

Toelichting op het verloop van de emissie en concentratie van ammoniak van 1993-2014¹

1 Inleiding

De nationale emissie van ammoniak en de gemeten concentratie van ammoniak in Nederland vertonen geen gelijke trend in de periode 1993-2014. Dit leidt tot discussie of de gerapporteerde daling in de emissie van ammoniak in de 90-er jaren daadwerkelijk heeft plaatsgevonden. Daarnaast zien we dat in de recente jaren de trends in de nationale emissie en de gemiddelde concentratie uit elkaar lopen. Naar aanleiding van dit verschil in trends is medio 2014 een Quick scan naar de oorzaken uitgevoerd en zijn aanbevelingen voor verder onderzoek gedaan (CDM, september 2014²). De Quick scan bood geen tijd om aandacht aan de 90-er jaren trend te besteden, die van belang is vanwege de toenmalige invoering van verplichte emissiearme mesttoediening. In deze notitie worden zowel de 90-er jaren trend als de resultaten van enkele onderzoeken, gedefinieerd naar aanleiding van de Quick scan, met betrekking tot de recente trends gepresenteerd. De onderzoeken worden separaat gerapporteerd in twee artikelen in internationale wetenschappelijke vakbladen en in een RIVM-rapport (zie ook bij Referenties):

Trends in ammonia measurements in the Netherlands over the period 1993-2014 door M. C. van Zanten en anderen;

Modelling trends in ammonia in the Netherlands over the period 1990-2014 door R.J. Wichink Kruit en anderen.

Het verloop van de ammoniakconcentratie over 2005-2014 door A. Stolk en anderen.

In de notitie wordt kort de ontwikkeling in de ammoniakemissies weergegeven, waarom de ammoniakconcentratie de meest geschikte parameter is om de emissies te volgen, hoe groot de trends zijn en welke processen de trend beïnvloeden. Ten slotte zullen conclusies gepresenteerd worden over hoe het verschil in trends in ammoniakemissie en ammoniakconcentratie over de periode 1993-2014 geduid kan worden.

2 Beschrijving ontwikkelingen in emissies

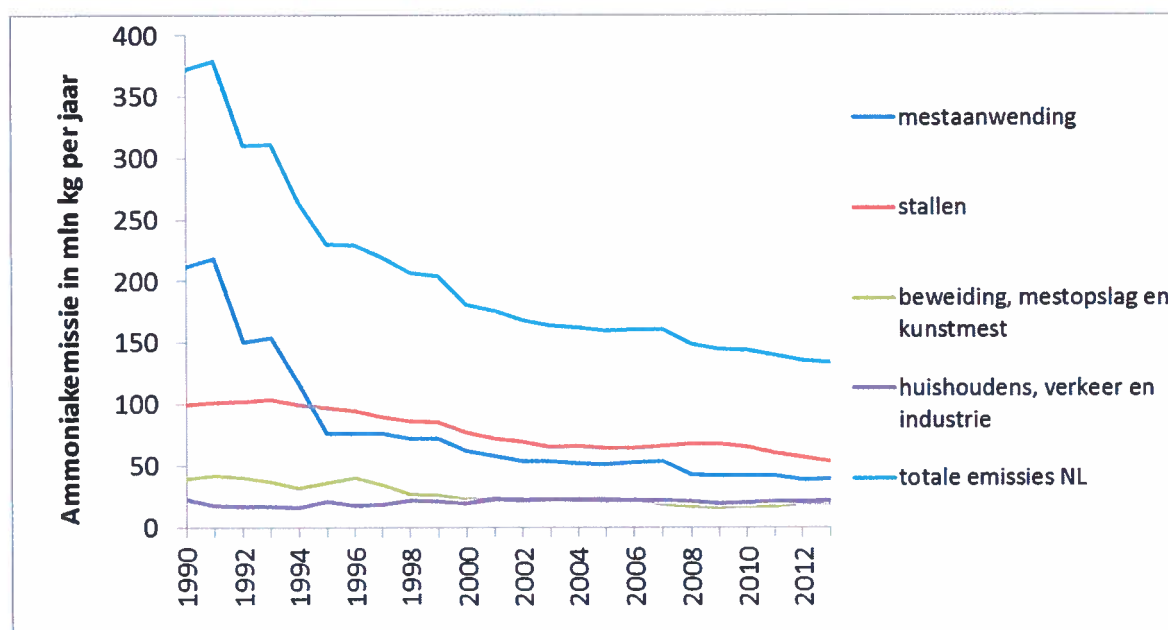
De ontwikkelingen in de ammoniakemissies in Nederland zoals vastgesteld door de Emissieregistratie in 2014 voor de periode 1990 t/m 2013 zijn weergegeven in Figuur 1. De totale gerapporteerde emissie van ammoniak in Nederland is gedaald door de uitvoering van emissie-reducerende maatregelen en het mestbeleid door de agrarische sector. Begin jaren 90 van de vorige eeuw

¹ Deze notitie is opgesteld door: A. van Pul, M. van Zanten, R. Wichink Kruit (RIVM). Conceptversies zijn becommentarieerd door G. Velthof, K. Groenestein en Jan Huijsmans (WUR).

² WOT Kenmerk 14/N&M0155, 10 september 2014

vormden de aanwendingsemissies de grootste bron van ammoniakemissie; ca. 55% van de totale ammoniakemissie in 1990. In 2004 is dat aandeel teruggelopen tot ca. 30% en daarna ongeveer gelijk gebleven. De daling in de aanwendingsemissies vond voor het merendeel plaats in de periode 1990-1995, waarin het onderwerken van mest verplicht werd gesteld. In de recentere jaren neemt de totale ammoniakemissie minder snel af.

Om een vergelijking met verschillende meetreeksen van ammoniak te kunnen maken zijn twee perioden gedefinieerd: 1993-2004 en 2005-2014 (zie paragraaf 3.3 voor de motivatie van deze indeling in twee perioden). Voor de bepaling van de trend in de emissie (zie onder paragraaf 3 en zie Bijlage A Procentuele verandering ammoniakemissies), zijn de emissietotalen voor het jaar 2014 gelijk verondersteld aan de emissietotalen voor 2013. Recentelijk zijn de definitieve cijfers voor 1990-2014 vastgesteld (april 2016) en deze laten een lichte stijging van de emissies zien in 2014 met 3.5 miljoen kg per jaar t.o.v. 2013. In de emissieberekeningen wordt geen rekening gehouden met de wisselende meteorologische omstandigheden over de jaren. De onzekerheid in de emissies wordt geschat op 17% (van Gijlswijk et al., 2004).



Figuur 1. Nationale emissies van ammoniak (in miljoen kg) van 1990-2013 (Jimmink et al, 2015).

In juni 2015 is een internationale wetenschappelijke review uitgevoerd over de gehele keten van emissie, modellering en metingen van ammoniak (Sutton et al., 2015). In deze review is aangegeven dat de ammoniakemissie in het begin van de jaren '90 zeer waarschijnlijk wordt overschat. Door de reviewcommissie is geschat dat de afname in emissies tussen 1990 en 2013 circa 10-20 procentpunten lager geweest zou kunnen zijn. In de eerste jaren van de reeks zijn de emissies mogelijk overschat omdat mestaanwending toen ook tijdens de wintermaanden plaats vond (hetgeen toen nog toegestaan was). Vanwege het latere verbod op uitrijden in de wintermaanden zijn metingen vooral uitgevoerd in de zomermaanden. Doordat de temperaturen in de zomer hoger zijn geven deze metingen een overschatting van de emissies tijdens de winter. In recente jaren zijn de emissies mogelijk onderschat vanwege onduidelijkheden over de implementatiegraden van

emissiearm uitrijden en mogelijk onvolledig onderwerpen. In deze notitie wordt uitgegaan van de officiële emissiecijfers en is geen rekening gehouden met aanpassingen in emissietotalen als gevolg van deze mogelijke over- en onderschattingen. Op dit moment loopt onderzoek naar deze mogelijke over- en onderschattingen.

3 Trend in ammoniakconcentratie

3.1 Belangrijkste factoren die de concentratie van ammoniak in de lucht bepalen

Ammoniak komt vrij uit mest in stallen en opslag, bij aanwending van dierlijke mest en kunstmest, beweiding en andere kleinere bronnen. In de buitenlucht wordt ammoniak door luchtwervels (turbulentie) verspreid en meegenomen met de wind (transport). Eenmaal in de lucht wordt ammoniak chemisch omgezet naar ammoniumsulfaat- en ammoniumnitraatzouten (ammonium-aerosolen). Ammoniak en ammoniumzouten komen weer op het aardoppervlak neer (droge depositie) of worden door regen uit de atmosfeer verwijderd (natte depositie). De ammoniakconcentratie in de buitenlucht is dus het resultaat van diverse processen:

- emissies in binnen- en buitenland;
- atmosferisch transport;
- chemische omzetting;
- depositie.

De ammoniakemissies zoals gerapporteerd in Figuur 1 betreffen alleen de emissies in het binnenland. Het zal dus duidelijk zijn dat de trend in de gemeten ammoniakconcentratie daarom niet één op één te vergelijken met de trend in de berekende nationale emissies. Bij het vergelijken van de trends in de emissies en concentraties van ammoniak, is het van belang om ook de trends in deze verschillende processen in kaart te brengen. Daarnaast is er een verschil in de bijdragen van de verschillende soorten emissie aan de concentratie in de lucht: stalemissies dragen per geëmitteerde hoeveelheid ammoniak meer bij aan de concentraties in de lucht dan het geval is bij aanwendingsemisies.

Naast metingen van ammoniakconcentraties in de buitenlucht zijn er ook metingen beschikbaar van de ammoniumconcentraties in regenwater en in aerosolen. Omdat deze gevormd zijn uit ammoniak zijn dit "volgprodukten" van de "primair" geëmitteerde ammoniak. Ook deze concentraties zijn een gevolg van bovengenoemde processen. Zij zijn echter, meer dan bij de ammoniakconcentraties in de lucht, afhankelijk van emissies uit het buitenland van zowel ammoniak als zwaveldioxide en stikstofoxiden. Ongeveer 40% van ammonium in neerslag vindt zijn origine in het buitenland. Van ammonium in aerosol is dat bijna 50%. De trends in ammonium in neerslag en aerosol zijn dus minder geschikt voor het volgen van trends in de nationale ammoniakemissies. Voor de ammoniakconcentratie in de lucht is de buitenlandse bijdrage minder dan 15%. De concentratie van ammoniak op basis van metingen in de buitenlucht, is dus de best beschikbare indicator om de emissieontwikkeling te volgen (voor meer detail: Bijlage B "Waarom ammoniak als indicator voor het volgen van ammoniakemissies?"). Voor de volledigheid zijn de trends in ammonium in neerslag en aerosol weergegeven in Bijlage C "Trends in ammoniak-gerelateerde componenten: ammonium in neerslag en aerosol."

