | 21.3 | 37.8 | 137.2 | 5.2 |

* Waarden geldend voor periode 22 juni 1999 tot 31 december 1999.

Maximaal daggemiddelde voor NO bedroeg $177.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in de maand oktober (tabel 5). De halfuurwaarde kon echter oplopen tot $625.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (tabel 7). De mediaanwaarde voor NO bedroeg $1.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$, tegenover een jaargemiddelde van $7.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$. De concentraties zijn lognormaal verdeeld waardoor hogere piekconcentraties het gemiddelde sterk naar boven optrekken. De mediaanwaarde van de halfuurwaarden bedroeg $0.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Uit het pollutierooster (figuur 3) kan afgeleid worden dat winden uit W tot WZW sector hogere concentraties aan stikstofoxiden aanbrengen.

NO₂-concentraties verliepen gelijkmatiger met een mediaanwaarde van $23.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$, in de buurt van het jaargemiddelde $25.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (tabel 5). Het maximum daggemiddelde van $91.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ lag ver onder het maximum halfuurgemiddelde van $273.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

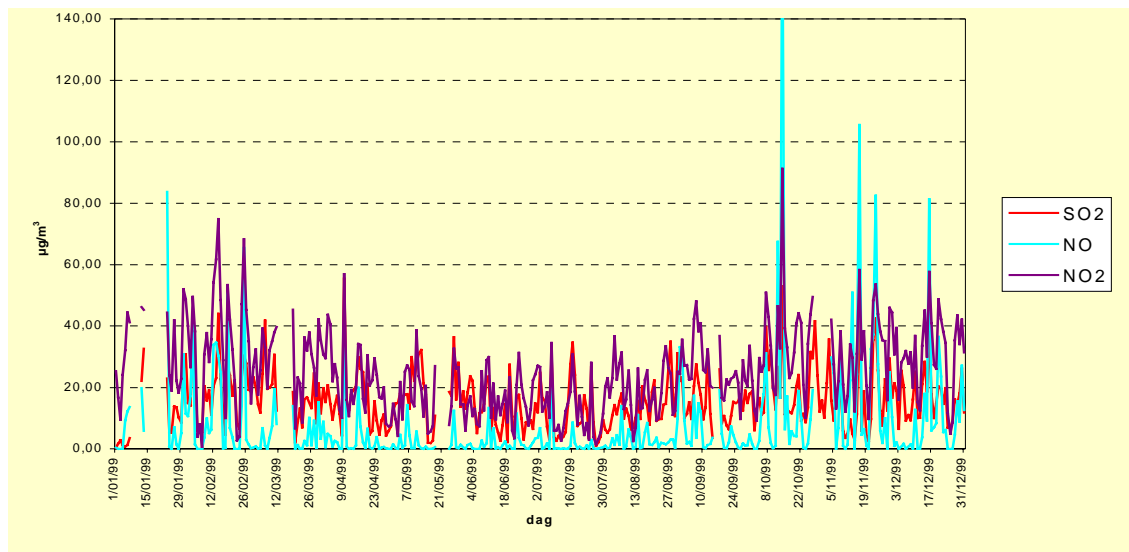
2.4.4 NH₃

Voor 1999 zijn er slechts data beschikbaar vanaf juni. De maanden juni, juli en augustus toonden een maandgemiddelde hoger dan het jaargemiddelde van $7.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Deze metingen

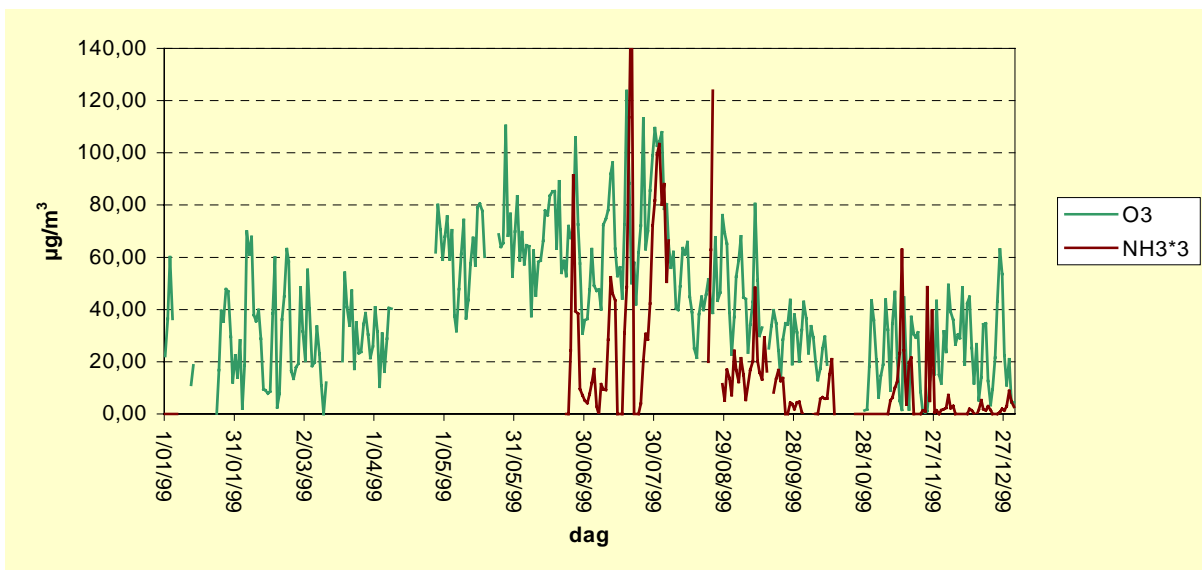
bevestigen resultaten van een vorige meetcampagne uitgevoerd in opdracht van de Vlaamse Milieumaatschappij in de periode 1997-1998 dat in gebieden zonder ammoniakbronnen in de directe omgeving, zoals te Brasschaat, toch nog jaargemiddelde concentraties van $8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ kunnen gehaald worden (De Fré & Swaans, 1999; De Temmerman en Overloop, 1999). Vanaf de maand september worden lagere meetwaarden genoteerd. De hoogste NH_3 -concentraties worden gemeten bij winden uit de noordoostelijke sector.

