

MINISTERIE VAN DE VLAAMSE GEMEENSCHAP

Administratie Milieu-, Natuur-, Land- en Waterbeheer

INSTITUUT VOOR BOSBOUW EN WILDBEHEER

Gaverstraat 4
9500 Geraardsbergen

MEETSTATION VOOR LUCHTVERONTREINIGING BRASSCHAAT JAARVERSLAG 2003

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

J. Neiryne en P. Roskams

Augustus 2004

IBW Bb R 2004.016

Johan Neiryndck, Peter Roskams
Instituut voor Bosbouw en Wildbeheer
Wetenschappelijke instelling van de Vlaamse Gemeenschap
Gaverstraat 4, 9500 Geraardsbergen
www.ibw.vlaanderen.be
e-mail: Johan.Neiryndck@lin.vlaanderen.be

Wijze van citeren: Neiryndck J., Roskams, P. 2004. Meetstation voor luchtverontreiniging
Brasschaat. Jaarverslag 2003
IBW Bb R 2004.016.

Druk: Ministerie van de Vlaamse Gemeenschap, Departement L.I.N. A.A.D. afd. Logistiek –
Digitale drukkerij

Depotnummer

D/2004/3241/293

Inhoudsopgave

1. Inleiding.....	1
2. Methodiek.....	2
2.1. Meetlocatie, -methodiek en -cyclus	2
2.2. Bepalingen depositiefluxen.....	3
3. Concentratieniveaus	7
3.1. Verloop concentraties gasvormige componenten	7
3.2. Trend 1995-2000	10
3.3. Tijdsreeksanalyse van gasvormige componenten met bijdrage van meteorologische variabelen.....	12
3.4. Kritische normen	15
4. Gradiëntmetingen	
4.1. Gradiëntmetingen van SO ₂	17
4.1.1. Flukskarakteristieken	17
4.1.2. Netto-doorval SO ₄ versus droge depositie SO ₂	18
4.2. Gradiëntmetingen van O ₃	19
4.2.1. Flukskarakteristieken 2000-2002	19
4.2.2. Opdelen ozonfluks in stomataire en niet-stomataire component.....	20
5. Conclusies	23
6. Dankwoord	24
7. Literatuur	24

1. Inleiding

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

Naast luchtconcentraties zijn er ook gradiënten van de gassen beschikbaar die doorgerekend worden naar fluksen (NH_3 , SO_2 en O_3). Naast gradiëntmetingen, worden fluksen ook modelmatig verkregen (bv. NO en NO_2). Op die manier wordt verder inzicht verschaft in de droge depositie van zwavel, stikstof en ozon en de invloed van meteorologische factoren tot hun fluks grootte. De fluksmetingen worden verricht in samenwerking met de UIA die de sonische anemometer sinds 1997 op de toren beheert en instaat voor de bepaling van CO_2 -fluksen op de site.

De monitoring van concentraties en fluksen in bosomgeving is vereist om effect van brongerichte maatregelen op de concentratieniveaus en fluksen te evalueren. De Europese NEC richtlijn (2001/81/EG) voorziet ambitieuze emissieplafonds voor SO_2 , NO_x , VOC en NH_3 die tegen 2010 moeten gehaald worden. Deze plafonds worden in het MINA-plan 2 doorgerekend naar depositiedoelstellingen op middellangetermijn (MLTD; 2010). Het MINA-plan 3 omvat ook een langetermijndoelstelling (LTD) die tegen 2030 moeten gehaald worden. Het CAFE-programma (Clean Air for Europe) zal een nieuwe thematische strategie over luchtverontreiniging lanceren tegen midden 2005. De doelstellingen hebben o.a. betrekking tot verbetering van monitoring van de luchtkwaliteit en herziening van nationale emissieplafonds.

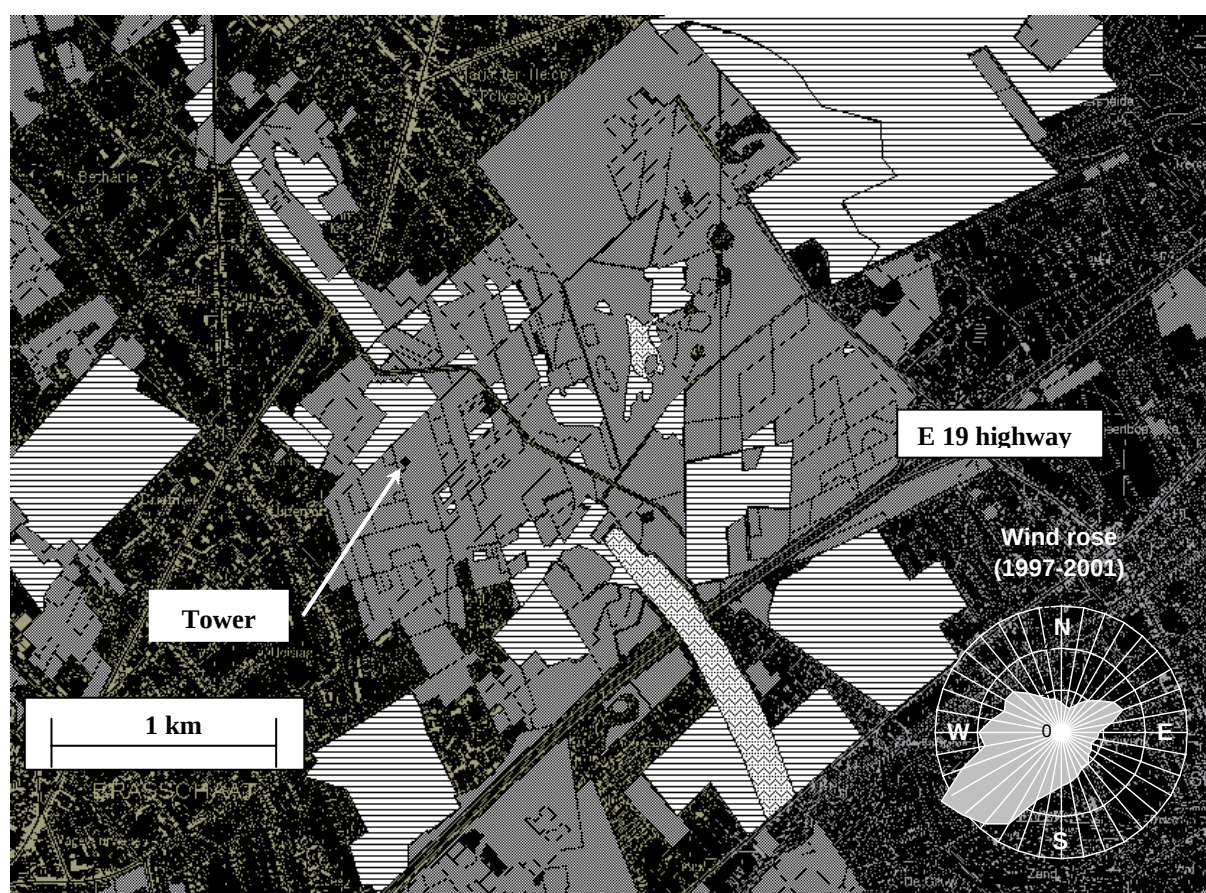
In het kader van de ozonproblematiek wordt ook aandacht besteed aan het optreden van mogelijke schade aan bossen ten gevolge van hoge ozonwaarden. Een kritisch niveau voor ozon is op Europees beleidsniveau geïntroduceerd. Jaarlijks zijn de EU-lidstaten verplicht om informatie rond ozon (overschrijdingen van drempelwaarden) te rapporteren binnen het kader van de “Council Directive 92/97/EEC omtrent luchtverontreiniging door ozon.

De gehanteerde normen (AOT40 index) zijn echter niet zo relevant voor de bosvitaliteit vermits ze geen rekening houden met de invloed van omgevingsfactoren en het ontwikkelingsstadium op de ozonrespons van planten (level I assessment). Daarom wordt gepleit voor indices die meer gerelateerd zijn met effectieve ozonopname in plaats van externe ozonindices om ecologisch relevante normen voor bosbescherming af te leiden. In de Critical level II assessment wordt de ozonopname berekend door ozonconcentraties te combineren met mathematische relaties teneinde de invloed van klimaatsfactoren en het ontwikkelingsstadium op de stomataire conductiviteit te modelleren (geaccumuleerde stomataire ozonflux). Op de meetsite wordt daarom bijzondere aandacht besteed aan het doorrekenen van ozongradiënten naar fluksen om beter inzicht te krijgen in de effectieve ozonopname en de drijvende factoren achter deze depositie.

Methodiek

2.1. Meetlocatie, -methodiek en -cyclus

Het meetstation voor luchtverontreiniging is opgesteld in een wetenschappelijke zone rondom een permanent proefvlak voor de intensieve monitoring van bosesystemen (bosbodemmeetnet) te Brasschaat, provincie Antwerpen (51°18'33" N, 4°31'14" E). Het dennenbestand (*Pinus sylvestris* L) maakt deel uit van het 150 ha groot domeinbos 'De Inslag' en is aangeplant in 1929. Grote overgangen in vegetatie (bv bos-heide) treden in de sector van 20° tot 250° niet op in een straal van 800 m rond de meetlocatie (figuur 1). De omringende vegetatie bestaat naast Grove den ook uit loofhout. Deze beperking betreffende homogeniteit wordt gecompenseerd door het feit dat de bestandstypes ongeveer dezelfde bestandshoogte hebben.



Figuur 1: Situering meettoren in het domein "De Inslag" (grijs: bos, gearceerd: lage vegetatietype, zwart: bebouwing)

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

Het pollutieklimaat op de meetsite wordt bepaald door de aanwezigheid van diverse emissiebronnen. Bij westenwinden wordt SO₂ aangevoerd vanuit de petrochemische nijverheid gevestigd in het Antwerpse havengebied. Zuidwinden voeren NO_x aan afkomstig van verkeersemisatie op de E19. Vanuit het Noordoosten wordt ammoniak aangevoerd afkomstig van intensieve veeteeltkernen in de omgeving van Wuustwezel en Brecht.

In 2003 werd met dezelfde monitoren gemeten als in 2000 (tabel 1). IJking van SO₂ en NO_x-monitoren gebeurt met ijkflessen (ijking bij IRCEL) waarmee om middernacht een span (piekconcentratie vanuit de ijkflessen) wordt getrokken. De ijking van de ozonmonitor gebeurde met een interne ozongenerator.

Daarnaast werden de monitoren van SO₂ en NO_x tweemaal per jaar getest door de VMM-ijkbank. De ozonmonitor werd jaarlijks in het BIM afgeleverd voor controle en ijking aan de primaire ozonstandaard.