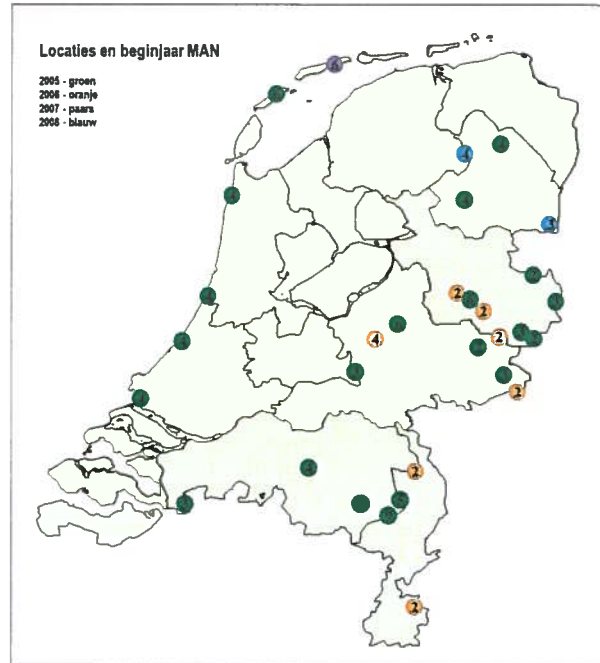
3.2 Metingen

In het Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit (LML) worden concentraties van ammoniak op uurbasis gemeten; vanaf 1993 op acht locaties, vanaf 2014 op zes locaties (Figuur 2a). Sinds 2005 worden ook maandgemiddelde ammoniakconcentraties in Natura2000-gebieden gemeten: Meetnet Ammoniak in Natuurgebieden (MAN) (Figuur 2b). De onzekerheid van het jaargemiddelde van de

ammoniakconcentratie op de LML-locaties wordt geschat op 7% en voor de metingen in het MAN op gebiedsniveau op 9% (Blank et al., 2001, Lolkema et al., 2015).



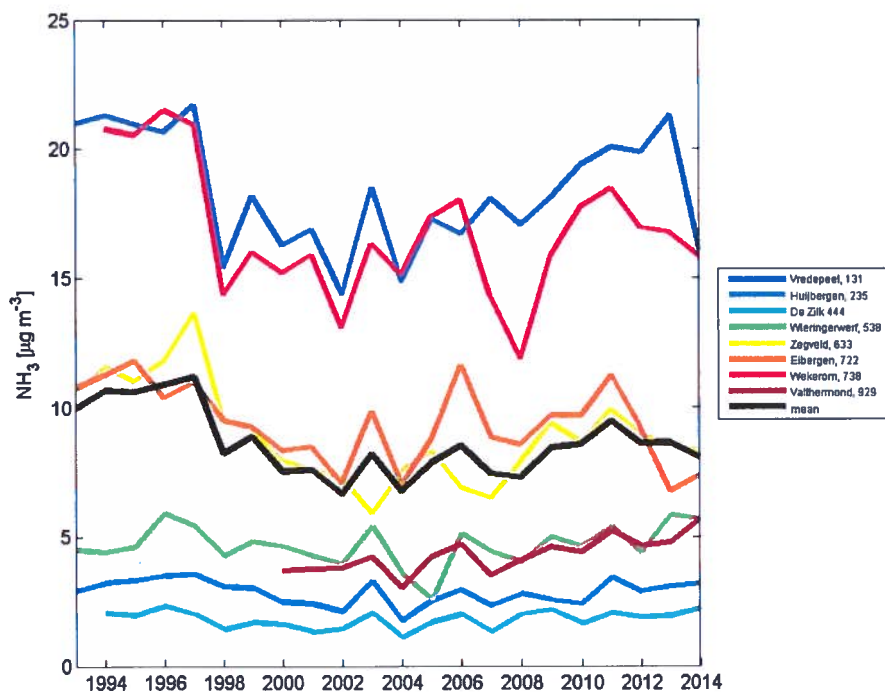
Figuur 2a. Meetpunten van de uurlijkse ammoniakconcentratie in de buitenlucht uitgevoerd met automatische monitoren in het LML. In geel de meetpunten waar tot 2014 werd gemeten. Op deze locaties zijn de metingen van ammoniak voortgezet met passieve samplers zoals gebruikt in het MAN.



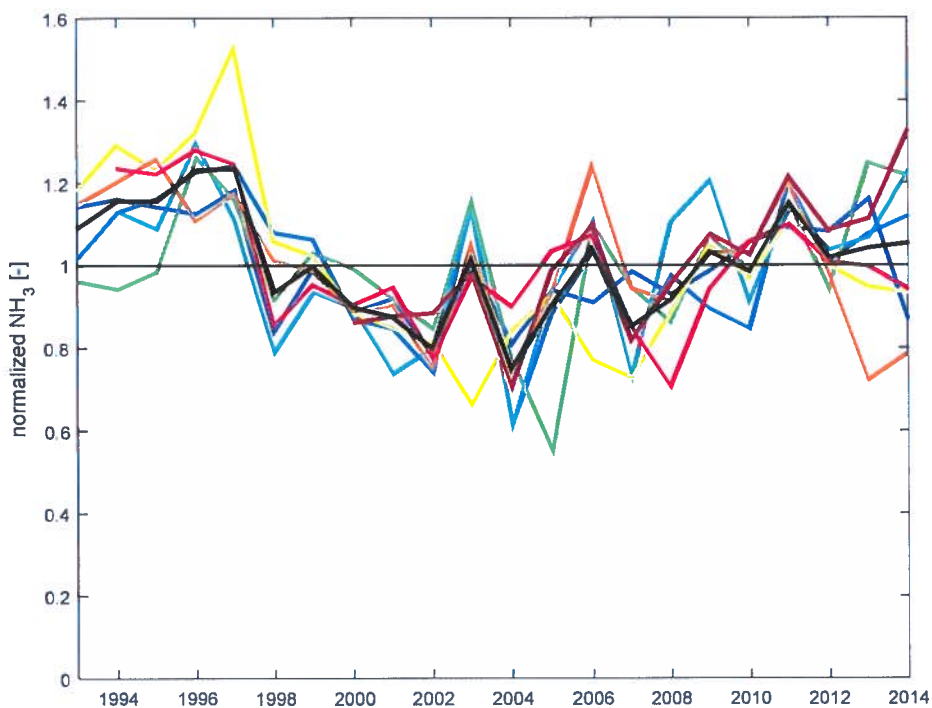
Figuur 2b. Meetpunten van de ammoniakconcentratie in de buitenlucht uitgevoerd met passieve samplers in het MAN. De kleur geeft het beginjaar aan van de metingen; het getal het aantal meetpunten in het betreffende natuurgebied. In totaal worden in de analyses in deze notitie 31 gebieden meegenomen.

3.3 Overzicht trend in jaargemiddelde ammoniakconcentratie

De metingen van ammoniakconcentraties laten grote verschillen tussen locaties zien en de variatie over de jaren is ook aanzienlijk (Figuur 3). De concentratieverschillen tussen de stations worden grotendeels verklaard door het verschil in belasting aan ammoniakemissies in de omgeving van de locatie. De variatie van jaar tot jaar is mede afhankelijk van de meteorologische omstandigheden. Warmere jaren (zoals bijv. 2003) leiden vaak tot hogere concentraties; natte jaren (zoals bijv. 1998) leiden daarentegen vaak tot lagere concentraties. Dergelijke meteorologische effecten zijn meestal in alle meetreeksen terug te vinden. Dit is zichtbaar in Figuur 4 waar het concentratieverloop voor elk station is genormaliseerd ten opzichte van het gemiddelde voor het station voor de periode 1993-2014. Daarnaast toont deze figuur dat ondanks de verschillen in de hoogte van de concentratie het verloop in de tijd voor de stations redelijk gelijkvormig is. Dit geeft aan dat er weliswaar grote lokale invloeden zijn maar dat de trend ook voor een groot deel bepaald wordt door bronnen die verder weg liggen (op regionale schaal).



Figuur 3. Verloop in de jaargemiddelde ammoniakconcentraties voor de acht LML-stations van 1993 t/m 2014 en het gemiddelde van de stations.

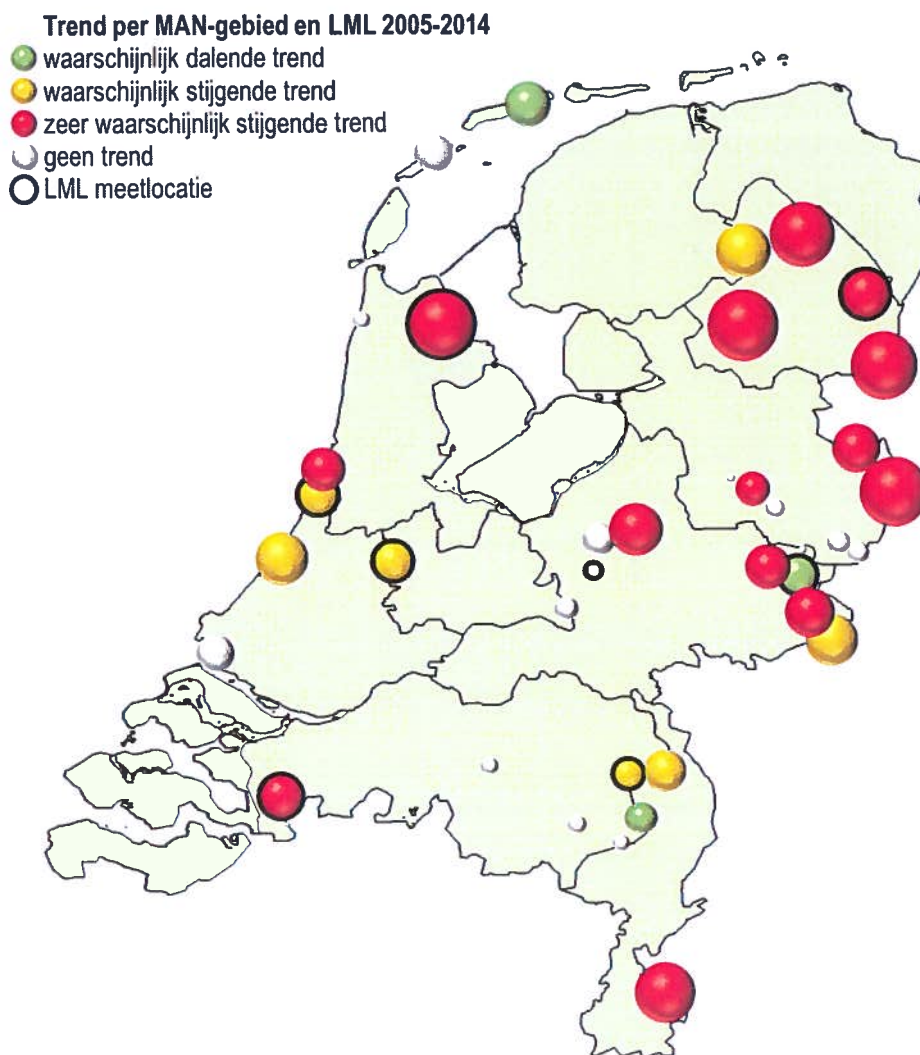


Figuur 4 Verloop in de jaargemiddelde ammoniakconcentraties voor de acht LML-stations (legenda als in Figuur 3), maar waar het concentratieverloop is genormaliseerd op het gemiddelde (voor 1993-2014) per station.

Voor een trend over alle LML stations is in deze notitie de trend door de gemiddelde genormaliseerde concentratie gebruikt (zwarte lijn in Figuur 4). Over de gehele periode is de ammoniakconcentratie op de LML stations gedaald. Duidelijk is echter dat in de jaren '90 tot de eerste jaren van deze eeuw de daling het sterkst was. Daarna daalde de concentratie niet meer, maar vertoont juist een stijging. Daarom is in de trendanalyse de gehele meetperiode ingedeeld in 1993-2004 en 2005-2014 resulterend in een trend van -36% (95% betrouwbaarheidsinterval) voor de periode 1993-2004 en +19% (90% betrouwbaarheidsinterval) voor de periode 2005-2014. De keuze voor de knip tussen 2004 en 2005 is gemaakt omdat vanaf 2005 naast metingen in het LML ook ammoniakmetingen in het MAN plaatsvinden. De afgeleide trends veranderen echter niet wezenlijk bij een knip een jaar eerder of later.