De gemiddelde mediaanwaarde van de daggemiddelden bedroeg slechts $3.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ wat nauwelijks de helft is van de rekenkundig gemiddelde waarde.

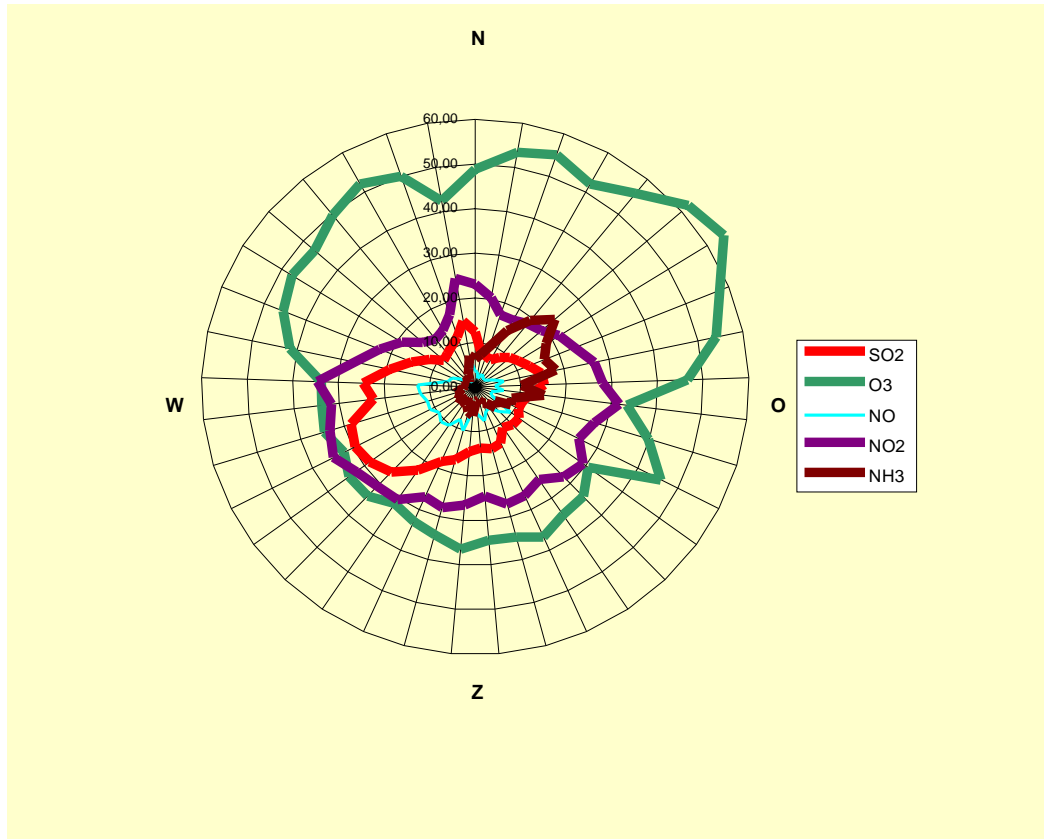
De maximale dagelijkse meetwaarde wordt bereikt in juli ($56.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$). De maximum waarde van de halfuurgemiddelden bedraagt $137.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$.



Figuur 1: Verloop van de daggemiddelden van SO_2 , NO en NO_2 in 1999.



Figuur 2: Verloop van de daggemiddelden van O_3 en NH_3 in 1999.



Figuur 3: Luchtconcentraties in µg/m³ volgens windrichtingsectoren van 10°.

2.5 VERGELIJKING JAARGEMIDDELDEN

Tabel 8 geeft een overzicht van de jaargemiddelde concentraties over de periode 1995-1999. In 1999 zijn de gemiddelde SO₂ en NO_x-concentraties op het laagste niveau gekomen. Jaargemiddelde ozonconcentraties vertonen een toenemende trend.

Tabel 8: Jaargemiddelde concentraties in µg/m³, berekend uit halfuurwaarden.

| | SO ₂ | O ₃ | NO | NO ₂ | NH ₃ |
|------|-----------------|----------------|------|-----------------|-----------------|
| 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 |

Het verloop van de jaarlijkse mediaanwaarden wijkt lichtjes af van die van de gemiddelde waarden (tabel 9). 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, in bijzonder NO₂, wordt de dalende tendens bevestigd. De jaarlijkse toename in ozonconcentraties is bij mediaanwaarden nog hoger in vergelijking met de rekenkundig gemiddelden.