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

Polluent	Merk	Type	Meetprincipe
SO ₂	This	43 C	UV-fluorescentie
O ₃	This	49 C	UV-fotometrie
NO, NO ₂	Ecophysics	CLD 700 AL	Chemiluminescentie
NH ₃	ECN	AMANDA	Conductiviteit

Voor NH₃ werd verder gewerkt met de AMANDA (Wyers et al., 1993) waarbij ammoniak aanwezig in de aangezogen luchtstalen doorheen de absorptieoplossing van de denuder diffundeert en vervolgens naar de detector getransporteerd wordt. Er werden net zoals in 2001 slechts 2 meethoogtes (23 en 39 m) aangehouden. Op advies van Otjes R (ECN) werden een aantal aanpassingen aangebracht om het aantal verstoppingen en de mogelijke opname van aerosolen in de denuders te verhinderen. Aanpassingen hebben betrekking tot:

- ontdebellen peristaltische pomp binnen detector;
- beperken air flow tot 24 l min⁻¹;
- betere en constante verwarming binnen de detectorkist;
- verwijderen datalogger uit de detectorkist (aparte eenheid);
- aanbrengen aerosolgeleidende spacers in denuders.

In 2003 werden de ammoniakmetingen beperkt tot proefdraaien als voorbereiding van nieuwe jaarrondmetingen.

2.2. Bepalingen depositiefluxen

2.2.1. Gradiëntmetingen

Uit voorgaande studies (Neirynck en Roskams, 2001; Overloop en Roskams, 1999) bleken ammoniak en ozon over de grootste gradiënten te beschikken. Gradiënten van SO₂ zijn kleiner en onderhevig aan een grotere meetfout. Om de depositieflux van bovenvermelde gassen (ozon in voorbeeld) te bepalen wordt teruggegrepen naar de gradiëntmethode (Dyer en Hicks, 1970; Duyzer et al., 1992):

$$F = K \frac{\partial [O_3]}{\partial z}$$

Waarbij K staat voor een turbulent diffusiecoëfficiënt (turbulente energie, uitgedrukt in $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$). Bij de bepaling wordt uitgegaan dat K_s (substances) = K_m (momentum) = K_h (heat). Z staat voor hoogte.

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

De turbulente diffusiecoëfficiënt wordt bepaald uit de von Karman constante ($k = 0.4$), de nulvlakverplaatsing d ($d = 19.2 \text{ m}$, afgeleid uit windsnelheidsprofiel) en de wrijvingsnelheid u^* (sonische anemometer). De referentiehoogte z is de geometrische hoogte over het meetinterval 23-39m ($\sqrt{z_1 z_3}$); d.i. 29.9 m.

Gezien niet altijd in neutrale condities gemeten kan worden, worden voor stabiele ($L > 0$) en onstabiele atmosfeer ($L < 0$) empirische stabiliteitscorrecties ingevoerd. Deze dimensieloze fluxprofiel verbanden (ϕ) zijn voor trace gassen niet beschikbaar en worden berekend met formules voor warmtetransportfuncties (Dyer en Hicks, 1970) op basis van de veronderstelling dat transport van warmte en “trace gasses” gelijkaardig is (Duyzer et al., 1992):

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

De hoogteafhankelijke correctiefactor α wordt ingebracht om rekening te houden met de verhoogde diffusiviteiten in de “roughness sublayer” waarin de gradiënten gemeten worden (Duyzer et al., 1992). Deze factor kan bepaald worden uit gradiëntmetingen van temperatuur en directe fluxmetingen van warmte. Daar goede temperatuurgradiënten niet beschikbaar waren, wordt ϕ_m uitgezet tegen $z-d/L$ en de ϕ_m bij neutrale condities uit de grafiek afgeleid. L staat voor de Monin-Obukhov lengte en geeft informatie over de atmosferische stabiliteit. De afgeleide correctiefactor voor momentumtransport bedraagt 0.87 voor het interval 23-39 m.

De verticale ozongradiënt (in $\mu\text{g m}^{-4}$) wordt gemeten tussen niveau 24 (z_1) en 40 m (z_3) en wordt benaderd als:

$$\frac{\partial O_3}{\partial z} = (O_3 \text{ niveau } 40 - O_3 \text{ niveau } 24) / \bar{z} \ln(z_3 / z_1)$$

met:

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

2.2.2. Datafiltering en rejectiecriteria

Vooraleer de aërodynamische gradiënt theorie toe te passen, moeten de data voldoen aan enkele criteria:

- stationariteit: $(z/c) \cdot (dc/dt) < 0.01$ (c: concentratie pollutant);
- maximaal mogelijke turbulente depositiesnelheid: $< v_{dmax}$ ($= 1/R_a$, inverse aërodynamische weerstand) voor SO_2 en O_3 ;
- uitsluiten advection: $u^* > 0.1 \text{ m s}^{-1}$;
- concentratie $> 2 \mu\text{g m}^{-3}$ (O_3 , SO_2).

Beperkingen m.b.t. vereiste fetch (overstromingslengte in opwaartse windrichting) werden niet in rekening gebracht en verondersteld verholpen te zijn door verwijdering van lage wrijvingsnelheden.

2.2.3. Bepaling van de kroonweerstand (R_c) en de depositiesnelheid ($\bullet_d$)

De fluks van een gas wordt gedefinieerd als:

$$F = -v_d(z)c(z)$$

Deze fluks is unidirectioneel en houdt geen rekening met een mogelijke emissie van het desbetreffende gas. Dergelijke emissie treedt op als de omgevingsconcentratie c hoger ligt dan het compensatiepunt van de vegetatie: c_p . Neerwaartse fluks (depositie) wordt bij conventie als een negatieve waarde weergegeven.

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

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

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

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

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

Daarbij worden de atmosferische stabiliteitscorrecties gebruikt als voor warmte (zie gradiëntmethode) zoals weergegeven in Erisman en Draaijers (1995). De ruwheidslengte bedroeg 1.4 m.

De laminaire grenslaagweerstand (R_b) wordt geassocieerd met het transport door de quasi-laminaire grenslaag die in contact is met de vegetatieoppervlakte en wordt door Hicks et al. (1988) gedefinieerd als:

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

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

De kroonweerstand R_c wordt afgeleid uit de kennis van R_a en R_b . Gezien de aanwezigheid van negatieve fluxen (opwaartse fluxen) worden enkele depositie-episodes in rekening gebracht:

$$R_c = \frac{1}{v_d} - R_a - R_b$$

In de meest eenvoudige vorm wordt de kroonweerstand (R_c) weergegeven als een parallel netwerk van een stomataire en niet-stomataire weerstand (resp. R_s en R_{ns}). De niet-stomataire weerstand wordt bij kennis van de stomataire weerstand als residuele waarde afgeleid:

$$R_{ns} = \left[\frac{1}{R_c} - \frac{1}{R_s} \right]^{-1}$$

's Nachts bereikt de stomataire weerstand hoge waarden en kan de niet-stomataire weerstand bij benadering aan de kroonweerstand gelijk gesteld worden.

De kroonweerstand wordt berekend voor verschillende vochtstaten van de kroon. De macroscopische vochtigheid is een grove inschatting van de natheid van het kronendak en wordt bepaald met metingen verricht door een bladnatheidsensor (LW) en de pluviometer (aanwezigheid van neerslag). Er worden 4 vochtcategorieën onderscheiden:

- Dry (droog): $LW = 0$
- Wet (vochtig): $0 < LW < 1$ zonder aanwezigheid van neerslag
- Saturated (verzadigd): $LW = 1$ zonder aanwezigheid van neerslag
- Rainy (regen): neerslag

3. Concentratieniveaus

3.1. Verloop concentraties gasvormige componenten

Het verloop van de concentraties is duidelijk seizoensgebonden. Voor SO₂ en NO_x worden de hoogste maandgemiddelden tijdens de winterperiode (januari t.e.m. maart en september t.e.m. december) opgetekend (Tabel 2). Dit heeft te maken met de lagere oxidatiecapaciteit van de atmosfeer en de hogere emissies door o.a. gebouwverwarming tijdens de winterperiode. In december wordt het hoogste maandgemiddelde voor SO₂ (16.2 µg m⁻³) en tevens de het hoogste daggemiddelde (90.5 µg m⁻³) gemeten. Dit is het gevolg van het optreden van episodes van temperatuursinversie op 10 en 12 december. Deze zijn ook van betekenis voor de NO_x-concentraties. Voor NO en NO₂ worden de hoogste dagwaarden (resp. 203 en 91 µg m⁻³) in de maand december gemeten. Voor NO wordt tevens het hoogste maandgemiddelde in december genoteerd. Voor NO₂ valt dit in februari.

De hoogste maandgemiddelden van ozon worden genoteerd in de periode van april t.e.m. september. Ozon heeft haar hoogste daggemiddelde concentraties in juni en augustus (resp. 72.7 en 70.0 µg m⁻³). In de maanden juni, juli en augustus lopen de maximale daggemiddelden op tot 130 µg m⁻³.

Uit vorige meetjaren blijkt voor elke component nog altijd een duidelijke afhankelijkheid van de windrichting te bestaan (Figuur 2). Voor zwaveldioxide leveren winden uit de W-WZW sector meestal hogere meetconcentraties op (invloed petrochemische industrie Antwerpen), dit ondanks de reeds geleverde inspanningen. Voor stikstofdioxide is dit het geval bij zuidelijke luchtstromingen (verkeersemissie E19). Zo dragen de frequente Z-ZZW winden in de maanden februari, november en december bij tot de hoge NO_x-niveaus in 2003 (Tabel 2 en 3).

Hoge luchtconcentraties van ozon worden vnl. genoteerd bij een sterke noordelijke windcomponent. In die omstandigheden zijn de NO-concentraties laag en blijft de afbraak van ozon beperkt.

Tabel 2: Maandgemiddelde concentraties in µg m⁻³, berekend uit daggemiddelden. Gearceerde waarden liggen boven jaargemiddelde concentraties.

	<i>Jan</i>	<i>Feb</i>	<i>maa</i>	<i>apr</i>	<i>mei</i>	<i>Jun</i>	<i>Jul</i>	<i>Aug</i>	<i>sep</i>	<i>okt</i>	<i>nov</i>	<i>dec</i>
SO ₂												
Gem	13.7	11.7	11.0	5.9	8.7	8.4	9.3	8.2	11.7	10.8	12.2	16.2
Max	41.4	27.5	27.0	17.5	22.4	16.6	20.1	21.7	28.1	31.4	28.1	90.5
O ₃	<i>Jan</i>	<i>Feb</i>	<i>maa</i>	<i>apr</i>	<i>mei</i>	<i>Jun</i>	<i>Jul</i>	<i>Aug</i>	<i>sep</i>	<i>okt</i>	<i>nov</i>	<i>dec</i>
Gem	32.5	25.6	40.9	66.9	62.4	72.7	61.8	70.0	47.3	26.9	16.7	17.6
Max	67.3	68.4	72.2	97.5	106.3	134.5	127.9	129.7	87.6	65.5	51.9	66.7
NO	<i>Jan</i>	<i>Feb</i>	<i>maa</i>	<i>apr</i>	<i>mei</i>	<i>Jun</i>	<i>Jul</i>	<i>Aug</i>	<i>sep</i>	<i>okt</i>	<i>nov</i>	<i>dec</i>
Gem	5.1	14.2	14.4	3.7	2.2	9.9	3.3	3.5	13.5	14.7	16.0	46.0
Max	28.4	55.8	79.1	32.6	14.2	129.8	17.8	21.0	55.2	94.8	123.2	203.1
NO ₂	<i>Jan</i>	<i>feb</i>	<i>maa</i>	<i>apr</i>	<i>mei</i>	<i>Jun</i>	<i>Jul</i>	<i>Aug</i>	<i>sep</i>	<i>okt</i>	<i>nov</i>	<i>dec</i>
Gem	31.7	50.4	39.2	27.5	28.4	27.0	25.7	28.7	41.0	37.3	40.8	45.7
Max	57.3	76.9	68.2	50.7	45.3	44.5	39.9	59.4	73.6	68.1	68.8	91.0

Tabel 3: Windrichtingfrequenties (in %) per maand. Overheersende winden worden voor iedere maand gearceerd weergegeven.