Voor de periode 2005-2014 is ook een trendanalyse gemaakt waarbij de MAN-metingen en de LML-metingen zijn gecombineerd. Hiervoor zijn beide reeksen eerst genormaliseerd. De trend in de ammoniakconcentratie op basis van beide meetnetten is 15% over de periode of ca. 1,5% per jaar (95% betrouwbaarheidsinterval). Om te zien of de trends regionale verschillen vertonen, zijn de trends in de ammoniakconcentraties per MAN-gebied en LML station (omcirkeld) in Figuur 5 ruimtelijk weergegeven. In ca. 60% van de gebieden is de trend in de ammoniakconcentratie (zeer) waarschijnlijk stijgend. In drie gebieden is de trend waarschijnlijk dalend. De stijgingen zijn voor een groot deel te vinden in het oosten van Nederland (vooral in Drenthe en Oost-Overijssel).

De sterke toename van de ammoniakconcentratie in gebieden langs de Duitse grens wekt de indruk dat de stijging in het oosten mede door Duitse bronnen kan zijn veroorzaakt. Een oriënterende analyse op basis van windrichtingen laat echter een sterkere toename zien bij wind vanuit Nederlandse richting dan bij wind vanuit Duitsland. Hoewel deze analyse slechts zeer indicatief is, lijkt het niet aannemelijk dat de ammoniakconcentratie in het oosten vooral door Duitse bronnen is toegenomen.



Figuur 5. De trend over 2005-2014 per MAN-natuurgebied en LML-locatie, per natuurgebied gemiddeld over alle MAN-locaties binnen dat gebied. LML-locaties zijn omgeven door een zwarte rand. De omvang van de bol geeft aan hoe groot de verandering over de periode 2005-2014 is geweest. De kleur van de bol geeft de waarschijnlijkheid van de trend weer³.

³ Getoetst is de significantie waarmee de helling van de regressielijn afwijkt van 0. Met betrekking tot de toetsing op significantie zijn de volgende definities gebruikt:

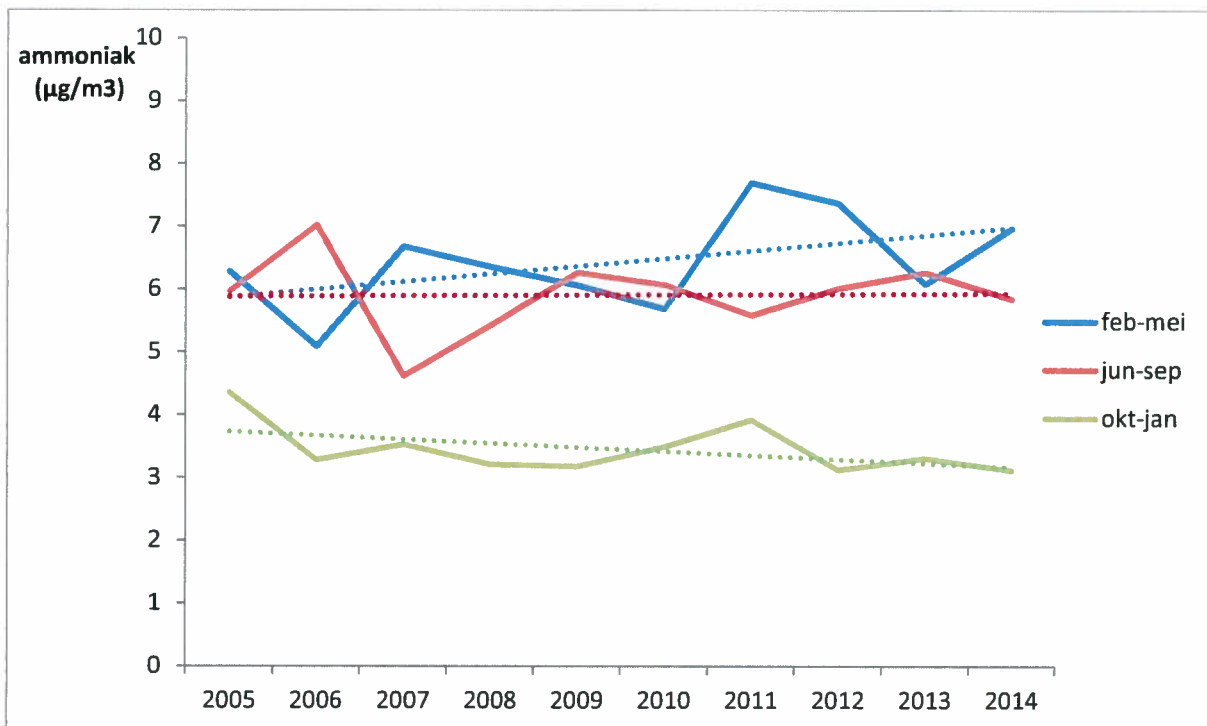
Omschrijving	Toetsingscriterium
Geen trend	$p > 0.34$
Trend waarschijnlijk	$0.1 < p \leq 0.34$
Trend zeer waarschijnlijk	$p \leq 0.1$

Deze indeling is gebaseerd op de classificering zoals deze ook wordt gehanteerd door het Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC) (Mastrandrea, M.D. et al, 2010).

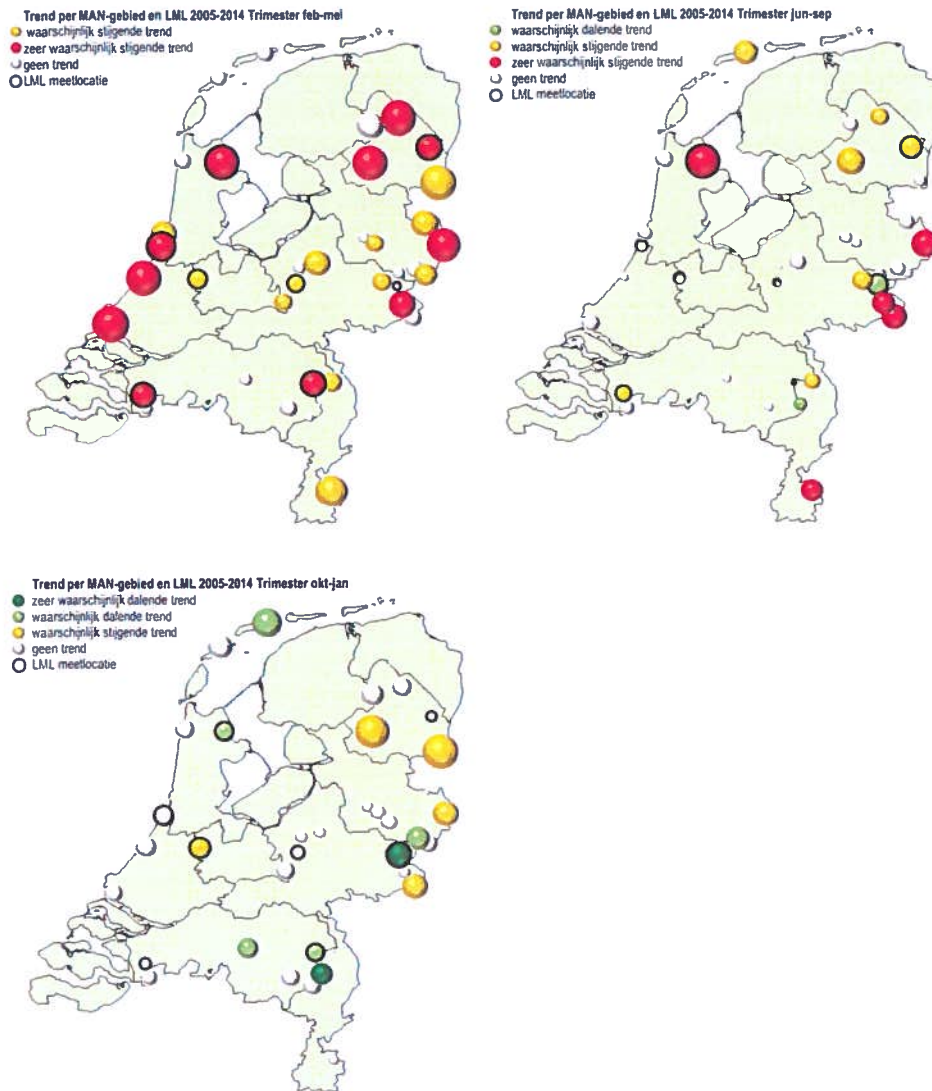
3.4 Seizoensafhankelijkheid

De ammoniakconcentratie vertoont een aanzienlijke variatie gedurende het jaar. In het voorjaar en in mindere mate in de late zomer laat de ammoniakconcentratie een piek zien als gevolg van de weersomstandigheden en hogere emissies door het aanwenden van mest in die perioden. De concentratie in het voorjaar (februari t/m mei) vertoont een toename over de periode 2005-2014 (Figuur 6), die statistisch significant is (waarschijnlijk stijgend). Deze is minder zichtbaar in de zomermaanden (juni t/m september) en in de winterperiode (oktober t/m januari) is sprake van een lichte daling. Deze beide trends zijn echter niet statistisch significant. Het ruimtelijk patroon in de trend over de perioden is weergegeven in Figuur 7. In de periode februari-mei is vrijwel overal sprake van een (zeer) waarschijnlijk stijgende trend. Voor de periode juni-september zijn er ook overwegend stijgende concentraties, maar de trend is veel kleiner dan in de periode februari-mei en is op nog maar een klein aantal plaatsen (zeer) waarschijnlijk stijgend. Voor de periode oktober-januari zijn er slechts enkele waarschijnlijk stijgende trends maar is er overwegend geen trend en in een aantal gebieden een (zeer) waarschijnlijk dalende trend.

De stijging in de voorjaarsconcentratie is maar in beperkte mate het gevolg van veranderende meteorologische invloeden op de ammoniakconcentratie ten gevolge van een verandering in klimaat. Er is namelijk geen sprake van een statistisch significante trend in de meteorologische invloed op de concentratie over de periode 2005-2014 (zie verder onder 4.2).



Figuur 6. Verloop van de ammoniakconcentratie gemiddeld over vier maandelijke periodes over 2005-2014.



Figuur 7. De trend over 2005-2014 per MAN-natuurgebied en LML-locatie, per natuurgebied gemiddeld over alle MAN-locaties binnen dat gebied voor 4 maandsgemiddelde perioden. LML-locaties zijn omgeven door een zwarte rand. De omvang van de bol geeft aan hoe groot de verandering over de periode 2005-2014 is geweest. De kleur van de bol geeft de waarschijnlijkheid van de trend weer.