Tabel 9: Jaarlijkse mediaanconcentraties in µg/m³, berekend uit halfuurwaarden.

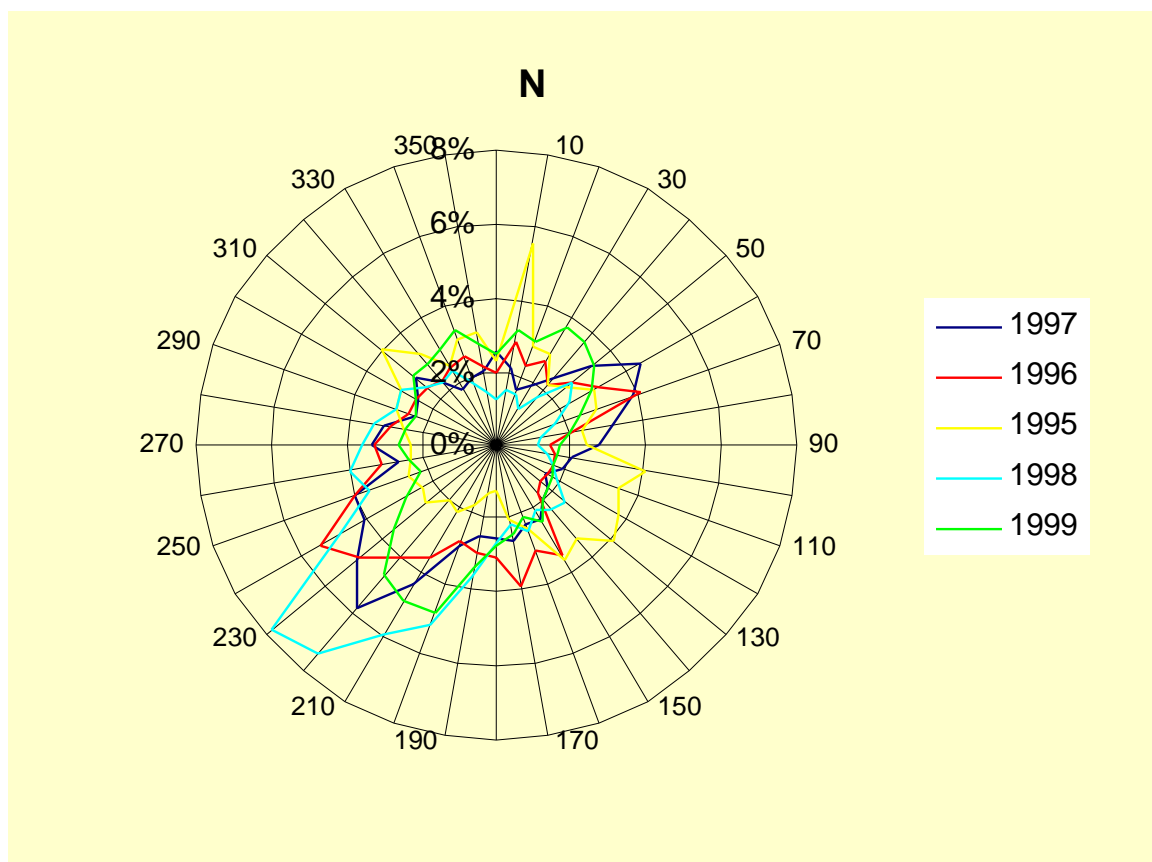
| | SO ₂ | O ₃ | NO | NO ₂ | NH ₃ |
|------|-----------------|----------------|-----|-----------------|-----------------|
| 1995 | 10.5 | 26.7 | 2.1 | 31.8 | - |
| 1996 | 13.1 | 32.7 | 2.5 | 30.6 | - |
| 1997 | 11.3 | 34.0 | 4.1 | 34.4 | - |
| 1998 | 12.2 | 38.0 | 0.8 | 25.5 | - |
| 1999 | 11.4 | 38.2 | 0.0 | 21.6 | 2.5 |

De tijdsduur is te kort om uit te maken of deze tendens deel uitmaakt van een korte termijn schommeling of een langere termijn trend. Bovendien kunnen meteorologische omstandigheden een bestaande trend maskeren of versterken. Luchtconcentraties van een bepaald pollutant wordt ook mede beïnvloed door het gedrag van andere pollutanten. In dit verband kan gewezen op de wederzijdse stimulus van SO₂ en NH₃ en de complexe interacties tussen stikstofoxiden en ozon.

Windrichting werd aangehaald als een van de sturende factoren van luchtconcentraties. Figuur 4 geeft de verdeling van de windrichting over de verschillende windsectoren tussen 1995 en 1999. Hieruit blijkt dat in 1999 de wind minder frequent uit de zuidwestelijke sector kwam vergeleken met voorgaande jaren.

Naast windrichting vertoont ook de neerslaghoeveelheid een grote variabiliteit tussen de 5 meetjaren. In dit verband werd aangetoond dat de hoge neerslagvolumes in 1998 leidden tot

een verlaging van de atmosferische stofdeeltjesdichtheid (verdunding aërosolen in de atmosfeer).