Maand	Jan	Feb	Maa	April	Mei	Jun	Jul	Aug	Sep	Okt	Nov	Dec	Jaar
KALM (wind < 0.2 m/s)	1.1	0.2	1.7	0.8	3.8	2.6	2.5	1.1	2.8	0.8	2.0	0.5	1.7
N	1.1	0.2	6.8	4.8	4.0	4.9	1.5	8.6	4.9	2.4	1.3	0.9	3.5
NNO	5.6	1.0	4.8	8.6	4.0	3.0	1.5	8.3	4.8	4.8	0.7	2.6	4.2
NO	10.3	7.4	11.1	8.3	7.0	9.6	2.2	10.9	3.6	8.3	1.5	8.8	7.4
ONO	5.4	15.6	10.6	10.3	6.0	9.0	4.3	7.7	6.5	15.9	4.0	6.6	8.4
O	1.3	11.6	9.8	5.7	1.3	4.1	4.8	4.2	8.1	15.3	4.9	1.8	6.0
OZO	1.1	9.0	4.0	7.0	1.2	3.5	1.1	2.4	6.8	1.9	5.1	4.3	3.9
ZO	0.9	12.7	5.0	6.1	3.6	6.0	3.8	2.4	5.2	3.6	8.4	7.9	5.4
ZZO	3.6	6.3	4.2	3.4	6.8	5.8	5.3	0.7	7.4	3.5	10.9	4.6	5.2
Z	7.5	10.1	8.3	4.0	5.1	3.7	6.4	1.7	8.2	3.7	15.8	6.3	6.7
ZZW	13.2	10.6	5.8	4.3	8.0	1.9	8.3	2.3	7.2	5.6	18.5	17.6	8.6
ZW	16.2	4.3	9.5	9.8	16.9	6.1	11.2	5.4	7.5	8.2	15.2	13.2	10.4
WZW	10.2	2.7	4.4	3.2	12.5	9.2	8.7	7.1	4.1	6.9	6.0	3.2	6.6
W	10.6	2.8	3.8	2.2	7.0	6.0	10.0	5.3	5.0	6.0	2.3	3.5	5.4
WNW	5.4	3.5	3.7	3.1	4.4	7.1	9.5	9.6	7.3	6.7	1.0	5.4	5.6
NW	3.9	1.6	2.9	4.4	3.9	5.0	8.1	9.7	5.3	4.0	1.0	4.0	4.5
NNW	2.6	0.3	3.6	7.5	4.4	5.6	4.5	12.6	5.2	2.2	1.5	1.8	4.3
Niet beschikbaar	0.0	0.0	0.0	6.4	0.0	6.8	6.4	0.0	0.1	0.3	0.0	6.9	2.2

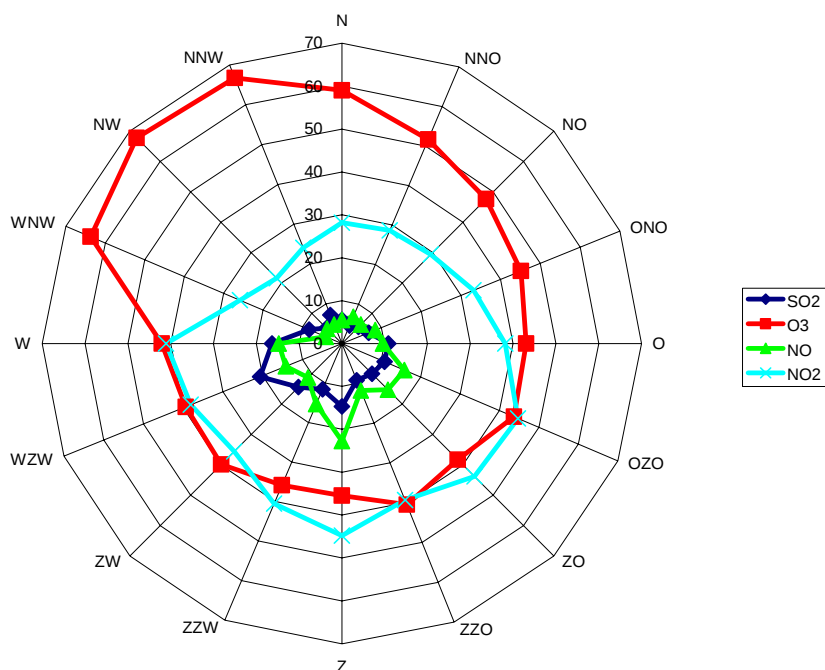


Fig.2: Impact van windrichting op de verdeling van SO₂, O₃ en NO_x (in µg m⁻³).

Vooral de hoge maximale daggemiddelden van NO_x en SO_2 zijn opvallend. Sinds de start van de metingen werd voor NO nooit hogere waarden gemeten. Voor SO_2 en NO_2 werden de maxima opgetekend in december 2003 eerder overtroffen door daggemiddelde maxima gemeten in januari 1997 (resp. 108 en $98 \mu\text{g m}^{-3}$) en januari 1998 (resp. 98 en $106 \mu\text{g m}^{-3}$).

Wijziging in de trends van bepaalde gasvormige componenten is soms meer manifest bij lagere percentiele waarden of achtergrondconcentraties van de daggemiddelden (Tabel 4). Zo blijkt de resp. toename en afname van O_3 en NO zich voornamelijk te manifesteren bij de laagste waarden (P10). Zo bedroegen het tiende percentiel van O_3 en NO in 1997 nog resp. 2.5 en $2.6 \mu\text{g m}^{-3}$ t.o.v. 11.6 en 0.1 in 2003.

Tabel 4: Percentielverdeling van de daggemiddelden in $\mu\text{g m}^{-3}$.

	P10	P30	P50	P60	P70	P80	P90	P95	P98	max	Gem
SO_2	3.5	6.1	8.7	10.8	12.8	14.7	19.7	23.1	28.0	90.5	10.6
O_3	11.6	28.5	46.6	52.9	60.0	68.5	82.1	97.2	116.3	134.5	46.7
NO	0.1	1.2	2.6	4.8	8.1	14.8	32.7	47.1	90.9	203.1	11.3
NO_2	18.6	26.0	32.4	36.3	41.2	46.3	56.9	62.2	68.6	91.0	34.9

Wanneer de percentielverdeling van de halfuurswaarden (Tabel 5) vergeleken wordt met die van vorige meetjaren (Overloop en Roskams, 1998), wordt vastgesteld dat de hogere percentielen (P95) enkel voor SO_2 afgenomen zijn (tot 40 %). Wijziging in de lagere percentielen (P10 en P30) worden genoteerd voor SO_2 (daling) en O_3 (stijging).

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

	P10	P30	P50	P60	P70	P80	P90	P95	P98	max	Gem
SO_2	2.3	4.1	6.9	8.5	11.1	15.4	23.4	33.4	44.5	249.6	10.6
O_3	3.8	20.0	42.0	51.6	62.3	75.0	95.3	117.3	148.0	266.0	46.7
NO	0.0	0.0	1.0	1.6	4.0	10.8	32.8	64.7	114.9	532.2	11.3
NO_2	11.9	21.5	31.0	36.8	43.9	51.1	62.6	73.0	84.4	220.1	35.0

3.2. Trend 1995-2003

Overzicht van de jaarlijks gemiddelde en mediane concentraties (Tabel 6 en 7) geeft enkel voor SO₂ en O₃ beduidende trends aan. Concentraties van SO₂ blijken gehalveerd. De jaargemiddelde en –mediane SO₂-concentratie in 2003 is ongeveer dezelfde als die in 2001 en 2002.

Voor wat betreft ozon wordt een toename vastgesteld. Deze is vooral toe te schrijven aan stijgende trends in de lagere percentielenklassen (Neirynck en Roskams, 2002). In 2003 hebben gunstige weersomstandigheden de ozonvorming versterkt. De ozonconcentraties lijken daarbij af te stevenen op een jaargemiddelde van 50 µg µ⁻³.

Tabel 6: Jaargemiddelde concentraties in µg m⁻³, berekend uit halfuurwaarden.