4 Kwantificering van de processen die de concentratie van ammoniak beïnvloeden

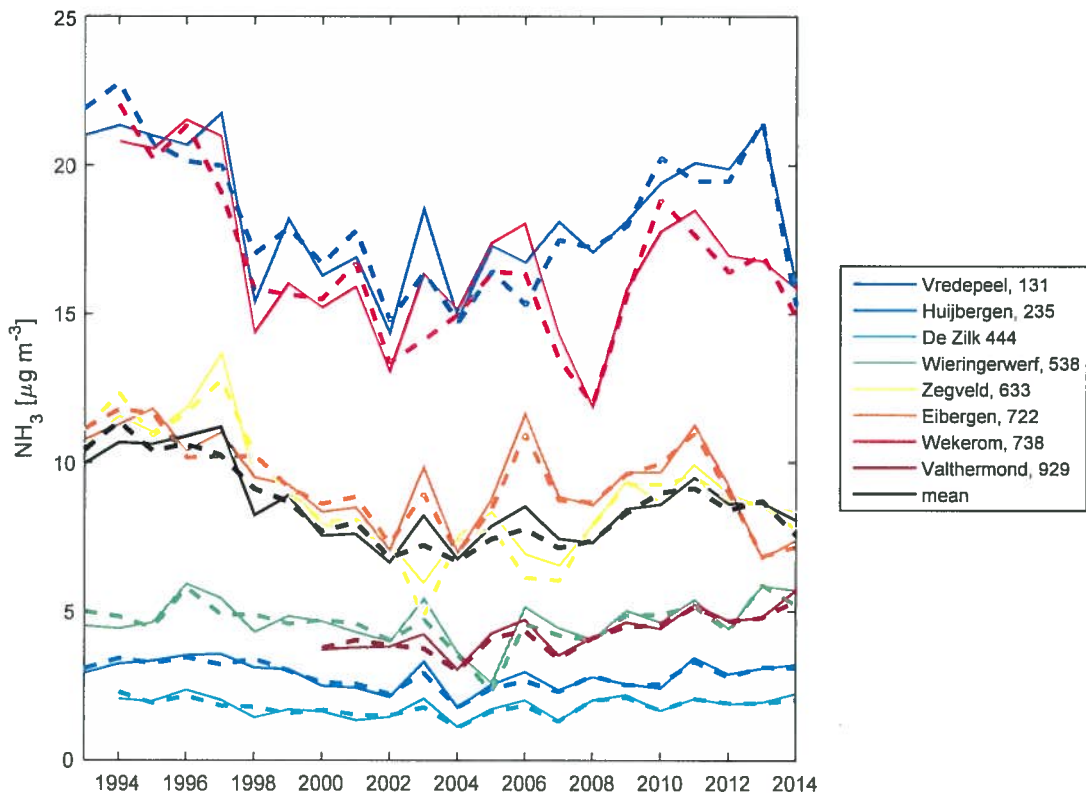
4.1 Algemeen

De mate waarin de trend in de nationale emissies is terug te vinden in de atmosferische concentraties, hangt af van de atmosferische processen die de concentratie beïnvloeden en van de bijdrage van emissies uit het buitenland. Voor meteorologische invloeden kan dit via statistische analyses van de meetdata worden bepaald, maar voor andere processen als chemische omzetting en depositie zijn modelmatige benaderingen nodig. Eerst wordt een statistische analyse van de

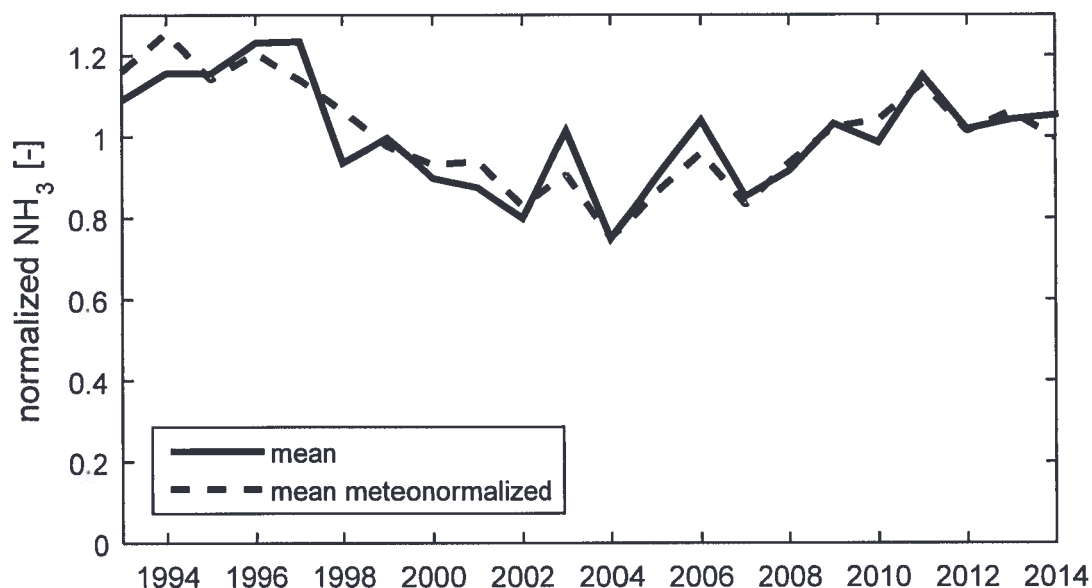
meteorologische invloed op de trend gegeven en vervolgens de invloed van de atmosferische processen op de trend met behulp van het atmosferisch chemie-transportmodel OPS.

4.2 Meteo-invloed

De ammoniakconcentraties op de LML stations zijn met behulp van meteorologische waarnemingen op maandbasis 'genormaliseerd'. Doel van deze normalisatie is om zo goed mogelijk het effect van (extreme) weersinvloeden uit de gemeten concentratie te verwijderen. De analyse levert een virtuele meetreeks op waarin de variatie in de ammoniakconcentraties is gedempt (Figuur 8 en 9). Duidelijk is te zien dat de ruis op het concentratieverloop minder grillig wordt door meteo-normalisatie. Met name voor de periode 1993-1997 leidt de normalisatie tot een ander beeld in het verloop van de concentratie; van stijgend naar dalend (zie ook Figuur E2 in Appendix E).



Figuur 8. Jaargemiddelde ammoniakconcentraties op de 8 LML stations (doorgetrokken lijnen) en de virtuele concentraties waarbij de gemeten concentraties zijn gecorrigeerd voor de effecten van weersinvloeden op basis van statistische relaties (gestreepte lijnen). Legenda als in Figuur 3.



Figuur 9. Het genormaliseerde concentratieverloop per jaar van alle LML-stations. Het concentratieverloop per station is genormaliseerd op het gemiddelde (voor 1993-2014) per station en voor de overzichtelijkheid is het gemiddelde over de 8 LML stations weergegeven.

De meteoronormalisatie leidt ook tot een ander beeld in het concentratieverloop per viermaandsgemiddelde (februari –mei, juni-september, oktober-januari) over de periode 2005-2014. De meteoronormalisatie leidt ertoe dat in de winterperiode het verloop van de concentratie naar boven toe bijgesteld wordt. Dat betekent dat er dan geen sprake meer is van een lichte daling maar van een stijging in de concentraties. Voor de voorjaarsperiode blijkt de normalisatie ertoe te leiden dat de stijging minder sterk is. In de zomer heeft de meteoronormalisatie weinig invloed op het beeld. Na meteoronormalisatie blijkt er in alle drie de perioden sprake te zijn van een vergelijkbare stijging van de concentratie. Op jaarbasis leidt meteoronormalisatie tot een sterker stijgende trend voor de periode 2005-2014. Bovenstaande analyse is alleen uitgevoerd voor de LML-stations maar er is geen reden om aan te nemen dat dit voor de MAN-gebieden sterk zal afwijken (zie ook paragraaf 4.4).

4.3 Buitenlandse emissies

Landelijk gezien is de invloed van de buitenlandse emissies op de ammoniakconcentraties in Nederland op de meetlocaties beperkt. Nabij landsgrenzen kan echter niet worden uitgesloten dat regionale/lokale ontwikkelingen aan de andere kant van de grens een rol kunnen spelen. De bijdrage van België, Duitsland, Verenigd Koninkrijk en Frankrijk aan de gemiddelde concentratie op de LML-stations in Nederland, zoals uitgerekend met het OPS-model, is tegenwoordig iets minder dan 15%. De ontwikkelingen in de gerapporteerde buitenlandse emissies zijn over het algemeen ook dalend, zij het minder dan de daling in de Nederlandse emissies (zie Bijlage D “Buitenlandse emissies”). Gezien de beperkte bijdrage van de buitenlandse bronnen aan de ammoniakconcentraties op de meeste meetlocaties in Nederland, is het dan ook niet aannemelijk dat in het algemeen stijgingen in de gemeten ammoniakconcentraties worden veroorzaakt door stijgende emissies in het buitenland.

4.4 Atmosferische processen

Met het OPS-model zijn berekeningen uitgevoerd voor de LML-locaties om de invloed van veranderende meteorologische omstandigheden, chemische reacties en depositie-eigenschappen op de ammoniakconcentratie te kwantificeren. Hiervoor is telkens een basisberekening, waarin deze processen zijn meegenomen, vergeleken met een berekening waarbij één van de processen niet in de tijd is veranderd. Op deze manier kan inzichtelijk worden gemaakt hoe groot het effect van dat proces op de ammoniakconcentratie is en kan dus een virtuele concentratie worden berekend die 'gemeten' zou worden als dat proces in de tijd gelijk zou zijn gebleven.

Het OPS-model berekent de concentraties op basis van emissies (zowel nationale als buitenlandse emissies), meteorologische omstandigheden, atmosferische processen en depositie. De atmosferische processen, zoals de chemische omzetting van ammoniak naar ammoniumaerosol, worden in het OPS-model vereenvoudigd weergegeven. Een vergelijkingsstudie tussen het OPS-model en het chemisch complexere LOTOS-EUROS-model hebben echter laten zien dat de gevoeligheid van de omzettingssnelheden voor veranderende chemische omstandigheden in beide modellen zeer vergelijkbaar is (Manders et al., 2015).

Het effect van veranderende meteorologische omstandigheden is geschat door met meerjarige meteorologische omstandigheden te rekenen⁴. Ten gevolge van de dalende zwavel- en stikstofoxiden concentraties kan ammoniak langer in de lucht verblijven dan voorheen; de "verblijftijd" van ammoniak in de lucht is daarmee verhoogd. Het gevolg is dat een verlaging in ammoniakemissies dus niet automatisch tot een (evenredige) afname in de ammoniakconcentratie leidt. Het effect van veranderende chemische omzettingen van ammoniak in de lucht is nagegaan door te rekenen met constante concentratieniveaus van zwavel- en stikstofdioxiden in de lucht (van 2012) en deze toe te passen voor de gehele periode 1993-2014.

De invloed van veranderende depositie-eigenschappen door de daling in de zwaveldioxideconcentraties sinds 1993 is ook bestudeerd. Op een minder zuur oppervlak (bladoppervlak, bodem) als gevolg van minder zwaveldioxide, deponeert namelijk minder ammoniak en blijft er dus meer ammoniak in de lucht. Om dit effect te kwantificeren is een berekening met en zonder zwaveldioxideafhankelijke depositie uitgevoerd. De onzekerheid in de kwantificering van dit proces is aanmerkelijk groter dan bij de atmosferisch chemische reacties omdat nauwelijks metingen voorhanden zijn om dit effect te valideren.

Het totale effect van bovengenoemde processen leidt er toe dat de trends in concentratie over de periode 1993-2004 en over de periode 2005-2014 circa 10-20 procentpunten lager zouden zijn geweest als de meteorologische omstandigheden, chemische reacties in de atmosfeer en de depositie-eigenschappen door de jaren heen constant zouden zijn gebleven. Oftewel: een deel van de daling in de emissies is niet zichtbaar in de trend in de ammoniakconcentratie door de specifieke meteorologische omstandigheden en de veranderingen in de chemische samenstelling van de atmosfeer. Zie voor een verdere toelichting ook Bijlage E "Verloop ammoniakconcentraties gecorrigeerd voor atmosferische processen".

⁴ De langjarig gemiddelde meteorologische omstandigheden van de periode 1995-2004.

4.5 Bijdrage stal- en aanwendingsemisssies aan de (trend in de) ammoniakconcentratie

Er is een verschil in de bijdrage van de verschillende soorten ammoniakemissie aan de concentratie in de lucht: stalemissies dragen per geëmitteerde hoeveelheid ammoniak meer bij dan het geval is bij aanwendingsemisssies. Dit komt omdat aanwendingsemisssies doorgaans plaatsvinden in korte periodes onder weersomstandigheden waarbij veel atmosferische menging en transport mogelijk is. Daardoor wordt de geëmitteerde ammoniak meer verspreid en is de invloed op de gemiddelde concentratie kleiner dan bij stalemissies die het gehele jaar door plaatsvinden. Het OPS-model houdt rekening met deze verschillen in bijdragen van stal- en aanwendingsemisssies op de concentratie van ammoniak.