Figuur 4: Verdeling van de windrichtingfrequentie volgens sectoren van 10° voor de jaren 1995 tot 1999.

2.6 NORMEN

Normen inzake de bescherming van vegetatie tegen hoger vernoemde gassen bestaan op verschillende niveaus. Een wettelijke drempelwaarde ozon voor de bescherming van de vegetatie is opgenomen in de EU Richtlijn 92/72 als een daggemiddelde van $65 \mu\text{g}/\text{m}^3$ en een uurgemiddelde van $200 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Daarnaast wordt internationaal het begrip kritisch niveau ('critical level') gehanteerd. Concentraties boven deze drempelwaarden kunnen de structuur en functionering van ecosystemen aantasten. Er wordt onderscheid gemaakt tussen korte termijn blootstelling met acute effecten tot gevolg en lange termijn blootstelling met chronische effecten tot gevolg (Overloop en Roskams, 1999). Critical levels voor SO_2 en O_3 zijn bepaald voor bosvegetatie (tabel 10). De waarden voor NO_x en NH_3 verwijzen naar alle vegetatietypes. Er wordt aangenomen dat de gevoeligheid voor NO_x en NH_3 daalt van halfnatuurlijke vegetatie, over bossen naar landbouwgewassen (de Vries et al., 1997).

Tabel 10: Critical levels voor de bescherming van bossen (UN/ECE, 1996).

| | | Kortstondige blootstelling | | Langdurige blootstelling | |
|---------------|-----------------|------------------------------|----------------|-----------------------------|--|
| SO_2 | Daggemiddelde | $70 \mu\text{g}/\text{m}^3$ | Jaargemiddelde | $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ | |
| NO_x | 4-uurgemiddelde | $95 \mu\text{g}/\text{m}^3$ | Jaargemiddelde | $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ | |
| O_3 | | | AOT40 | 10 ppm uur | |
| NH_3 | Daggemiddelde | $270 \mu\text{g}/\text{m}^3$ | Jaargemiddelde | $8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ | |

Voor SO_2 werd in 1999 geen overschrijding van de kortstondige critical level vastgesteld (tabel 11). De lange termijn waarde werd ook in 1999 niet overschreden. Voor stikstofoxiden wordt zowel de acute als chronische drempelwaarde overschreden. De korte termijn critical level voor NO_x werd op 95 dagen overschreden. Voor ammoniak bevindt het jaargemiddelde zich net onder de kritieke waarde voor langdurige blootstelling.

Tabel 11: Toetsing van kritische waarden voor kortstondige en langdurige blootstelling van SO_2 en NO_x over de periode 1996 tot 1999.

| Jaar | SO_2 | | NO_x | |
|------|---------------|-----------|---------------|-----------|
| | Acuut | chronisch | acuut | chronisch |
| 1996 | 2 | 19.3 | 121 | 51.8 |
| 1997 | 3 | 18.7 | 124 | 56.2 |
| 1998 | 2 | 18.1 | 116 | 45.4 |
| 1999 | 0 | 15.5 | 95 | 37.2 |

De dalende tendens voor beide componenten laat zich duidelijk gevoelen in een daling van het aantal overschrijdingen van de acute kritische niveaus (tabel 11). Voor NO_x bevindt het jaargemiddelde zich nog altijd boven de chronische kritieke waarde.

De “critical level” voor ozon, de AOT40, is gedefinieerd als de sommatie van het verschil tussen de uurgemiddelde waarde en de drempelwaarde van 40 ppb. Deze berekening wordt enkel gemaakt voor die uren waarbij de globale straling sterker is dan 50 W/m² en dit tijdens de vegetatieperiode. Hiervoor wordt de periode van 1 april tot 30 september gehanteerd. Voor bossen werd het kritieke niveau van de AOT40 waarde gelijkgesteld aan 10 ppm uur. Deze kritieke waarde werd in gecontroleerde omstandigheden afgeleid voor beuk en werd louter in verband gebracht met biomassareductie en minder met verstoring van bepaalde fysiologische processen.

De hoogte boven de vegetatie waarop de critical level wordt bepaald blijkt een invloed te hebben op deze AOT40-waarde (tabel 12). De waarde stijgt bij toenemende hoogte. Ook ter hoogte van de dennenkronen wordt de kritieke waarden overschreden.

Tabel 12: AOT40-waarde in ppbuur op verschillende hoogtes

| Hoogte | 40 m | 32 m | 24 m | 10 m |
|--------------|-------|-------|-------|-------|
| AOT40-waarde | 12114 | 12044 | 11443 | 10110 |

3 ANALYSE PROFIELMETINGEN

Te Brasschaat wordt op vier hoogtes onder en boven het kronendak luchtconcentraties gemeten. De doelstelling van deze metingen is de bepaling van de grootte en richting van de verticale gradiënt. Uit gradiëntmetingen en eddy diffusiviteitsbepalingen kan de depositieflux naar het bos bepaald worden. Boven het kronendak bevindt zich een atmosferische grenslaag waarbinnen de concentraties niet constant zijn met de hoogte. In micrometeorologische theorie is de wijziging van de concentratie toe te schrijven aan een depositie- of emissieflux die constant is met de hoogte. In praktijk moet ook rekening gehouden worden met een wijziging van de concentratie, veroorzaakt door chemische reacties, of horizontale luchtstromingen (Fowler & Duyzer, 1989). De vegetatie van het bos fungeert als een depositieoppervlak voor gasen als SO₂, O₃, NO₂ en NH₃. Bomen kunnen optreden als bron van NH₃ (Wyers & Erisman, 1996).