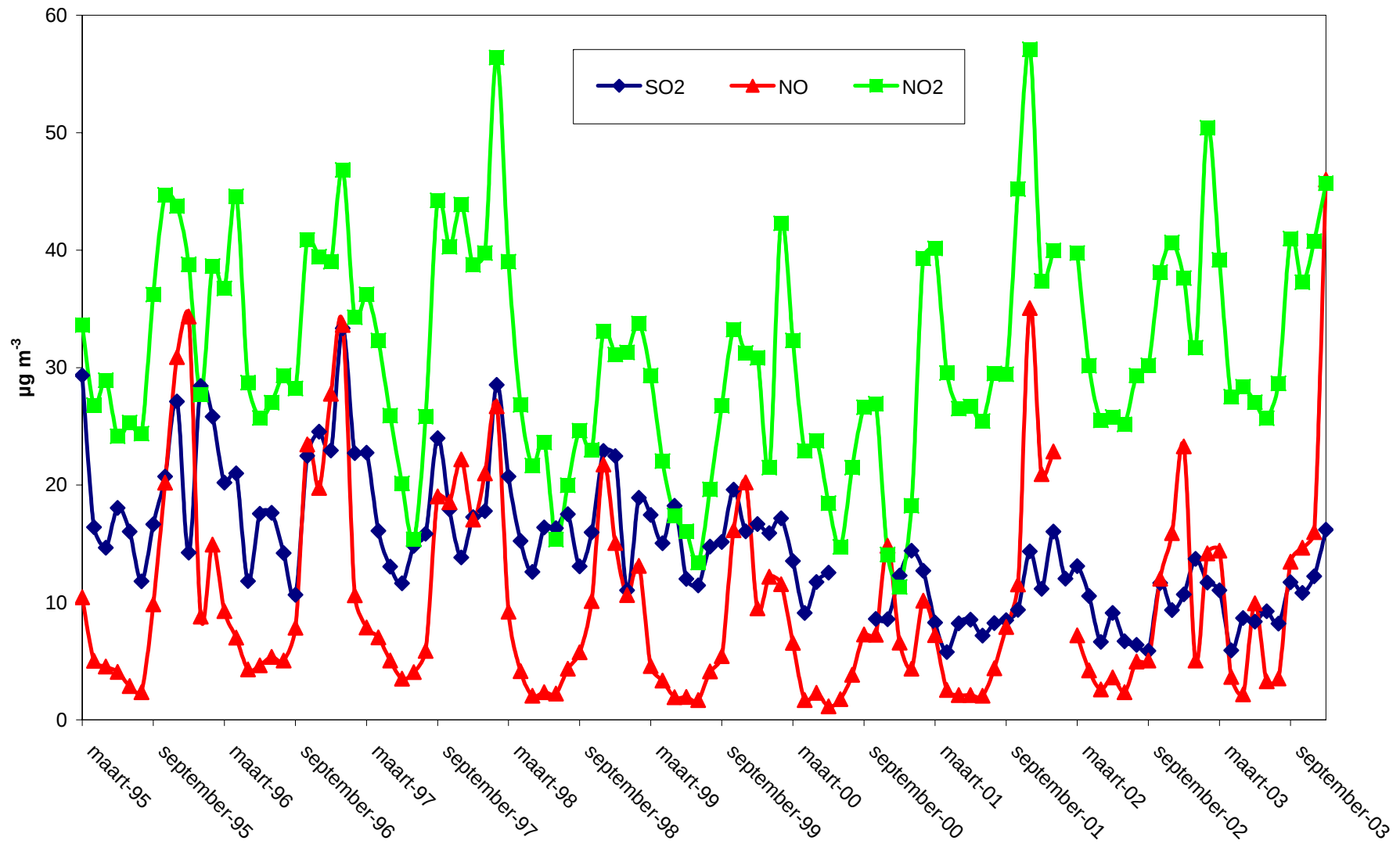
	SO ₂	O ₃	NO	NO ₂
1995	17.0	36.0	15.1	33.4
1996	19.3	37.2	11.7	33.9
1997	18.7	39.3	13.9	34.7
1998	18.1	40.2	10.4	29.4
1999	15.5	42.2	7.8	25.3
2000	13.3	41.0	6.5	24.1
2001	9.5	40.8	9.5	34.7
2002	9.8	44.4	9.6	33.0
2003	10.6	46.7	11.3	35.0

Tabel 7: Jaarlijkse mediaanconcentraties in µg m⁻³, berekend uit halfuurwaarden.

	SO ₂	O ₃	NO	NO ₂
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
2000	9.2	39.3	0.0	20.4
2001	5.2	37.3	0.0	30.6
2002	6.2	42.8	0.0	31.0
2003	6.9	42.0	0.0	31.0

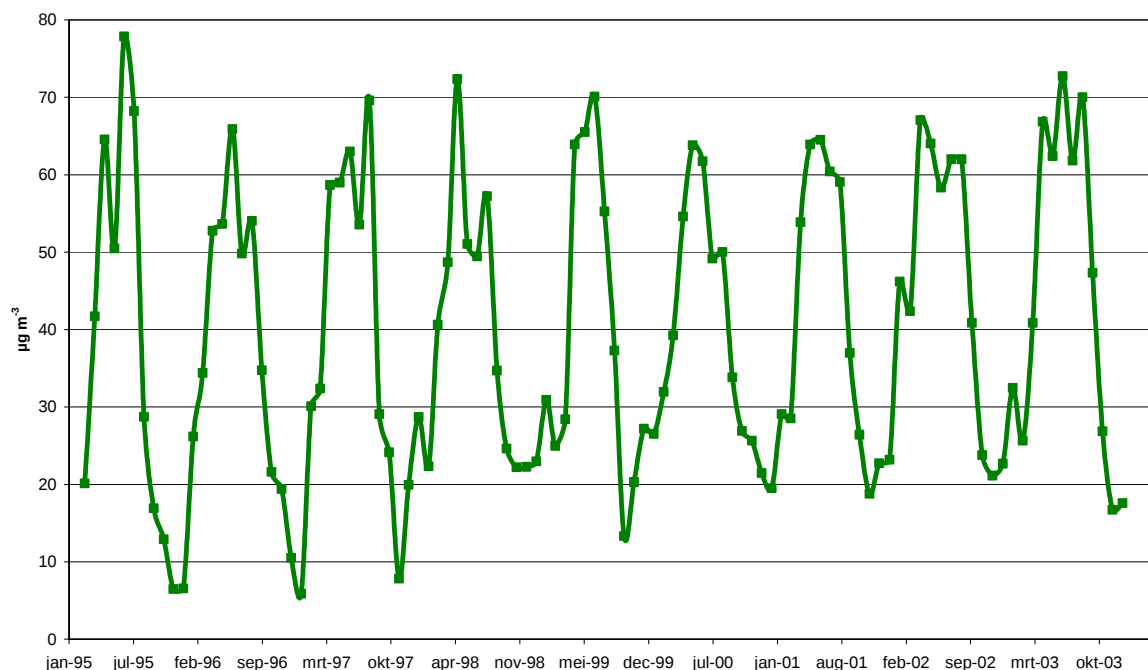
Figuur 3 toont het verloop van de maandelijkse gemiddelde concentraties van SO₂ en stikstofoxiden sedert maart 1995. Bij SO₂ komt net zoals bij de jaargemiddelden een gestage daling naar voor. Maandgemiddelde concentraties > 30 µg m⁻³ worden sinds 1997 niet meer geregistreerd.

Bij NO wordt de dalende tendens, die vooral in het verloop van de maandgemiddelden tijdens de winterperiode (hogere concentratieniveaus) tot uiting kwam, eind 2001, en in 2002 en 2003 afgebroken. Bij NO₂ kan uit het verloop van de maandgemiddelden geen duidelijk temporeel verloop vastgesteld worden.



Figuur 3: Verloop van maandelijkse gemiddelden van SO₂, NO en NO₂ over de periode 1995-2003 (in $\mu\text{g m}^{-3}$).

Het verloop van maandgemiddelde ozonconcentraties wordt gekenmerkt door een gestage toename van de maandgemiddelden tijdens de winterperiode (toename achtergrondconcentraties). De zomermaandgemiddelden fluctueren rond de EU-drempelwaarde van $65 \mu\text{g m}^{-3}$ voor daggemiddelde concentraties (Figuur 4). In 1995, 1998 en 2003 worden maandgemiddelden boven $70 \mu\text{g m}^{-3}$ gehaald.



Figuur 4: Verloop van maandelijks gemiddelde ozonconcentraties tussen 1995 t.e.m. 2003 (in $\mu\text{g m}^{-3}$).

3.3. Tijdsreeksanalyse van gasvormige componenten met bijdrage van meteorologische variabelen

Gezien de impact van weersvariabelen op het verloop van gasvormige componenten worden de relevante meteovariabelen mee in de regressievergelijking opgenomen. Zo wordt de reële trend ("true slope") van het pollutant bepaald terwijl de invloed van weersvariabelen constant wordt gehouden. De halfuurswaarden van de pollutanten en de meteorologische variabelen worden daarvoor geaggregeerd tot een dagwaarde (voorwaarde: $> 80\%$ van de halfuurswaarden zijn beschikbaar). Het tijdsverloop voor de meest bepalende weersvariabelen (P: luchtdruk, T: temperatuur, R: neerslag, R_{sun} : globale instraling, V: windsnelheid) is weergegeven in figuur 5. De windrichting (WD) wordt ontbonden in een cosinusoïdale en sinusoïdale component. Uit hun coëfficiënten kan de windrichting met de hoogste pollutant concentraties afgeleid worden (WD_{max}).

De verkregen regressievergelijkingen verklaren 38 tot 66 % van de variabiliteit in de concentratie van de gasvormige componenten:

SO₂

$$\text{Log}(\text{SO}_2+1) = -2.2090 + 0.0045P - 0.0538V - 0.0071T - 0.0025R - 0.1091\text{COS}(2\pi\text{WD}/360) - 0.1481\text{SIN}(2\pi\text{WD}/360) - \mathbf{0.0001}\text{DAG} + \varepsilon \quad (\text{regressievergelijking 1})$$

N = 2578 en R₂ = 0.42

O₃

$$\text{O}_3 = 42.3325 - 0.0527P + 1.8634V + 0.3875T + 0.0599R + 0.0787R_{\text{sun}} + 2.9440\text{COS}(2\pi\text{WD}/360) + 0.4257\text{SIN}(2\pi\text{WD}/360) + \mathbf{0.0010}\text{DAG} - 0.1745\text{NO} + \varepsilon \quad (\text{regressievergelijking 2})$$

N = 2473 en R₂ = 0.66

NO_x

$$\text{Log}(\text{NO}+1) = -6.5623 + 0.0084P - 0.1268V - 0.0083T - 0.0022R + 0.0007R_{\text{sun}} - 0.1312\text{COS}(2\pi\text{WD}/360) - 0.0314\text{SIN}(2\pi\text{WD}/360) + \mathbf{0.0000}\text{DAG} - 0.0208\text{O}_3 + \varepsilon \quad (\text{regressievergelijking 3})$$

N = 2473 en R₂ = 0.59

$$\text{Sqrt}(\text{NO}_2) = -12.9320 + 0.0177P - 0.3207V - 0.0193T - 0.0090R - 0.0025R_{\text{sun}} - 0.5626\text{COS}(2\pi\text{WD}/360) - 0.0868\text{SIN}(2\pi\text{WD}/360) + \mathbf{0.0000}\text{DAG} + \varepsilon \quad (\text{regressievergelijking 4})$$