Met het OPS model is onderzocht wat de bijdrage van de stal- en aanwendingsemisssies is aan de gemeten daling in de ammoniakconcentraties op de LML-stations over de periode 1993-2004. De reductie in de stalemissies en aanwendingsemisssies leiden tot een daling van de concentratie van ca. $1,8 \text{ ug/m}^3$ en $2,2 \text{ ug/m}^3$ dus respectievelijk 45% en 55% van de berekende daling. Het aandeel van de stal- en aanwendingsemisssies in de reductie van de ammoniakemissies over 1993-2004 is ongeveer $1/3$ en $2/3$ respectievelijk. Inderdaad is dus te zien dat een daling in de stalemissies een relatief grotere daling in de ammoniakconcentratie (van ca. 45%) heeft dan verwacht kan worden op basis van een daling in de emissies (van ca. $1/3$). Voor de aanwendingsemisssies geldt het omgekeerde: een daling in de emissies van $2/3$ leidt tot een daling in de concentratie van 55%.

De daling in de gemeten concentratie van ammoniak over de LML-stations over de periode 1993-2004 is ca. $3,5 \text{ ug/m}^3$. Dit komt redelijk overeen met de berekende daling. De daling in de gemeten concentraties is dus alleen te verklaren door een reductie van de stalemissies én de aanwendingsemisssies.

Nagegaan is wat de effectiviteit van de maatregel voor het emissiearm aanwenden van mest is op de ammoniakconcentratie. Daartoe is met het OPS model een berekening gemaakt waarbij verondersteld is dat de emissiefactoren van alle aanwendtechnieken gelijk is aan die van bovengronds aanwenden. De ammoniakconcentraties die hiermee berekend worden liggen ongeveer $3,5\text{-}4 \text{ ug/m}^3$ hoger dan bij de berekeningen op basis van de officieel gerapporteerde emissies. Deze berekende waarden liggen ver boven de gemeten concentraties van ammoniak. Dit betekent dus dat de maatregel effectief is (zie Bijlage F).

5 Samenvattend

De gemeten concentraties van ammoniak in de buitenlucht zijn over de periode 1993-2014 gedaald. De daling in de concentraties heeft voornamelijk in de eerste tien jaar plaatsgevonden (ca.35% over 1993-2004), daarna zijn de concentraties toegenomen. De gerapporteerde ammoniakemissies zijn over de periode 1993-2014 met circa 60% gedaald waarbij de grootste afname in de periode van 1993-2004 heeft plaatsgevonden (ca. 50% over 1993-2004) en een geringere afname in de periode daarna.

Bovenstaande constatering laten ruwweg twee perioden zien waar de trends in ammoniakconcentraties en –emissies verschillen:

1) 1993-2004: de gerapporteerde emissies dalen met circa 50% en de concentraties dalen met circa 35%. Dit verschil is gegeven de onzekerheden in het bepalen van emissies en het meten van concentraties niet groot. Uit een analyse blijkt verder dat de meteorologische omstandigheden en de atmosferisch chemische omstandigheden in die periode zodanig waren dat een deel van de emissiereductie is gemaskeerd. Daarnaast is er een verschil in de daling van de ammoniakconcentratie ten gevolge van stalemissies en aanwendingsemisies. Dat verklaart dat de emissiedaling van ammoniak niet heeft geresulteerd in een evenredige daling in de concentratie van ammoniak. In de internationale review in 2015 door Sutton et al., is aangegeven dat de aanwendingsemisies voor de beginjaren '90 mogelijk nog overschat zijn. Dit laatste is momenteel in onderzoek.

2) 2005-2014: de gerapporteerde emissies dalen met circa 20%. De concentratie gemiddeld over Nederland daalt niet, maar stijgt. Ook in deze periode hebben veranderende atmosferische processen ertoe geleid dat een beperkt deel van de daling in de emissie niet zichtbaar was. Er blijft echter een verschil tussen de trend in de emissies en die in de concentratie. De ammoniakemissies in 2014 zijn toegenomen, echter in de periode ervoor, 2005-2013, blijft een dalende trend aanwezig. Het beeld dat de emissies in de afgelopen tien jaar zijn gedaald maar de concentraties van ammoniak zijn gestegen, verandert daarmee nauwelijks.

Er zijn regionale verschillen: in het noordoosten van Nederland is er op grotere schaal een stijging van de concentratie. Dat de concentraties in het noordoosten van Nederland stijgen door een toename van de emissies uit Duitsland is niet waarschijnlijk maar is ook niet geheel uit te sluiten voor meetlocaties zeer dicht tegen de grens. Het ruimtelijke beeld van de gerapporteerde ammoniakemissies laat vrijwel overal een daling zien. Er zijn echter wel stijgingen van met name de stalemissies door melkvee. Dit kan zeer waarschijnlijk niet de stijging van de concentraties op grotere schaal verklaren. Opgemerkt dient te worden dat de emissies op nationaal niveau worden berekend en niet specifiek voor regio's. Dit betekent dat lokale trends in emissies kunnen afwijken van het landelijk beeld.

Er zijn duidelijke seizoensinvloeden. In de periode 2005-2014 zijn in het voorjaar stijgingen van de concentratie zichtbaar. In de andere seizoenen is de stijging minder prominent zichtbaar of zelfs afwezig. De stijging in de concentraties op jaarbasis worden dus voornamelijk veroorzaakt door een stijging van de concentraties in het voorjaar. De meteorologische omstandigheden hebben er echter toe geleid dat het verloop van de concentratie in het voorjaar sterker is dan onder gemiddelde meteorologische omstandigheden. Voor de winter geldt het omgekeerde en zou het verloop eerder

stijgend zijn dan licht dalend. Onder gemiddelde meteorologische omstandigheden zouden de trends in het voorjaar, de zomer en winter over de periode 2005-2014 ongeveer gelijk stijgend zijn.

Referenties

Blank, F.T., 2001. Meetonzekerheid Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit (LML), KEMA 50050870-KPS/TCM 01-3063, 28-31.

Gijlswijk van, R. en anderen, 2004. Uncertainty assessment of NO_x, SO₂ and NH₃ emissions in the Netherlands. TNO-report R 2004/100, Utrecht, The Netherlands.

Jimmink, B.A., Coenen, P.W.H.G., Dröge, R., Geilenkirchen, G.P., Leekstra, A.J., Van der Maas, C.W.M., te Molder, R.A.B., Peek, C., Vonk, J., Wever, D., 2015. Emissions of transboundary air pollutants in the Netherlands 1990-2013. Informative Inventory report 2015. RIVM Report 2014-0166. Bilthoven, the Netherlands. 182 pp

Lolkema en anderen, 2015. The Measuring Ammonia in Nature (MAN) network in the Netherlands. Biogeosciences, 12, 5133-5142.

Manders-Groot, A., en anderen, 2015. Sensitivity of NH₃ and NH₄⁺ concentrations and deposition to emission changes of NH₃, SO_x and NO_x as modelled with LOTOS-EUROS and OPS. TNO report 2015 R11080. Utrecht, the Netherlands.

Mastrandrea, M.D. et al, 2010. Guidance Note for Lead Authors of the IPCC Fifth Assessment Report on Consistent Treatment of Uncertainties: <https://www.ipcc.ch/pdf/supporting-material/uncertainty-guidance-note.pdf>

Stolk, A., E. Noordijk, H. den Hollander, M.C. van Zanten en W.A.J. van Pul. Het verloop van de ammoniakconcentratie over 2005-2014. RIVM xxxx.

Sutton, M. en anderen, 2015. Review on the scientific underpinning of calculation of ammonia emission and deposition in the Netherlands. Report by M. Sutton Centre for Ecology & Hydrology to Ministry of Economic Affairs, The Hague, 3 August, 2015.

Wichink Kruit, R.J., J. Aben, W. de Vries, F. Sauter, E. van der Swaluw, M.C. van Zanten en W.A.J. van Pul. Modelling trends in ammonia in the Netherlands over the period 1990-2014. Submitted to Atmospheric Environment.

Zanten van, M. , R.J. Wichink Kruit, R. Hoogerbrugge, E. van der Swaluw en W.A.J. van Pul. Trends in ammonia measurements in the Netherlands over the period 1993-2014. Submitted to Atmospheric Environment.

Bijlage A Procentuele verandering ammoniakemissies

Tabel A.1. Procentuele verandering in de gerapporteerde ammoniakemissie ten opzichte van het beginjaar over specifieke periodes.

	Stallen	Aanwending	Overig landbouw (kunstmest, beweiding)	Overig niet landbouw	Totaal
1990-2014	-46%	-81%	-50%	-4%	-64%
1990-2004	-34%	-75%	-45%	2%	-56%
1993¹-2014	-49%	-74%	-47%	29%	-57%
1993-2004	-36%	-66%	-41%	38%	-48%
2005-2014	-18%	-23%	-7%	-6%	-16%

1. Voor een vergelijking met de trend in ammoniakconcentratie in de lucht zijn reducties in de emissies ten opzichte van 1993 nodig omdat de concentratiemetingen pas vanaf dat jaar verricht worden.

De verandering in de emissies kunnen naast bovenstaande methode (relatief t.o.v. het beginjaar) ook worden bepaald door middel van lineaire regressie (Tabel A.2). Op deze manier is de trend minder gevoelig voor het referentie- of beginjaar. Dit speelt met name een rol bij de trend in de metingen van de ammoniakconcentratie maar voor een consistente vergelijking worden de trends in de emissies op dezelfde manier uitgerekend.

Tabel A.2. Procentuele verandering in de ammoniakemissies ten opzichte van beginjaar over specifieke periodes op basis van lineaire regressie.

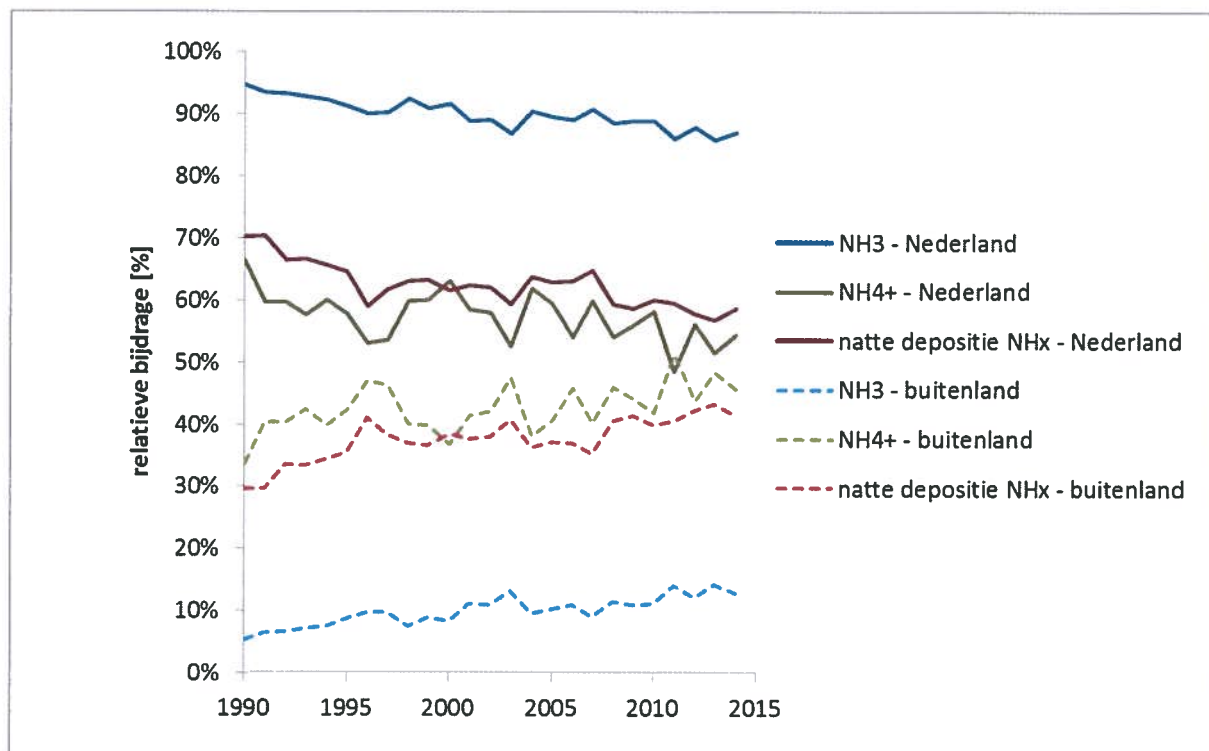
	Stallen	Aanwending	Overig landbouw (kunstmest, beweiding)	Overig niet landbouw	Totaal
1990-2014¹	-53%	-98%	-69%	19%	-72%
1990-2004	-42%	-94%	-56%	31%	-67%
1993²-2014	-50%	-78%	-62%	17%	-58%
1993-2004	-43%	-72%	-51%	40%	-51%
2005-2014	-23%	-32%	-10%	-4%	-22%

1. Bij lineaire regressie wordt een rechte lijn door de cijfers getrokken en de verandering in het eindjaar ten opzichte van het beginjaar op die lijn bepaald. De percentages zijn niet realistisch voor langere periodes waarin de emissies sterk niet-lineair dalen.