Tabel 13 toont het verloop van de jaargemiddelde verticale profielen tussen 1996 en 1999. Deze werden berekend uit uurgemiddelde waarden. Op 10 m hoogte wordt een dubbele meting verricht: één met een aanzuigleiding van 53.5 m en één met een aanzuigleiding van 20.5 m. Ook in het verloop van de verticale profielen komen de uiteenlopende trends tot uiting.

Voor SO₂ en O₃ wordt gemiddeld een positieve gradiënt boven het kronendak waargenomen. NO-concentraties verlopen gemiddelde volgens een uitgesproken negatieve gradiënt. NO₂-concentraties verlopen gemiddeld volgens een licht negatieve gradiënt, maar op 10 m hoogte daalt de concentratie lager dan op 40 m.

Tabel 13: Jaargemiddeld verticaal profiel voor de periode 1996-1999 in ppb.

| Jaar | Hoogte | SO ₂ | O ₃ | NO | NO ₂ | NH ₃ |
|------|----------|-----------------|----------------|------|-----------------|-----------------|
| 1996 | 40 m | 7.3 | 18.4 | 9.4 | 17.8 | - |
| 1996 | 32 m | 7.1 | 17.9 | 10.0 | 17.9 | - |
| 1996 | 24 m | 6.9 | 17.4 | 10.7 | 18.0 | - |
| 1996 | 10 m | 6.0 | 16.1 | 10.6 | 17.3 | - |
| 1996 | 10 m bis | 5.9 | 16.1 | 10.6 | 17.2 | - |
| 1997 | 40 m | 7.2 | 19.6 | 11.1 | 18.2 | - |
| 1997 | 32 m | 7.0 | 19.1 | 11.8 | 18.4 | - |
| 1997 | 24 m | 6.7 | 18.4 | 12.6 | 18.5 | - |
| 1997 | 10 m | 5.8 | 17.1 | 12.5 | 17.6 | - |
| 1997 | 10 m bis | 5.8 | 17.1 | 12.7 | 17.7 | - |
| 1998 | 40 m | 6.9 | 20.1 | 8.4 | 15.4 | - |
| 1998 | 32 m | 6.7 | 19.7 | 9.0 | 15.5 | - |
| 1998 | 24 m | 6.5 | 19.1 | 9.5 | 15.5 | - |
| 1998 | 10 m | 5.6 | 17.9 | 9.5 | 15.0 | - |
| 1998 | 10 m bis | 5.5 | 17.6 | 9.4 | 15.0 | - |
| 1999 | 40 m | 5.9 | 21.1 | 6.2 | 13.3 | 7.1 |
| 1999 | 32 m | 5.8 | 20.8 | 6.8 | 13.4 | 6.7 |
| 1999 | 24 m | 5.6 | 19.9 | 7.5 | 13.6 | 5.2 |
| 1999 | 10 m | 4.9 | 18.5 | 7.2 | 12.9 | - |
| 1999 | 10 m bis | 4.8 | 18.4 | 7.2 | 12.8 | - |

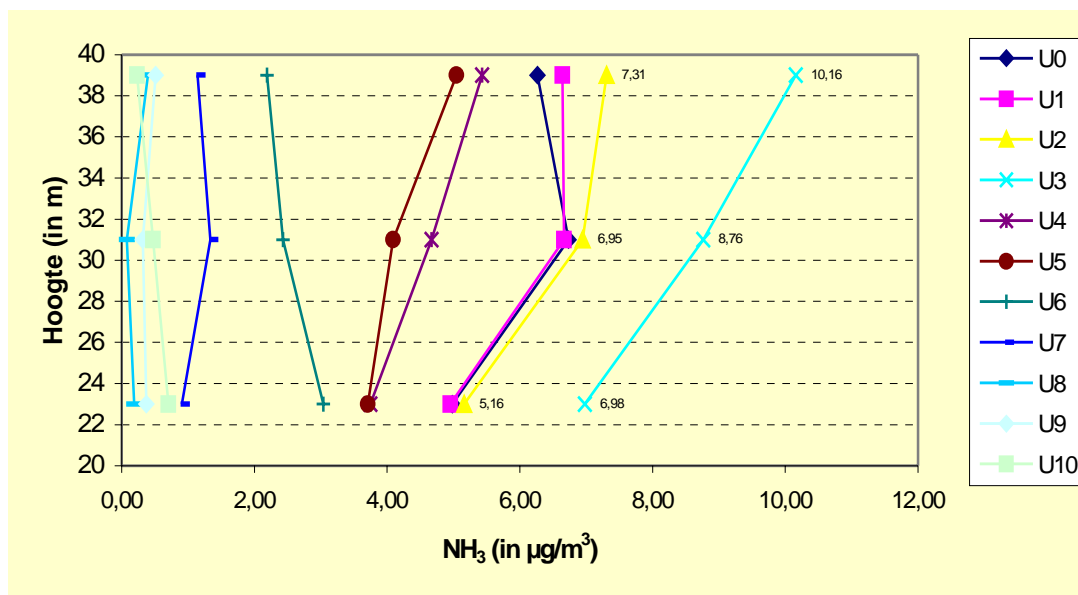
De jaargemiddelde gradiënten zijn klein behalve voor NH_3 (Overloop et al., 1999). Boven het kronendak bedraagt de gradiënt 0.02, 0.06, -0.08, -0.02 en 0.18 ppb/m voor respectievelijk SO_2 , O_3 , NO , NO_2 en NH_3 (tabel 14).