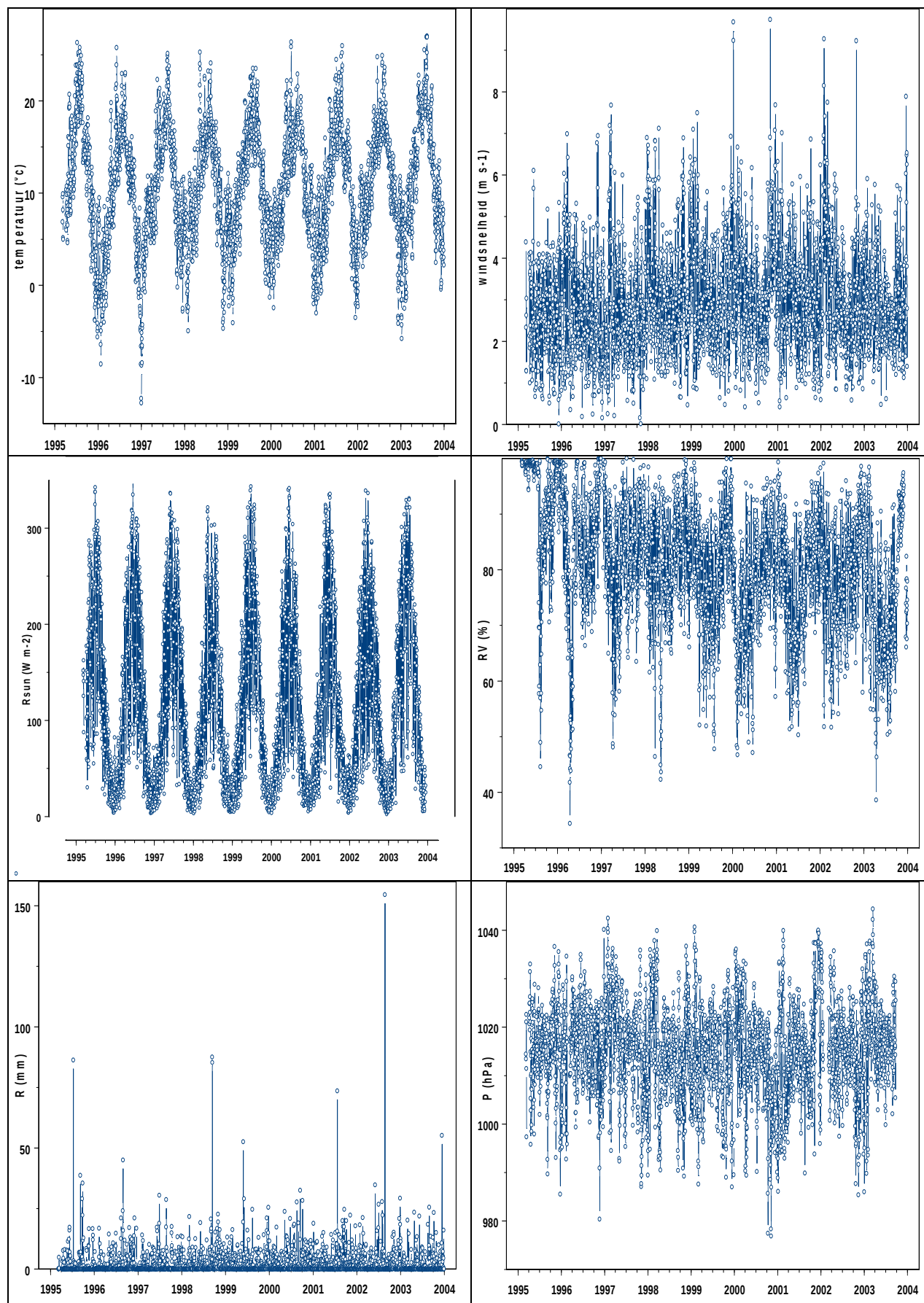
N = 2607 en R₂ = 0.38

De belangrijkste conclusies zijn de volgende:

- Tijdstrend (DAG) is enkele significant voor SO₂ (dalend) en O₃ (stijgend). Luchtconcentraties van stikstofoxiden zijn sinds 1995 ongewijzigd;
- Factoren zoals windsnelheid (V) en neerslag leiden tot een dispersie van SO₂ en NO_x wat de aanwezigheid van het secundair pollutent ozon in de atmosfeer versterkt (minder fotochemische afbraak omwille van lage NO);
- Episodes met hoge druk (P) of temperatuursinversie leiden tot een verhoogde aanwezigheid van SO₂ en NO_x, en tot een daling van ozon in de atmosfeer;
- Hoge temperaturen (zomerperiode) gaan gepaard met lagere concentraties van SO₂ en NO_x omwille van de hogere oxiderende capaciteit van de atmosfeer en de verminderde gebouwenverwarming.
- Aanwezigheid van ozon wordt versterkt in de atmosfeer bij hoge globale instraling (R_{sun}) en hoge temperaturen (T). Aanwezigheid van NO is nefast gezien zijn impact op afbraak van ozonmolecules;
- Windrichting met maximale concentraties zijn conform de waarnemingen verricht op het pollutierooster (Fig. 2). Ozon piekt in de windsector diametraal tegenover de WD_{max} van NO.

Tabel 8: Windrichting met maximale concentraties voor gasvormige componenten.

	SO ₂	O ₃	NO	NO ₂
WD _{max}	234°	8°	193°	188°



Figuur 5: Verloop van daggemiddelde temperatuur, windsnelheid, Globale instraling, relatieve vochtigheid, luchtdruk en dagelijkse neerslag som vanaf 1995.

3.4. Kritische normen

Voor SO₂ blijven de daggemiddelde en jaargemiddelde concentraties net als in de 2 voorgaande jaren ruimschoots onder de norm zowel acute als chronische effecten (resp. 70 en 20 µg m⁻³).

Voor stikstofoxiden wordt het 4-uurgemiddelde van 95 µg NO_x m⁻³ 105 maal overschreden in 2003. Het kritische niveau voor langdurige blootstelling (30 µg m⁻³) wordt met een jaargemiddelde NO_x concentratie van 52 µg m⁻³ ruim overschreden (zie tabel 9). Deze concentratie is vergelijkbaar met de hoge concentraties van de meetjaren 1996 en 1997.

Tabel 9: Toetsing van kritische waarden voor kortstondige (aantal overschrijdingen) en langdurige blootstelling van NO_x over de periode 1996 tot 2003.

Jaar	NO _x	
	Acuut	Chronisch
1996	121	51.8
1997	124	56.2
1998	116	45.4
1999	95	37.2
2000	70	30.7
2001	110	49.1
2002	140	47.7
2003	105	52.4

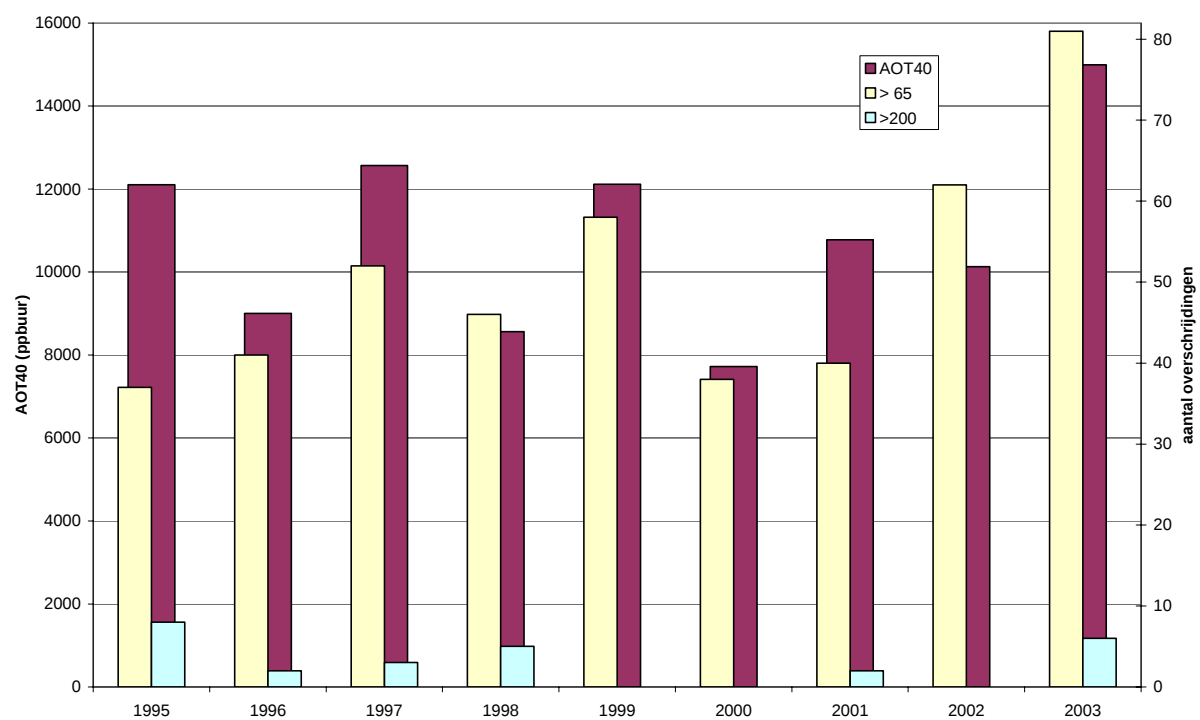
Voor ozon overschrijdt de AOT40-waarde van 15000 ppbuur de kritische AOT40-index voor langdurige blootstelling van 10000 ppbuur (zie figuur 6). Dit is de hoogste waarde sinds de metingen aanvingen.

Het aantal overschrijdingen van de drempelwaarden voor bescherming van vegetatie (ozone directive 92/97/EEC) betreft 6 en 81 voor resp. de uurlijkse (200 µg m⁻³) en dagnorm (65 µg m⁻³).

Sinds 1995 werd de AOT40-index van 10000 ppbuur 6 maal overschreden (1995, 1997, 1999, 2001, 2002 en 2003) (figuur 4).

Sinds het begin van de metingen werden tot nu toe voor het meest aantal dagen (> 80 dagen) een overschrijding van de EU-drempelwaarde voor daggemiddelde concentraties (65 µg m⁻³) vastgesteld. De gestage verhoging van de achtergrondconcentraties leidt ertoe dat de norm voor daggemiddelde concentraties in de toekomst meer zal overschreden worden.

Vooraf in 1995 en 1998 werden overschrijdingen van de uurlijkse EU-norm van 200 µg m⁻³ ter bescherming van vegetatie vastgesteld. Deze drempelwaarde werd enkel in 1999, 2000 en 2002 niet overschreden.



Figuur 6: Jaarlijks verloop van de AOT40-index, aantal dagen met overschrijdingen van uurgemiddelde ozon concentraties boven EU-drempelwaarde $200 \mu\text{g m}^{-3}$ en daggemiddelde ozonwaarden boven EU-drempelwaarde $65 \mu\text{g m}^{-3}$ ter bescherming van de vegetatie.

4. Gradiëntmetingen

4.1. Gradiëntmetingen van SO₂

4.1.1. Flukskarakteristieken

Fluksmetingen van SO₂ zijn vanaf 1997 beschikbaar. Vanaf 2000 werd gestart met een nieuwe meetcyclus op de meettoren waardoor frequenter boven het kronendak gemeten wordt (Neiryck en Roskams, 2001) en de fout op de bepaling van de halfuurlijkse SO₂-gradiënt wordt verminderd (tabel 10). Toepassing van de selectiecriteria resulteerde in halvering van de dataset. Dit had vooral te maken met de lage meetconcentraties en –gradiënten van SO₂.

Tabel 10: Jaarlijkse gemiddelde depositiesnelheid v_d en fluks van SO₂.