2. Voor de analyse van de ammoniakconcentraties in de lucht die pas sinds 1993 uitgevoerd worden, moeten de reducties in de emissies ten opzichte van 1993 bekeken worden.

Bijlage B Waarom ammoniak als indicator voor het volgen van de ammoniakemissies?

Van de ammoniak en ammoniumcomponenten die gemeten worden is de ammoniakconcentratie in de lucht de meest geschikte om de effecten van ammoniakbeleid in Nederland te volgen. Om dit te illustreren zijn modelberekeningen met OPS gemaakt om te laten zien wat de bijdragen van Nederlandse en buitenlandse bronnen is op de gemeten concentraties van ammoniak en ammonium. Onderstaande figuur laat de relatieve bijdrage van Nederlandse en buitenlandse ammoniakemissies zien aan de ammoniak- en ammoniumconcentratie en de natte depositie van ammoniak op de LML stations. Ammoniakconcentraties in de lucht worden voor het overgrote deel (>85%) veroorzaakt door emissies in Nederland zelf. Andere indicatoren zoals de concentraties van ammoniumaerosolen in de lucht (NH_4^+) en natte depositie van ammoniak worden voor een aanzienlijk kleiner deel bepaald door de in Nederland uitgestoten ammoniak, in de recentere jaren rond de 55% en 60% respectievelijk. Deze componenten zijn minder direct gerelateerd aan de ammoniakemissies omdat ze door chemische omzetting worden gevormd en/of over een langere afstand worden getransporteerd voordat ze deponeren.

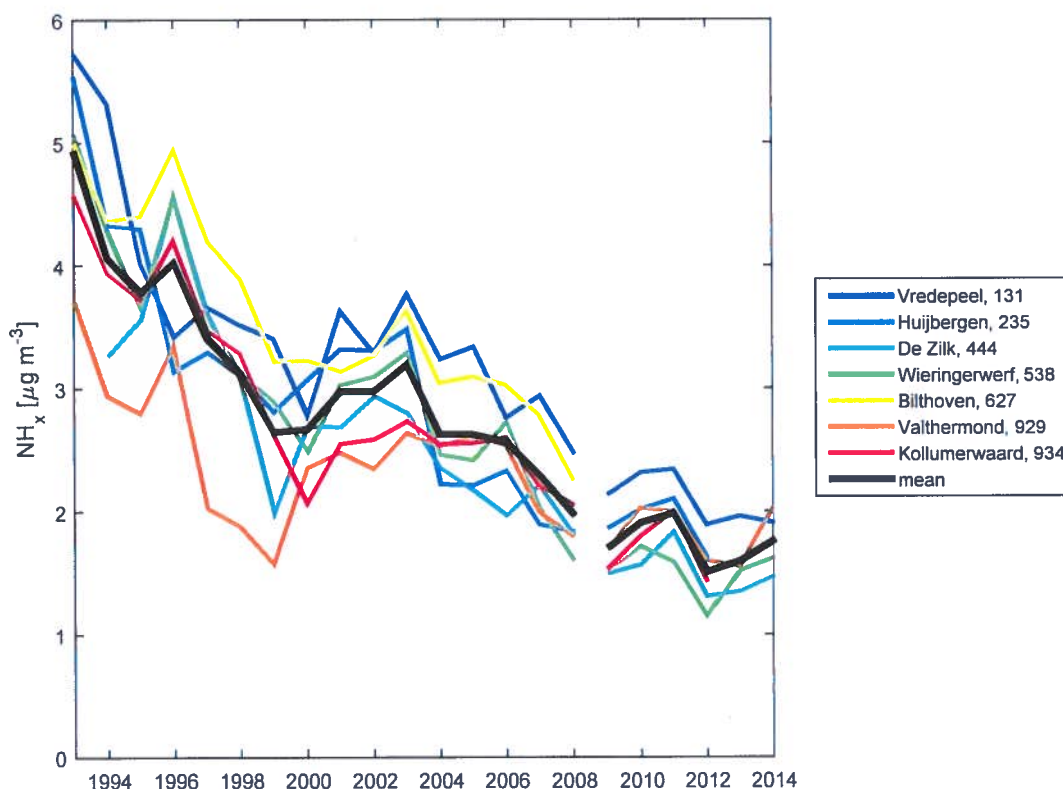


Figuur B.1. Relatieve bijdrage van Nederlandse en buitenlandse NH_3 -emissies aan de ammoniak (NH_3)-concentratie, de ammonium (NH_4^+)-concentratie in aerosol en regenwater (natte depositie).

Bijlage C. Trends in ammoniakgerelateerde componenten: ammonium in neerslag en aerosol

Naast metingen van ammoniakconcentraties in de buitenlucht zijn er ook metingen beschikbaar van de ammoniumconcentraties in regenwater en in aerosolen. Uit de ammoniumconcentratie in regenwater volgt de bepaling van de hoeveelheid natte depositie van ammoniak/ammonium.

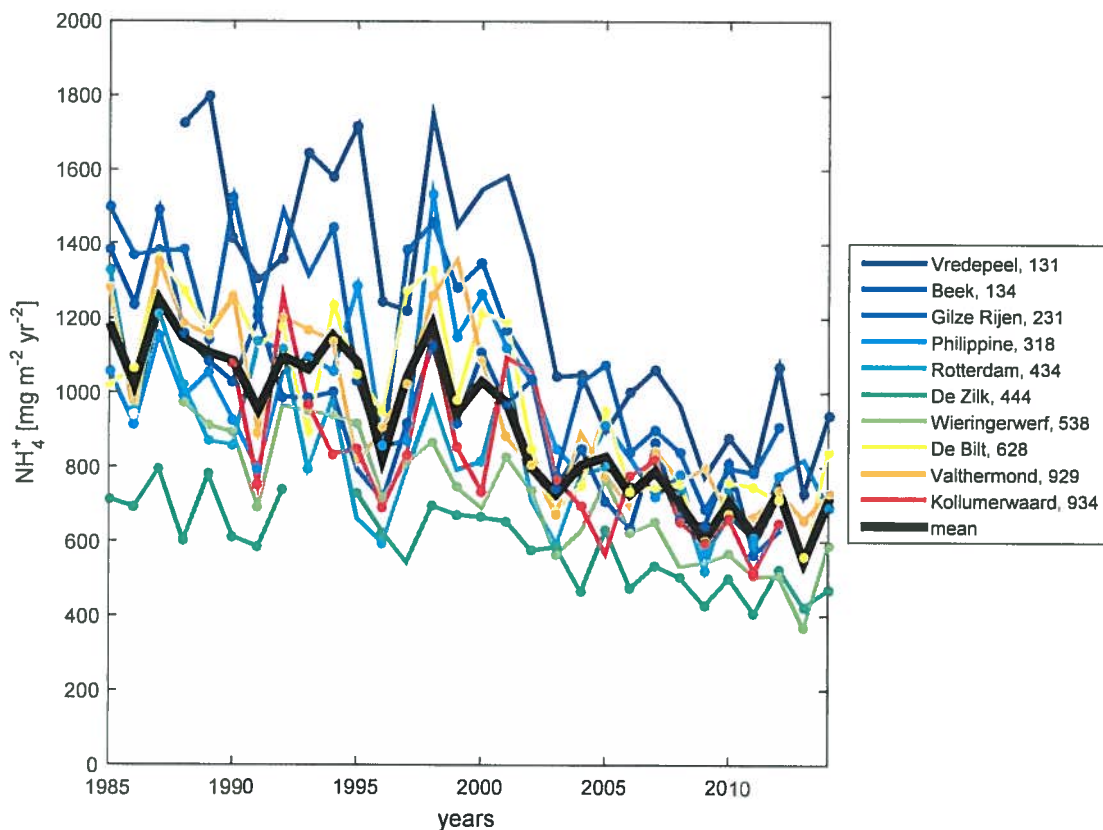
Figuur C.1. toont het verloop van de ammoniumconcentratie (NH_4^+) op de 7 beschikbare LML-stations. De variatie in de gemeten ammoniumconcentraties over Nederland is klein vergeleken bij de ammoniakconcentraties in Figuur 3. Verder valt op dat de ammoniumconcentraties een daling over de gehele periode vertonen; bij de bepaling van de trend is het dan ook niet nodig om de periode op te splitsen in twee deelperiodes zoals bij de ammoniakconcentratie het geval is. De trend in de gehele periode bedraagt -68 procent (statistisch significant bij 95 procent betrouwbaarheidsinterval). De daling in de ammoniumaerosolconcentratie is voor een groot deel het gevolg van de daling in de zwavel- en stikstofoxiden in de lucht over deze periode waaruit het ammoniumaerosol gevormd wordt (zie ook Bijlage E). Deze daling was vooral het gevolg van het internationaal beleid tegen verzuring (door zwaveldioxide-emissies).