Tabel 14: Gradiënt boven kronendak (tussen 24 en 40 m) in ppb/m in functie van de windsnelheid. U_0 staat voor $u < 1$ m/s ; U_1 staat voor $1 \leq u < 2$;; U^* staat voor de jaargemiddelde gradiënt. Gearceerd: waarden boven jaargemiddelde gradiënt

| | U_0 | U_1 | U_2 | U_3 | U_4 | U_5 | U_6 | U_7 | U^* |
|---------------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| O_3 | 0.17 | 0.11 | 0.08 | 0.04 | 0.01 | 0.01 | -0.01 | -0.01 | 0.06 |
| SO_2 | 0.06 | 0.05 | 0.03 | 0.01 | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.00 | 0.02 |
| NO | -0.31 | -0.21 | -0.08 | -0.01 | -0.01 | 0.00 | 0.00 | 0.00 | -0.08 |
| NO_2 | -0.05 | -0.04 | -0.03 | -0.01 | 0.00 | 0.01 | 0.01 | 0.01 | -0.02 |
| NH_3 | 0.12 | 0.17 | 0.19 | 0.25 | 0.14 | 0.11 | -0.06 | 0.06 | 0.18 |

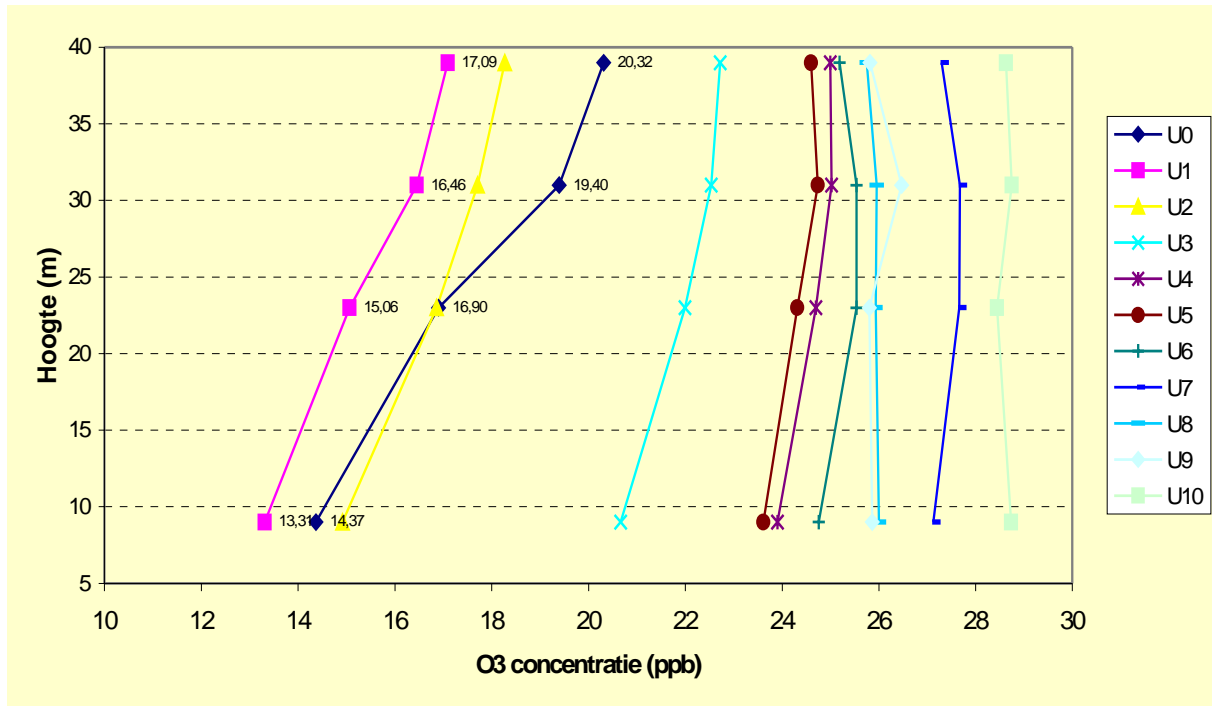
De invloed van de windsnelheid op de profielen van de polluenten is groot (tabel 13). Voor alle polluenten is bij een lagere windsnelheid een grotere gradiënt waarneembaar. Doorgaans worden de luchtlagen bij hogere windsnelheden beter gemengd door verhoogde turbulentie. De grootste gradiënten worden opgemeten bij windsnelheden kleiner dan 2 m/s behalve voor ammoniak. Voor dit polluent situeren de grootste gradiënten zich bij windsnelheden tussen 2 en 4 m/s. De grootste gradiënten boven kronendak bedragen 0.05, 0.15, -0.3, -0.05 en 0.25 ppb/m voor respectievelijk SO_2 , O_3 , NO , NO_2 en NH_3 .