Jaar	v_d (cm s ⁻¹)	Fluks (μg m ⁻² s ⁻¹)	R_c (s m ⁻¹)
1997	0.7	-0.123	8.9
1998	0.8	-0.163	12.1
1999	0.3	-0.062	6.9
2000	0.2	-0.032	7.9
2001	0.6	-0.065	14.3
2002	0.3	-0.034	22.2

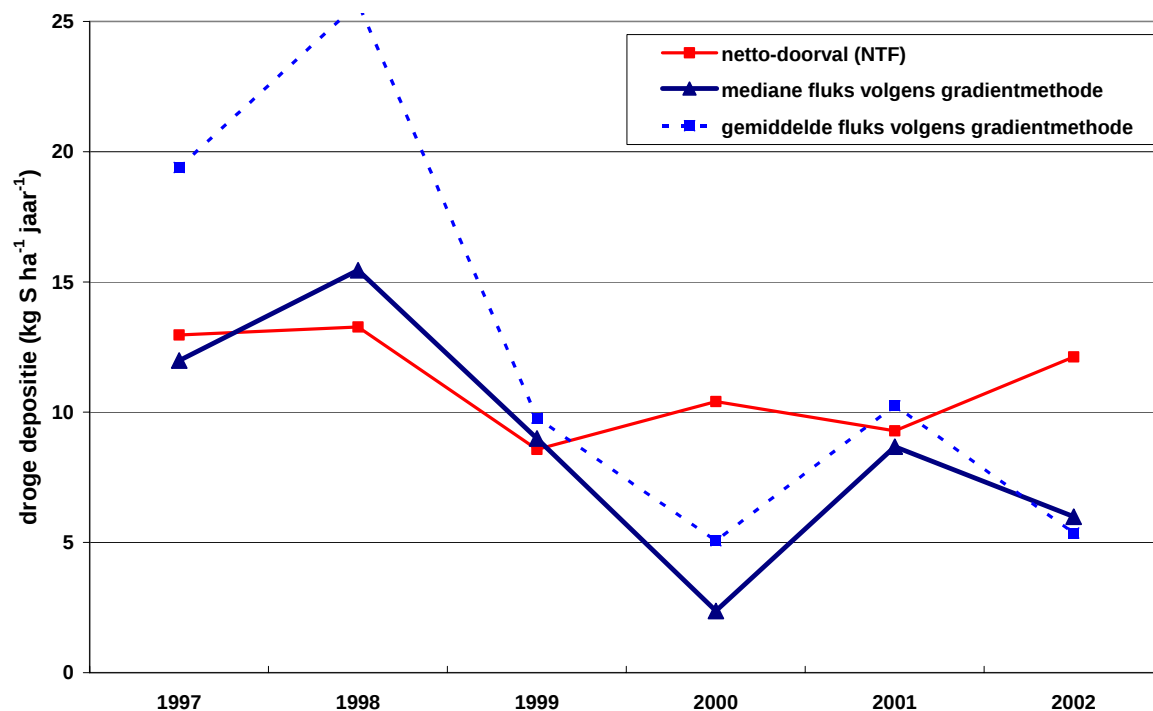
De jaarlijkse fluksen liggen tussen -0.032 μg m⁻² s⁻¹ (5.3 kg S ha⁻¹ jaar⁻¹) tot -0.163 μg m⁻² s⁻¹ (25.7 kg S ha⁻¹ jaar⁻¹). De depositiesnelheden zijn laag in vergelijking met die van NH₃ en variëren tussen 0.2 en 0.8 cm s⁻¹. De depositiesnelheden blijken wel sterk sectorafhankelijk te zijn. In de westelijke sector zijn de depositiesnelheden ruim de helft lager dan in de oostelijke sector. Dit wordt echter (meer dan) gecompenseerd door de hogere meetconcentraties in zuidwestelijke windrichtingsectoren.

Een meetcampagne van VITO in 2001 leverde ook meetgegevens van SO₄-aërosolen op dagbasis gedurende de maanden januari, februari en maart (Berghmans et al., 2001). Daaruit werd een fluks gemodelleerd met het model van Slinn (1982) en geparametriseerd door Ruijgrok et al. (1997). Daarmee werd een depositiefluks van 6.7 kg S ha⁻¹ jaar⁻¹ berekend.

Wanneer de jaarlijkse mediane en gemiddelde fluks van SO₂-S uitgezet wordt in de tijd, komt een dalende tendens tot uiting (figuur 7). Dit is in overeenstemming met de daling van SO₂-concentraties op de meetsite (zie 3.2.) en de verhoogde kroonweerstand voor SO₂ de laatste 2 meetjaren.

4.1.2. Netto-doorval SO_4 versus droge depositie SO_2

Overeenstemming met de netto-doorval van SO_4 verkregen uit de directe metingen (doorval – bulk) is vrij goed voor wat betreft de mediane fluks van SO_2 (fig 7). Voor de jaarlijkse gemiddelde fluks is er een sterke discrepantie met de netto-doorval voor de jaren 1997 en 1998. De grotere relatieve meetfout op de SO_2 -gradiënt tijdens deze meetjaren (3 i.p.v. 8 herhalingen per halfuur) is daar niet vreemd aan. De netto-doorval kent opnieuw een lichte toename in 2002 en ligt in dit meetjaar hoger dan de SO_2 -fluks. De netto-doorval omvat immers niet alleen droge depositie van SO_2 maar ook droge depositie van SO_4 -aërosol.

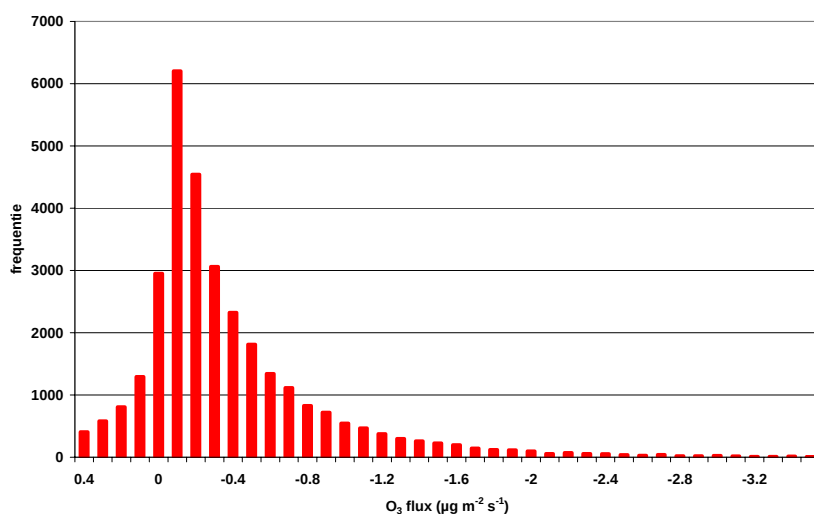


Figuur 7: Jaarlijks verloop van de droge depositie van SO_2 (mediane en gemiddelde fluks volgens gradiëntmethode) en netto-doorval van SO_4 te Brasschaat.

4.2. Gradiëntmetingen van O₃

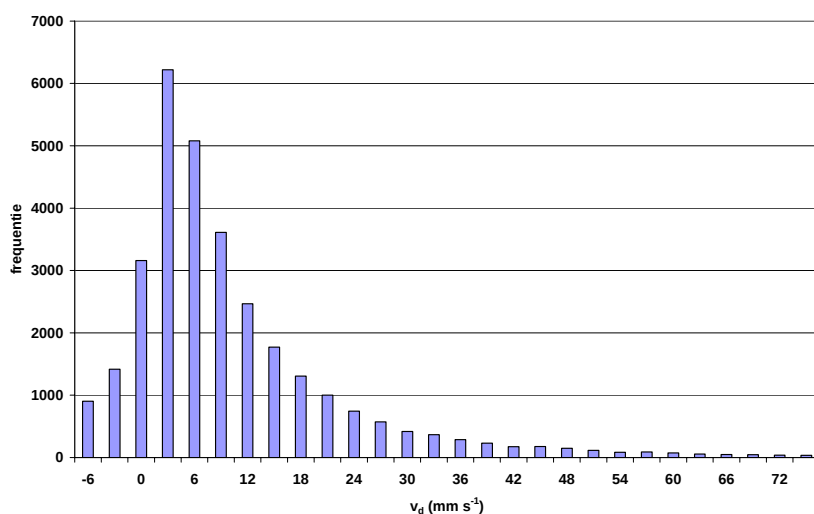
4.2.1. Flukskarakteristieken 2000-2002

De gemiddelde ozonfluks over de meetperiode 2000-2002 bedraagt $-0.265 \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$ of $84 \text{ kg ha}^{-1} \text{jaar}^{-1}$. Halfuurlijkse fluksen variëren tussen 0.4 (emissie) en $-3.5 \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$ (Figuur 8). Ondanks de meer frequente metingen van ozonconcentraties boven het kronendak (8 per niveau i.p.v. 3 per halfuur) sinds 2000 worden nog steeds opwaartse fluksen (20 % dataset) gemeten. Gradiënten kunnen niet on-line gemeten worden wat leidt tot foutieve fluksen wanneer sterke stijgingen in ozonconcentraties optreden. Wellicht moeten bepaalde criteria (stationariteit) verstrengd worden.



Figuur 8: Frequentieverdeling van ozonfluksen

De gemiddelde depositiesnelheid bedraagt gemiddeld 0.7 cm s^{-1} (mediaan 0.4 cm s^{-1}) en varieert tussen -0.6 (opwaartse fluks) en tot over 7.2 cm s^{-1} . Ook 's nachts grijpt depositie van ozon plaats (gemiddeld 0.4 cm s^{-1}).



Figuur 9: Frequentieverdeling van de depositiesnelheid (v_d) van ozonfluksen.

Het dagverloop van de ozonfluxen en –concentraties, uitgemiddeld over de meetperiode 2000-2002 per seizoen is weergegeven in Figuur 10. Globaal zou men kunnen stellen dat de ozonconcentratie de drijvende factor is voor de fluxen; hoge ozonniveaus in de zomerperiode resulteren in hoge ozonfluxen. Een meer nauwkeurige studie van het dagverloop leert dat dagelijkse pieken van concentraties en fluxen niet samenvallen en van een zekere ontkoppeling sprake is:

- Daar waar concentraties pieken in de middag (in lente en zomer reeds in voormiddag), treedt de flukspiek later op in de namiddag. De ozonconcentraties schrijden tussen 4 en 8h naar een minimumwaarde, hetgeen niet gevolgd wordt door de flux die geleidelijk toeneemt;
- De expansiefactor (verschil tussen minimum en maximumwaarde van het dagverloop) bedraagt voor de ozonconcentraties 1.5 (winter), 2 (lente en herfst) en 2.9 (zomer). Dit is de helft lager dan de fluxen voor winter (3) en overige seizoenen (4.5 tot 5);
- De ozondepositie vertoont in lente en zomer een duidelijke daling omstreeks de middag, als gevolg van een vermindering in turgordruk in de stomata.