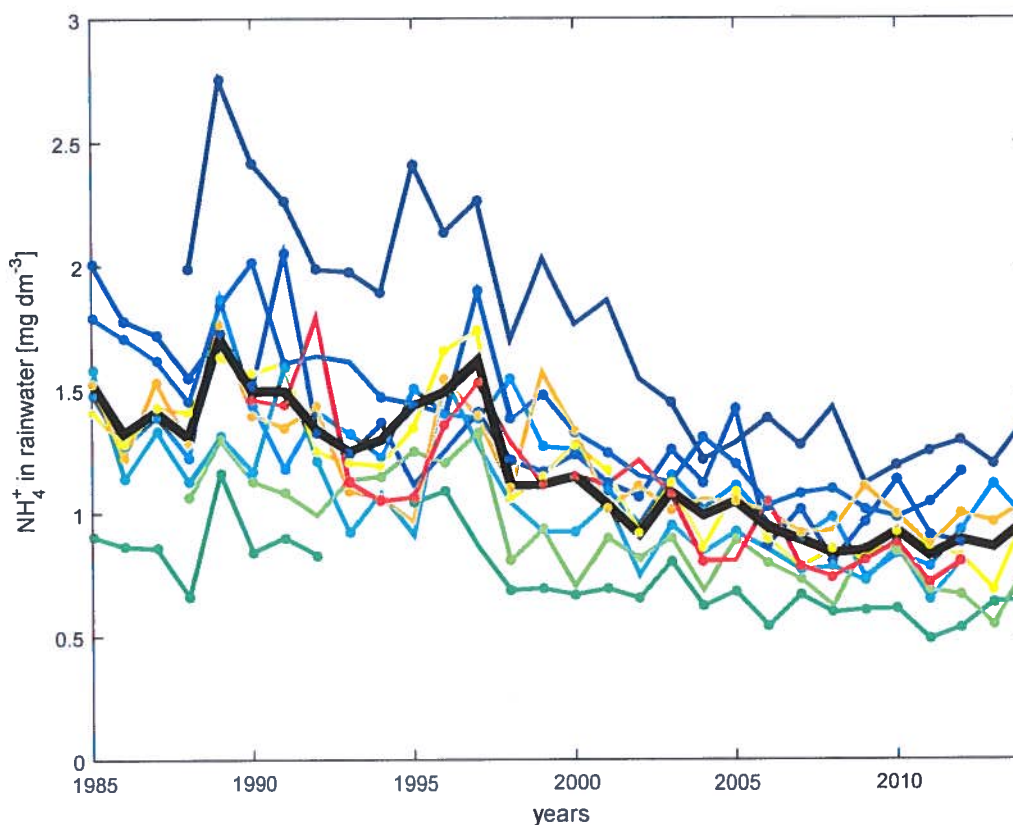
Figuur C.1. Verloop van de ammoniumconcentratie in aerosol op 7LML-stations van 1993 tot en met 2014. Vanaf 2009 zijn de aerosolconcentraties gemeten met een ander instrument dan tussen 1993 en 2008.

Om consistent te zijn met de gepresenteerde trends in de ammoniakconcentratie is deze trend op basis van de gemiddelde genormaliseerde concentratie bepaald.

Het verloop van de natte depositie van ammonium (**Figuur C2**) vertoont ook een daling over de hele periode. De spreiding in de natte depositie van ammonium is groter dan die voor ammonium in aerosol maar niet zo groot als de spreiding in de ammoniakconcentratie. De natte depositie bestaat uit ammonium dat met wolken binnen gevoerd wordt in Nederland maar ook uit het invangen van ammoniak door regendruppels zodat de landelijke variatie in de ammoniakconcentratie voor een deel terug te zien is in de natte depositiemetingen. De trend in de gehele periode van 1985 tot en met 2014 bedraagt -48 procent; over de periode 1993 tot en met 2014 bedraagt de daling 45 procent (beide statistisch significant bij 95 procent betrouwbaarheidsinterval).



Figuur C2 Verloop natte depositie van ammonium op 10 LML-stations van 1985 tot en met 2014.

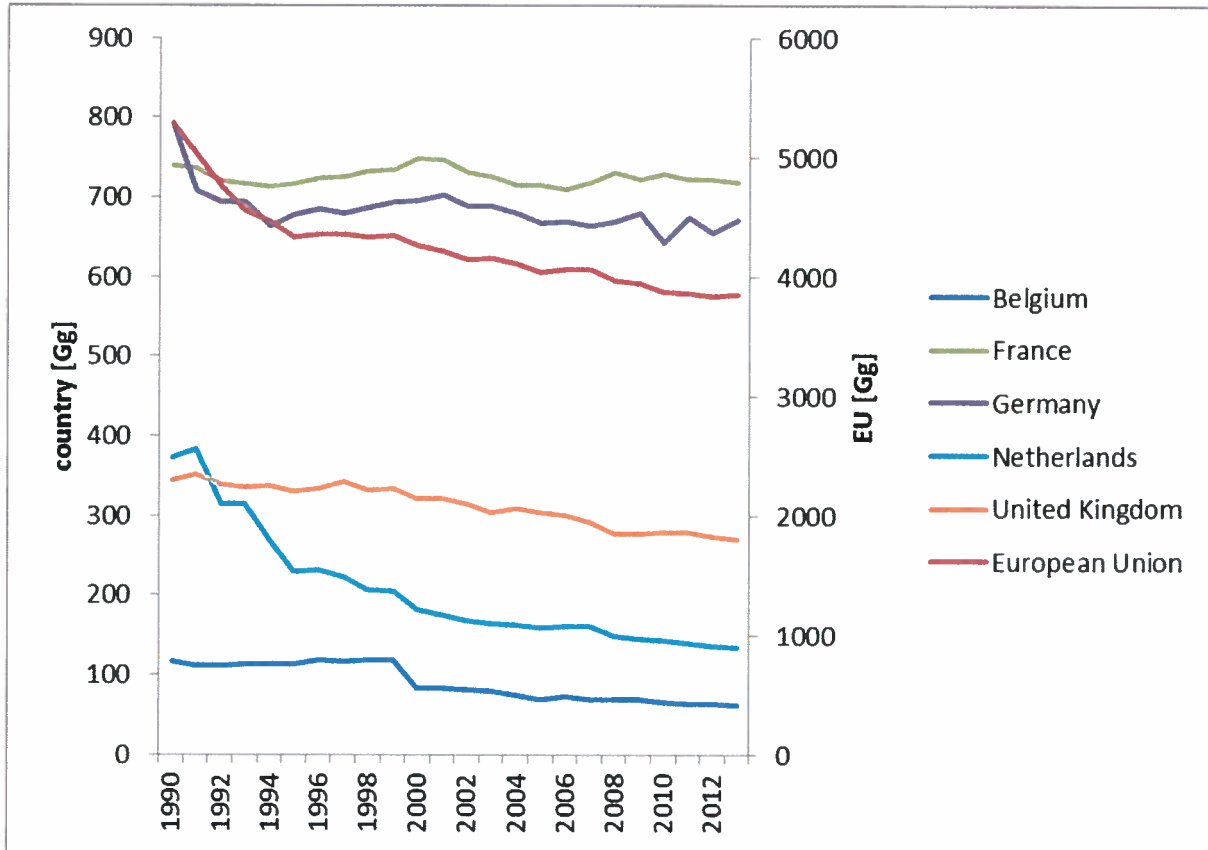


Figuur C.3. Verloop van de ammoniumconcentratie in de neerslag op 10 LML-stations van 1985 tot en met 2014.

Het is ook mogelijk om de ammoniumconcentratie in de neerslag apart te beschouwen: de metingen hiervan worden getoond in **Figuur C.3**. Het verloop hiervan is grotendeels hetzelfde als in de natte depositie alleen springen extreem droge jaren (bijvoorbeeld 1996 en 1997) eruit met een verhoging terwijl dat bij de natte depositie tot een verlaging leidt (en vice versa voor extreem natte jaren). De berekende trend komt overeen met de trend die gevonden wordt voor de natte depositie van ammonium. De trend in de gehele periode van 1985 tot en met 2014 bedraagt -49 procent; over de periode 1993 tot en met 2014 bedraagt de daling 42 procent (beide statistisch significant bij 95 procent betrouwbaarheidsinterval). Opvallend is dat de daling in ammoniumconcentratie in neerslag de laatste tien jaar afvlakt; deze trend is echter nog niet statistisch significant bij een 95 procent betrouwbaarheidsinterval.

Bijlage D. Ammoniakemissies van buitenland

De ammoniakemissies van enkele omliggende landen om Nederland staan weergegeven in figuur D.1. (Bron: gerapporteerde nationale emissietotalen aan de UN ECE CLRTAP EMEP; Webdab.emep.int).



Figuur D.1. De ammoniakemissies van enkele omliggende landen om Nederland voor 1990-2013.

Bijlage E. Verloop ammoniakconcentraties gecorrigeerd voor atmosferische processen

Met het OPS-model zijn berekeningen uitgevoerd voor de LML-locaties om de invloed van veranderende meteorologische omstandigheden, chemische reacties en depositie-eigenschappen op de ammoniakconcentratie te kwantificeren. Hiervoor is telkens een basisberekening, waarin deze processen zijn meegenomen, vergeleken met een berekening waarbij één van de processen niet in de tijd is veranderd. Op deze manier kan inzichtelijk worden gemaakt hoe groot het effect van dat proces op de ammoniakconcentratie is en kan dus een virtuele concentratie worden berekend die 'gemeten' zou worden als het proces niet in de tijd zou zijn veranderd.

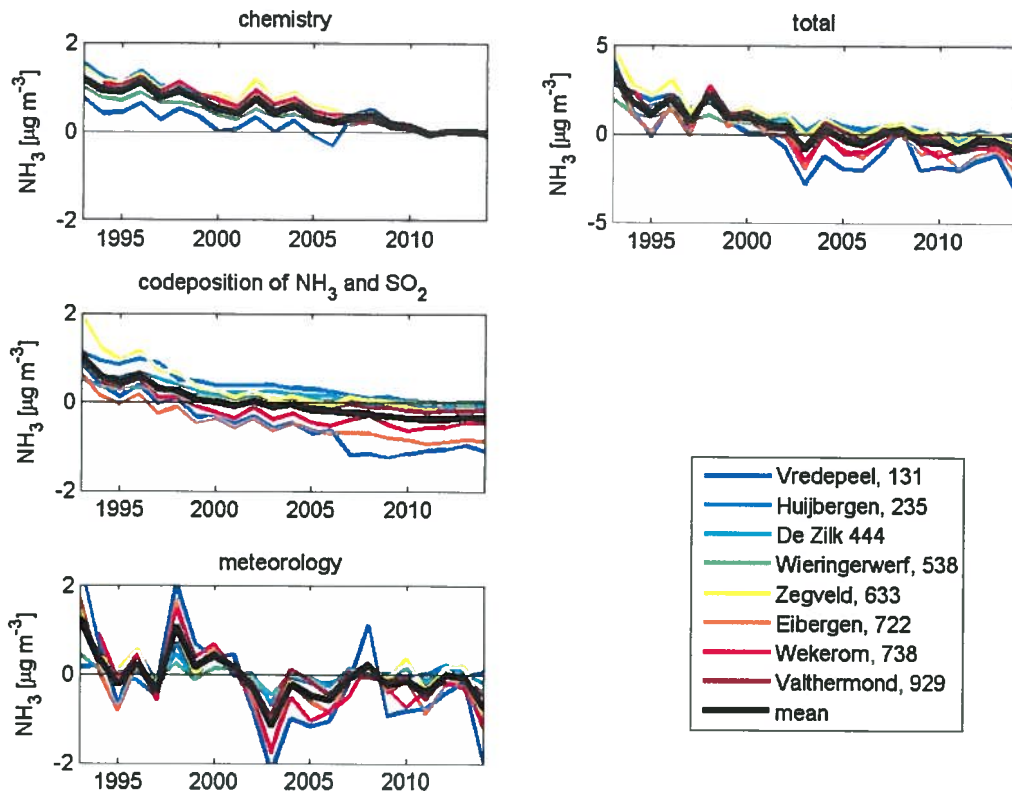
Het effect van veranderende chemische omzettingen van ammoniak in de lucht is berekend door met de atmosferisch-chemische omstandigheden van 2012 te rekenen voor de gehele periode 1993-2014 (figuur linksboven in Figuur E.1.). Als de chemische omzettingssnelheid in 1993 net zo was geweest als in 2012, dan zou de concentratie ongeveer $1 \mu\text{g m}^{-3}$ hoger zijn geweest. Meer SO_2 en NO_x in de lucht in het verleden hebben dus geleid tot een reductie van de NH_3 concentratie, doordat er toen meer NH_3 werd omgezet in NH_4^+ aerosol.