De gemiddelde concentratie boven het kronendak daalt bij toenemende windsnelheid. Bij toenemende windsnelheid zal de invloed van emissiebronnen op de gemeten concentraties afnemen doordat een grotere dispersie in de atmosfeer optreedt en dus lagere immissiewaarden gemeten worden. In figuur 5 wordt het verloop van de gradiënten en het concentratieniveau voor NH_3 weergegeven in functie van de windsnelheid. Lagere windsnelheden werken een stabiele stratificatie en hogere concentratieniveaus in de hand.



Figuur 5: Het ammoniak-profiel in functie van de windsnelheid (u): U_0 staat voor $u < 1$ m/s ; U_1 staat voor $1 \leq u < 2$;

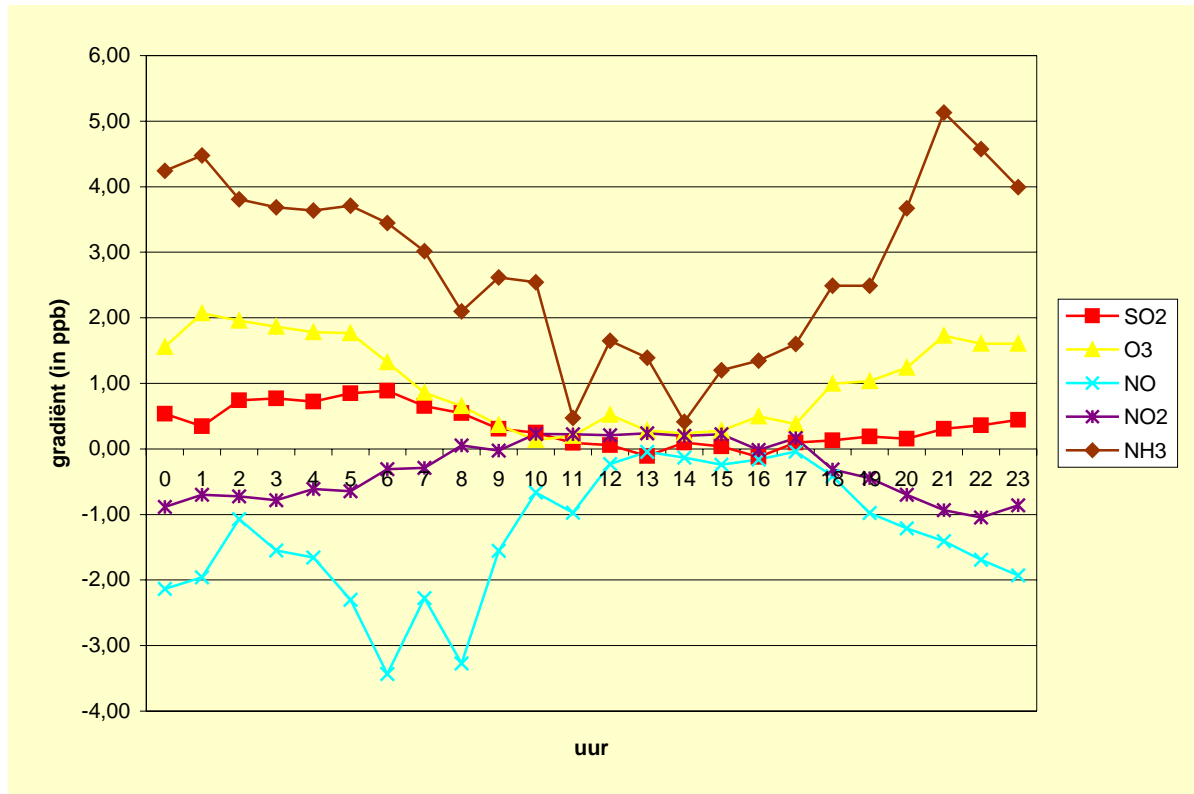
Voor ozon, als secundaire pollutant, is de situatie enigszins anders. Ook hier treedt vorming van gradiënten voornamelijk op tijdens lage windsnelheden maar dit geschiedt enkel bij lage concentratieniveaus (Figuur 6). Bij hogere windsnelheden ligt het concentratieniveau dubbel zo hoog en is stratificatie onbestaande. Dit heeft te maken met de hogere dispersie van stikstofoxiden tijdens hogere windsnelheden. De lagere NO_x concentraties stimuleren de netto ozonproductie (Peeters, 1998).



Figuur 6: Het ozon-profiel in functie van de windsnelheid (u): U_0 staat voor $u < 1$ m/s ; U_1 staat voor $1 \leq u < 2$; ..., u_{10} : > 10 m/s

De gradiënten volgen tevens een duidelijk dagelijks verloop (figuur 7). Overdag zijn de gradiënten ten gevolge van een hogere atmosferische menging het kleinst. 's Nachts wanneer de turbulentie gering is, zijn de gradiënten meer uitgesproken. De atmosfeer is stabiel. Daaruit kan niet besloten worden dat de fluxen 's nachts groter zullen zijn. De lagere gradiënten overdag worden meer dan gecompenseerd door hogere eddy diffusiviteiten met hogere fluxen tot gevolg.