4.2.2. Opdelen ozonfluxs in stomataire en niet-stomataire component

Een eerste opsplitsing in dag- en nachtfluxen (op basis van globale straling groter of kleiner dan 5 W m^{-2}) geeft aan dat nachtfluxen 23 % van de totale ozondepositie (19 kg van de $84 \text{ kg ha}^{-1} \text{ jaar}^{-1}$) uitmaakt. Deze fractie is variabel doorheen het jaar. De hoger berekende waarde moet echter als een strikt minimum beschouwd worden. Zo kan men zich de vraag stellen of er wel ook een stomataire opname plaatsgrijpt tijdens periodes waarin het bos fysiologisch inactief is. Daarenboven grijpt er ook overdag een ongekennde fractie niet-stomataire depositie plaats. Wanneer deze constant beschouwd wordt, kon de stomataire fluxs doorgetrokken worden overdag (Figuur 10). Daarbij grijpt de grootste niet-stomataire depositie tijdens de zomer plaats ($> -0.15 \text{ } \mu\text{g m}^{-2} \text{ s}^{-1}$).

De nachtelijke ozondepositie (bijna uitsluitend niet-stomatair) wordt door andere factoren begunstigd dan die overdag (Tabel 11 en 12). Zo blijken regenperiodes de nachtelijke ozonfluxs te versterken. De fluxs is dubbel zo hoog in vergelijking tot regenloze periodes waarin het kronendak droog tot nat (bv. Dauw of nat na regenbui) is (Tabel 11). De niet-stomataire kroonweerstand (R_{ns}) voor droge en natte omstandigheden ligt ver onder de waarden geregistreerd voor regenloze periodes. De R_{ns} voor verzadigde krooncondities neemt een intermediaire plaats in.

Tabel 11: Karakteristieken van nachtelijke ozonfluxs

Medianen nacht	Droog	regen	verzadigd	nat
$R_a (\text{s m}^{-1})$	12.9	9.2	18.0	16.4
$R_{ns} (\text{s m}^{-1})$	141.6	65.6	114.7	151.3
$\text{O}_3 (\text{ppb})$	19.7	21.0	13.9	20.9
flux ($\mu\text{g m}^{-2} \text{ s}^{-1}$)	0.08	0.15	0.07	0.09
flux ($\text{kg ha}^{-1} \text{ jaar}^{-1}$)	24.8	45.9	22.9	28.7

Overdag valt het dominante effect van neerslag weg op de R_c en ozonfluxs weg (Tabel 12) en wordt de ozondepositie voornamelijk in droge (Leaf wetness sensor = 0) en natte (geen regen en $0 < LW < 1$) condities versterkt; dit zijn omstandigheden die gunstig zijn voor opname via stomata (tabel 12). De ozondepositie tijdens regenperiodes is echter nog altijd substantieel; Lage waarden voor R_c worden echter tenietgedaan door lagere ozonconcentraties.

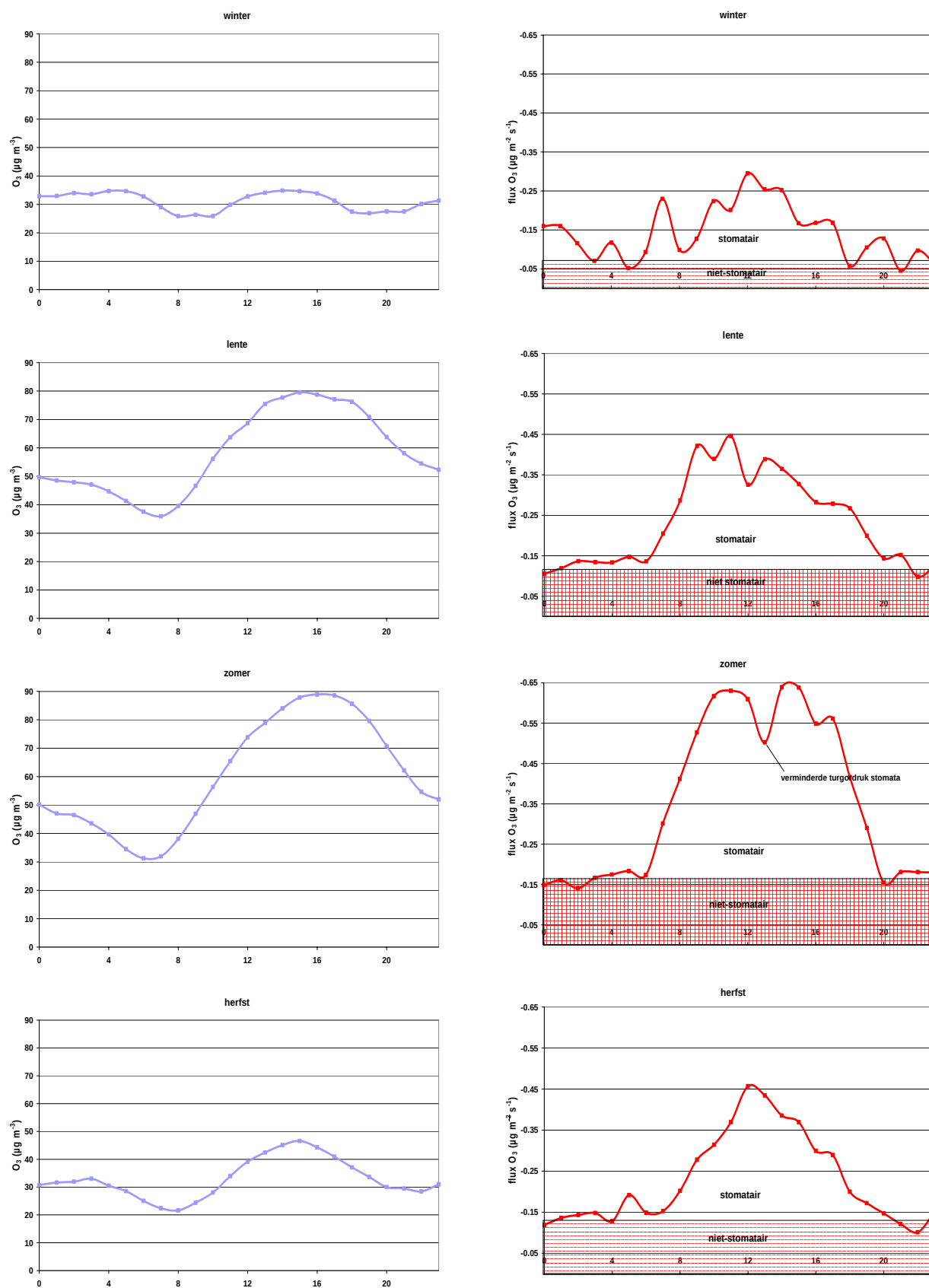


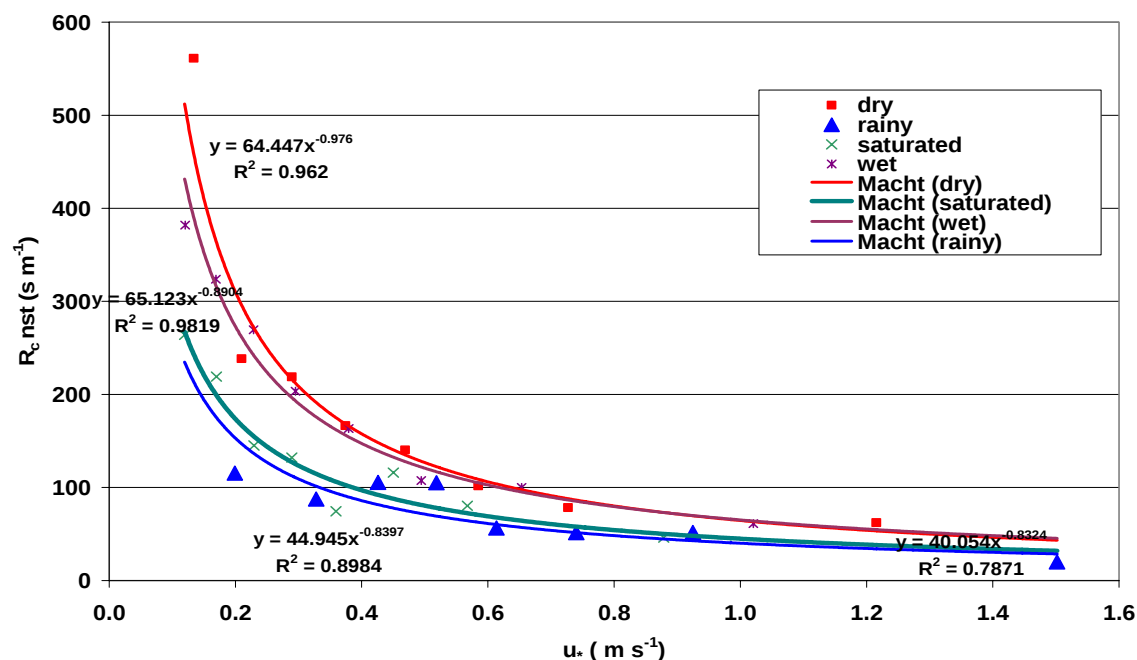
Fig. 10: Dagverloop van ozonconcentratie en meetperiode 2000-2002.

-fluxen per seizoen, uitgemiddeld over de

Tabel 12: Karakteristieken van ozondepositie overdag

Medianen dag	Droog	regen	verzadigd	nat
R_a (s m ⁻¹)	7.7	8.6	10.6	8.7
R_c (s m ⁻¹)	105.4	83.5	98.5	95.7
O ₃ (ppb)	30.3	22.9	23.3	26.9
flux (μg m ⁻² s ⁻¹)	0.42	0.34	0.28	0.38
flux (kg ha ⁻¹ jaar ⁻¹)	131.5	107.2	87.7	120.5

Wanneer de niet-stomataire kroonweerstand (op basis van de nachtelijke R_c -waarden) verder geanalyseerd wordt in relatie tot weersvariabelen, blijkt er een significante invloed van wrijvingsnelheid (u^*) en relatieve vochtigheid (RH) te bestaan. Hogere waarden van deze variabelen leiden tot een vermindering van de kroonweerstand. Het verband tussen de niet-stomataire kroonweerstand en de wrijvingsnelheid voor de verschillende toestanden van de kroon verloopt volgens een machtsfunctie (Figuur 11). Deze ligt voor droge en natte omstandigheden hoger dan voor periodes met regen. Het verband met de relatieve vochtigheid kan het best geïdealiseerd worden via een exponentiële curve.



Figuur 11: Verband tussen mediane nachtelijke niet-stomatair kroonweerstand (R_c nst) en wrijvingsnelheid (u_*) ingedeeld in 8 klassen (op basis van percentielverdeling).

De kennis van parametrisaties van kroonweerstand (Tabel 13) met nachtelijke gegevens kan gebruikt worden om de niet-stomatair weerstand overdag te modelleren. Daarnaast zijn ook betere modellen vereist om de stomataire geleidbaarheid te simuleren.

Tabel 13: Parametrisaties voor niet-stomatair kroonweerstand voor verschillende categorieën van kroonnathed op basis van nachtelijke metingen.

kroonnathed	Non-linear regressiemodel	r
Droog	$1043u_*^{(-0.85)}\exp^{(-0.023*RH)}$	0.36
Regen	$173u_*^{(-0.83)}$	0.25
Nat	$684u_*^{(-0.66)}\exp^{(-0.015*RH)}$	0.30
verzadigd	$1275u_*^{(-0.87)}\exp^{(-0.027*RH)}$	0.36

5. Conclusies

Tijdsreeksanalyse over de periode 1995-2003, gecorrigeerd voor weersinvloeden bevestigt de dalende tendens voor SO_2 en de stijgende trend voor ozon. Er is een duidelijke bijdrage van weersomstandigheden tot de variabiliteit in gasvormige pollutanten. Deze blijft niet beperkt tot de windrichting waarbij voor elk component een verschillende maximale aanvoersector bestaat. Voor SO_2 en NO_x brengen hoge windsnelheid, lage temperaturen en neerslag een verdunning van de component teweeg. Episodes met hoge druk (P) of temperatuursinversie leiden tot een verhoogde aanwezigheid van SO_2 en NO_x in de atmosfeer. Voor ozon leiden weersomstandigheden die dispersie van SO_2 en NO_x tot gevolg hebben, tot een versterkte aanwezigheid in de troposfeer (verdunning NO). Ook periodes met hoge globale instraling verhogen de ozonniveaus.

Het meetjaar 2003 wordt gekenmerkt door enkele hoge dagwaarden voor SO_2 en NO_x tijdens de maand december tengevolge van temperatuursinversie. Dergelijke extreme meteorologische condities werden ook genoteerd in januari 1997 en 1998. De uitzonderlijke goede zomer resulteerde ook in hoge ozonconcentraties en AOT40-waarden.

Fluksen van zwaveldioxide berekend op basis van de gradiëntmethode geven een dalende tendens aan tussen 1997 en 2002. De daling is toe te schrijven aan de dalende SO_2 -concentraties en verhoogde kroonweerstand voor droge depositie (R_c). Dit laatste kan gerelateerd zijn aan gewijzigde codepositiepatronen met ammoniak. De berekende depositiesnelheden schommelen tussen 0.2 en 0.8 cm s^{-1} en zijn iets lager dan die gevonden voor Deense Fijnsparbossen (Hovmand en Kemp, 1996) en die door Erisman (1994) gehanteerd voor Nederlandse conifeerbesteden. Deze lopen op tot 1 cm s^{-1} .

Netto-doorval van SO_4 (op basis van level II onderzoek: doorval minus bulkdepositie) volgt een zelfde tendens als de berekende SO_2 -fluksen. De netto-doorval bedraagt in Brasschaat 50 % van de totale depositie en bestaat zowel uit droge depositie van SO_2 als aerosol SO_4 . De fractie droge depositie in de totale S depositie van Tsjechische naaldbossen schommelt tussen 30-70% van de totale depositie (Fottova, 2003).

De berekende ozonfluksen tussen 2000 en begin 2003 werden samengebracht om het gemiddelde dagverloop van ozonfluksen weer te geven. Hieruit blijkt dat de ontkoppeling tussen concentratie en fluxen die vastgesteld werd voor het maandelijkse verloop (Neiryck en Roskams, 2003) ook duidelijk uit het dagverloop is af te leiden. Een mogelijke correlatie tussen ozonconcentratie en -flux is eerder indirect vermits processen binnen en buiten de stomata ontkoppeld zijn. Ozonopname is hoger tijdens de dag en tijdens de zomer. Dit wordt veroorzaakt door de hogere stomataire opname en physicochemische reacties; meteorologische variabelen die aan de basis liggen van deze reacties, leiden dan veelal ook tot verhoogde ozonconcentraties (Mikkelsen et al., 2004). Uit de dataset te Brasschaat komt duidelijk naar voor dat ook een mogelijke relatie op dagbasis komt te vervallen.

Een opdeling in dag- en nachtfluksen brengen een verschillende invloed van de kroontoestand op de ozondepositie aan het licht. 's Nachts (wanneer enkel een niet-stomataire opname verondersteld wordt) blijken de ozonfluksen tijdens regenperiodes dubbel zo groot te zijn als voor episodes zonder neerslag (kroon droog, nat of verzadigd). Dergelijke uitgesproken verschillen tussen de vochtcategorieën komen overdag te vervallen. De lage kroonweerstand voor regenperiodes wordt tenietgedaan door de lagere ozonniveaus wat uiteindelijk resulteert in een flux, die 20% lager uitvalt als tijdens droge weersomstandigheden overdag.

Naast neerslag verlaagt ook hoge relatieve vochtigheid, hoge turbulentie de non-stomataire weerstand (R_{ns}). Dit is in overeenstemming met bevindingen van Zhang et al. (2002) voor vijf verschillende onderzoekssites. Voor ozon blijkt het belangrijk om na te gaan in welke mate bladnatheid al dan niet veroorzaakt is door dauw of door neerslag (Padro, 1994; Lamaud et al., 2001). Daarbij kan een versterkte depositie bij dauw verklaard worden door de hogere concentraties van bepaalde chemische componenten in de dauwwaterfilms.

De nachtelijke depositie van ozon duidt op de aanwezigheid van andere, waarschijnlijk non-stomataire depositiepatronen (destructie van ozon op kroon- of schorsoppervlak, reactie met stikstofoxiden geïmitteerd door de bodem, reacties met radicalen geproduceerd door VOC geïmitteerd door het dennenbestand). De nachtelijke depositie (global instraling $< 5 \text{ W m}^{-2}$) beslaat 20 tot 25 % van de totale ozondepositie. Wanneer enkel de vegetatieperiode beschouwd wordt, kan geconcludeerd worden dat de niet-stomataire depositie minstens 35 tot 40 % van de totale depositie uitmaakt. Ook overdag grijpt een voorlopig onbepaalde hoeveelheid cuticulaire depositie plaats (bv. tijdens regenperiodes). Fowler et al. (2001) suggereren dat de non-stomataire opname tijdens de dag hoger is dan 's nachts omwille van

hogere ozonconcentraties en een lagere aërodynamische weerstand. De bepaling van de stomataire fluks dient verder opgehelderd te worden door modellering van de stomataire geleidbaarheid.

Zeller en Nikolov (2000) schreven 41% van de totale fluks in een subalpijns bosecosysteem toe aan niet-stomataire opnamevormen. Fowler et al. (2001) vermelden voor hun meetstation 30% van de totale depositie als zijnde niet stomatair. Mikkelsen et al. (2004) schatten het aandeel van stomataire ozonopname in de jaarlijkse ozondepositie op minimaal 21%, met de hoogste proportie in de maanden mei-augustus (31%).

6. Dankwoord

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

7. Literatuur

Berghmans, P., Bleux, N., Deams, J., Swaans, W., 2001. Metingen van ammoniumaërosol. Metingen van geoxideerd stikstof. 2001/MIM/R90, VITO, Juni 2001.

Cermak, J., Riguzzi, F., Ceulemans, R., 1998. Scaling up from the individual tree to the stand level in Scots pine. I. Needle distribution, overall crown and root geometry. *Annales des Sciences Forestières* 55 (1-2): 63-88.

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

Duyzer, J.H., Verhagen, H.L.M., Westrate, J.H., Bosveld, F.C., 1992. Measurement of the dry deposition flux of NH_3 onto coniferous forest. *Environmental Pollution* 75, 3-13.

Erisman, J.W., 1994. Evaluation of a surface resistance parametrization of sulphur dioxide. *Atmospheric Environment* 28, 2583-2594.

Fottova, D., 2003. Trends in sulphur and nitrogen deposition fluxes in the Geomon network, Czech Republic, between 1994 and 2000. *Water, Air and Soil Pollution* 150, 73-87.

Fowler, D., Flechard, C., Cape, J.N., Storeton-West, R.L., Coyle, M., 2001b. Measurements of ozone deposition to vegetation quantifying the flux, the stomatal and non-stomatal components. *Water, Air and Soil Pollution* 130, 63-74.

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

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

- Hovmand, M.F., Kemp, K., 1996. Downward trends of sulphur deposition to Danish spruce forest. *Atmospheric Environment* 30, 2989-2999.
- Lamaud, E., Carrara, A., Brunet, Y., Lopez, A., Druilhet, A., 2002. Ozone fluxes above and within a pine forest canopy in dry and wet conditions. *Atmospheric Environment* 36, 77-88.
- Mikkelsen, T.N., Ro-Poulsen, H., Pilegaard, K., Hovmand, M.F., Jensen, N.O., Christensen, C.S., Hummelshøj, P., 2000. Ozone uptake by an evergreen forest canopy: temporal variation and possible mechanisms. *Environmental Pollution* 109, 423-429.
- Mikkelsen, T.N., Ro-Poulsen, H., Hovmand, M.F., Jensen, N.O., Pilegaard, K., Egeløv, A.H., 2004. Five-year measurements of ozone fluxes to a Danish Norway spruce canopy. *Atmospheric Environment* 38, 2361-2371.
- Neirynck, J., Roskams, P., 2002. Meetstation voor luchtverontreiniging Brasschaat. Jaarverslag 2000. Ministerie van de Vlaamse Gemeenschap. AMINAL. Instituut voor Bosbouw en Wildbeheer.
- Overloop, S., Roskams, P., 1999. Meetstation voor luchtverontreiniging Brasschaat. Jaarverslag 1998. Ministerie van de Vlaamse Gemeenschap. AMINAL. Instituut voor Bosbouw en Wildbeheer.
- Overloop, S., Roskams, P., 1998. Meetstation voor luchtverontreiniging Brasschaat. Jaarverslag 1997. Ministerie van de Vlaamse Gemeenschap. AMINAL. Instituut voor Bosbouw en Wildbeheer.
- Padro, J., 1994. Observed characteristics of the dry deposition velocity of O₃ and SO₂ above a wet deciduous forest. *The Science of the Total Environment* 146/147, 395-400.
- Ruigrok, W., Tieben, W. en Eisinga, P., 1997. The dry deposition of particles to a forest canopy: a comparison of model and experimental results. *Atmospheric Environment* 31, 399-415.
- Slinn, W.G.N., 1982. Predictions for particle deposition to vegetative surfaces. *Atmospheric Environment* 16, 1784-1794.
- 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.
- Zeller, K.F., Nikolov, N.T., 2000. Quantifying simultaneous fluxes of ozone, carbon dioxide and water vapor above a subalpine forest ecosystem. *Environmental Pollution* 107, 1-20.
- Zhang, L., Brook, J.R., Vet, R., 2002. On ozone dry deposition-with emphasis on non-stomatal uptake and wet canopies. *Atmospheric Environment* 36, 4787-4799.