Uit figuur 7 blijkt ook duidelijk het bestaan van neerwaartse fluxen voor ammoniak, zwaveldioxide en ozon. Voor NO zijn de gradiënten negatief waardoor van een emissie gewag gemaakt kan worden. In de literatuur worden voor NO lage depositiesnelheden (< 0.1 cm/s) vermeld (Lovett, 1994). Voor NO_2 verloopt de opname bijna uitsluitend via de stomata (Erisman et al., 1994). De fluxen van NO_2 zijn opwaarts 's nachts maar neerwaarts tussen 10 en 16h. Een stomatale opname van NO_2 is derhalve zeker niet uit te sluiten. Depositiesnelheden van NO_2 worden in hoofdzaak bepaald door de stomatale weerstand en variëren tussen 0.1 en 0.5 cm/s wanneer stomata open zijn en zijn lager dan 0.1 cm/s wanneer stomata gesloten zijn (Lovet, 1994).



Figuur 7: Gemiddelde dagverloop van de gradiënten van SO₂, O₃, NO, NO₂ en NH₃ (in ppb) tijdens 1999.

4 DANKWOORD

Wij danken Yves Buidin en Luc de Geest werkzaam op het Instituut voor bosbouw en Wildbeheer (IBW) voor hun assistentie bij het verzamelen van gegevens en het onderhoud van het meetstation.

5 REFERENTIES

Andersen, H.V. & Hovmand, M.F., 1999. Review of dry deposition of ammonia and nitric acid to forest. *Forest Ecology and Management*, 114, 5-18.

De Fré, R., Swaans, W. , 1999. Screening ammoniakconcentraties in Vlaanderen (1997-1998) VITO rapport 1998/DIA/R/216

De Temmerman, L. & Overloop, S., 1999. Vergelijkende metingen van concentraties en deposities van ammoniakale stikstof op de meettoeren van Brasschaat. *Mededelingen van het Instituut voor Bosbouw en Wildbeheer*, 1999/1, 89-101.

de Vries, W., Reins, G.J., Klap, J., van Leeuwen, E., Erisman, J.W., 1997. Critical thresholds for sulphur and nitrogen compounds and ozone. In: Müller-Edzards, C., de Vries, W., Erisman, J.W. (eds.), *Ten years of monitoring forest condition in Europe*. UN/ECE.

Erisman, J. W., Van Pul, A. & Wyers, P., 1994. Parametrization of surface resistance for the quantification of atmospheric deposition of acidifying pollutants and ozone. *Atmospheric Environment* 28, 2595-2607.

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

EMA, 1997. *Luchtverontreiniging in Europa 1997*, Europees Milieuagentschap, Milieu Monografie Nr. 4.

Fowler, D., Duyzer, J.H., 1989. Micrometeorological techniques for the measurements of trace gas exchange. In: Andreae, M.O., Schimel, D.S. (eds.), 1989. *Exchange of trace gases between terrestrial ecosystems and the atmosphere*. Dahlem Workshop Reports. Life Sciences Research Report 47, John Wiley & sons.

Fowler, D., Flechard, C., Skiba, U., Coyle, M., Cape, N., 1997. The atmospheric budget of oxidized nitrogen and its role in ozone formation and deposition. *New Phytol* 139, 11-23.

Lovett, G., 1994. Atmospheric deposition of nutrients and pollutants in North America: an ecological perspective. *Ecological Applications* 4, 629-650.

Monteith, J.L., Unsworth, M., 1973. *Principles of environmental physics*.

Overloop, S. & Roskams, P., 1996. *Infrastructuur van het meetstation voor luchtverontreiniging te Brasschaat*. Ministerie van de Vlaamse Gemeenschap. AMINAL. Instituut voor Bosbouw en Wildbeheer, IBW Bb R 96.001. 14 pp.

Overloop, S. & Roskams, P., 1998. Meetnet voor de intensieve monitoring van het bosecosysteem in het Vlaamse Gewest, resultaten 1991-1992. Ministerie van de Vlaamse Gemeenschap, AMINAL, Afdeling Bos en Groen, Instituut voor Bosbouw en Wildbeheer 191 pp.

Overloop, S., Roskams, P., 1996. Meetstation voor luchtverontreiniging Brasschaat. Jaarverslag 1995. Ministerie van de Vlaamse Gemeenschap. AMINAL. Instituut voor Bosbouw en Wildbeheer.

Peeters, J., 1998. Chemistry of ozone in the ambient atmosphere. Non-linear dependance of ozone levels on Nox and VOC emissions. Paper presented at the DWTC-seminar 'Ozon in de troposfeer, onderzoek en beleid', Brussel 26 juni 1998.

Roskams, P., Sioen, G., Overloop, S., 1997. Meetnet voor de intensieve monitoring van het bosecosysteem in het Vlaamse Gewest, resultaten 1991-1992. Ministerie van de Vlaamse Gemeenschap, AMINAL, Afdeling Bos en Groen, Instituut voor Bosbouw en Wildbeheer.

VMM, 1999. Lozingen in de lucht 1997-1998. 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.