Het effect van veranderende depositie-eigenschappen door de daling in de zwaveldioxideconcentraties sinds 1993 is berekend door in het OPS model met zwavelafhankelijke depositie te rekenen (middelste figuur in Figuur E.1.). Op een minder zuur oppervlak, als gevolg van minder zwaveldioxide, deponert namelijk minder ammoniak en blijft er dus meer ammoniak in de lucht. De berekeningen laten zien dat de concentraties in 1993 ongeveer $1 \mu\text{g m}^{-3}$ hoger zijn als er geen rekening met dit proces wordt gehouden. De onzekerheid in de kwantificering van dit proces is aanmerkelijk groter dan bij de atmosferisch chemische reacties omdat nauwelijks metingen voorhanden zijn om dit effect te valideren.

Als laatste is het effect van meteorologische omstandigheden geschat door met meerjarige meteorologische omstandigheden te rekenen⁵ (figuur linksonder in Figuur E.1.). De meteorologie van individuele jaren heeft een significant effect op de jaargemiddelde concentratie van meer dan $2 \mu\text{g m}^{-3}$ voor individuele (meer vervuilde) stations tot ongeveer $1 \mu\text{g m}^{-3}$ op het gemiddelde van de 8 LML stations. Het effect van meteorologie op de trend over grotere tijdsperiodes is klein, oftewel, de jaarlijkse anomalieën middelen uit over langere tijdsperiodes. We merken wel op dat er over kortere tijdsperiodes, b.v. tussen 1993 en 2004, een effect van meteorologie op de trend in de NH_3 concentraties kan zijn.

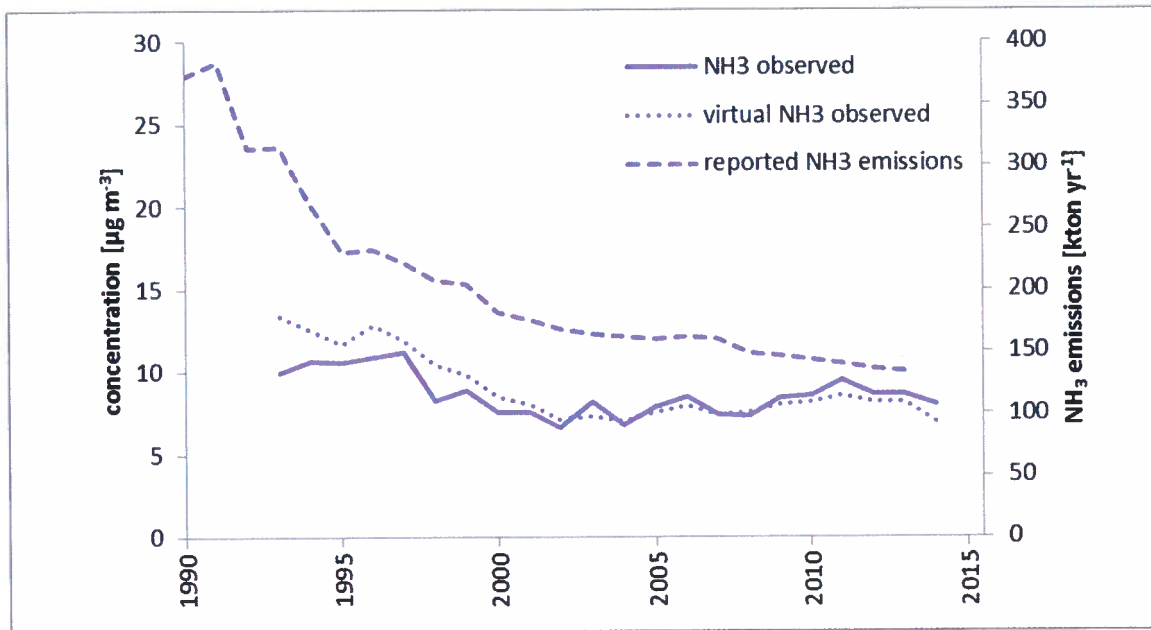
Het totale effect van de 2 chemische processen en de meteorologie op de gemodelleerde ammoniakconcentratie is ook weergegeven (figuur rechtsboven in Figuur E.1.). Vooral in begin jaren 90 zouden de concentraties zo'n $4 \mu\text{g m}^{-3}$ lager zijn geweest als er met constante chemische omzetting (2012), zonder codepositie van NH_3 en SO_2 en met meerjarige meteorologie zou zijn.

⁵ De langjarig gemiddelde meteorologische omstandigheden van de periode 1995-2004.



Figuur E.1.. Effect van vaste chemische omzettingssnelheden (linksboven), codepositie van NH_3 en SO_2 (link midden), meerjarige meteorologie (linksonder) en het totaal van de drie processen (rechtsboven) op de gemodelleerde ammoniakconcentratie op 8 LML stations in Nederland over de periode 1993-2014.

Om te illustreren wat het effect van deze processen op de gemeten concentraties is, is het totale effect van de drie processen op de gemeten concentraties gezet (gestippelde lijn in Figuur 1). De figuur laat zien dat de trend in de gerapporteerde emissie en de virtuele NH_3 concentratie tussen 1993 en 2004 redelijk goed overeen komen. Vanaf 2005 laten ook de virtuele NH_3 concentraties nog steeds een lichte stijging zien (hoewel minder stijl dan de gemeten concentraties), terwijl de gerapporteerde emissies nog steeds dalen. Het totale effect van bovengenoemde processen leidt er toe dat de trends in concentratie over de periode 1993-2004 en over de periode 2005-2014 circa 10-20 procentpunten lager zouden zijn geweest als deze processen door de jaren heen constant zouden zijn gebleven. Oftewel: een deel van de daling in de emissies is niet zichtbaar in de trend in de gemeten ammoniakconcentratie omdat er veranderingen in de chemische samenstelling van de atmosfeer hebben plaatsgevonden en de meteorologische omstandigheden zodanig waren dat de ammoniakconcentraties hoger bleven. Bijvoorbeeld, ten gevolge van dalende zwavel- en stikstofoxiden kan ammoniak langer in de lucht verblijven dan voorheen, en leidt een verlaging in emissies dus niet automatisch tot een (evenredige) afname in concentraties. De berekening van de inschattingen van deze effecten hebben een grote onzekerheid en moeten als indicatief beschouwd worden.



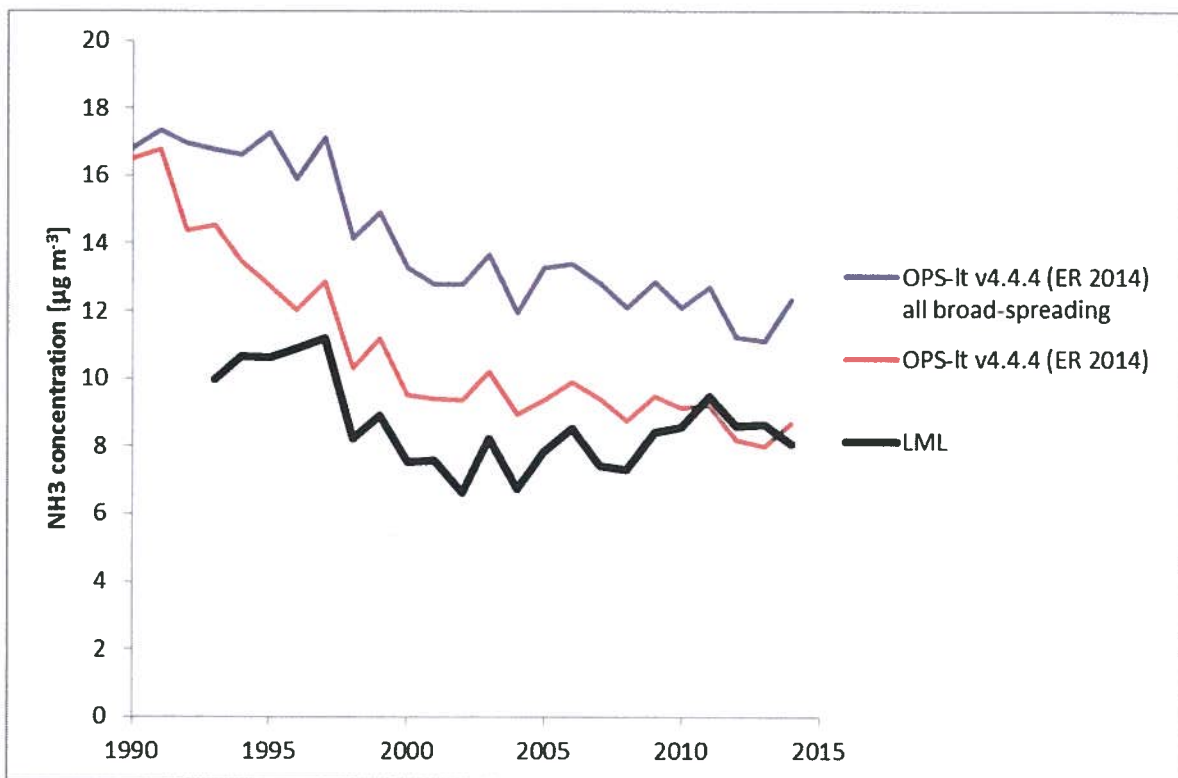
Figuur 1 Trends in gerapporteerde NH₃ emissie (ER 2014; gestreepte lijn) en geobserveerde jaargemiddelde NH₃ concentratie (vaste lijn) tussen 1990 en 2014. De gestippelde lijn representeert de jaargemiddelde virtuele concentratie wanneer er geen verandering in chemie, geen codepositie van NH₃ en SO₂ en geen interjaarlijkse variatie in de meteorologie zouden zijn geweest.

Bijlage F Berekeningen van de effectiviteit van de maatregel voor het emissiearm aanwenden van mest

Om te onderzoeken wat het effect is van emissiearm aanwenden van dierlijke mest, is er met het OPS model een gevoeligheidsrun gedaan. In deze gevoeligheidsrun zijn de emissiefactoren van alle aanwendtechnieken gelijk verondersteld aan die van bovengronds aanwenden. Voor grasland komt het erop neer dat alle mest uitgereden is met een emissiefactor die 74% van de TAN (Totaal Ammoniakaal Stikstof) bedraagt. Op bouwland is de emissiefactor 69%. De emissies in 1990 en 1991 zijn ondanks dat er toen 100% bovengronds werd uitgereden toch iets hoger dan de gerapporteerde emissies door de Emissieregistratie 2014. Dit komt omdat de NEMA voor deze jaren een iets lagere emissiefactor (64%) hanteert omdat het toen verplicht was om mest binnen enkele dagen onder te ploegen. Door deze maatregelen 'uit te schakelen' zijn de emissies in 1990 en 1991 en daardoor ook de gemodelleerde concentraties in deze jaren licht hoger.

De veranderingen in TAN gehalten in de mest door veranderingen in het rantsoen zijn in de loop der jaren wel gewoon meegenomen evenals emissieveranderingen ten gevolge van dieraantallen en emissiereducerende maatregelen in stallen. Figuur F3 laat zien dat de berekeningen waarin alle mest bovengronds wordt aangewend (paarse lijn) systematisch ca. 3,5-4 $\mu\text{g m}^{-3}$ hoger is dan de concentratie berekend met de basis run (rode lijn). Dichter bij 1990 wordt het verschil kleiner, omdat het scenario van alleen bovengronds aanwenden de gerapporteerde emissies benadert. Voor het merendeel van de berekende concentratie-reeks over 1993-2014 liggen de concentratiewaarden zo ver boven de gemeten concentraties van ammoniak dat geconcludeerd kan worden dat de aanname dat het emissie-arm aanwenden niet effectief is, onjuist is.

De figuur laat zien dat ook de introductie van MINAS (mineralenboekhouding) met zijn reductie van TAN gehalten in dierlijke mest een groot positief effect op de reductie van ammoniak concentraties op de 8 LML meetstations heeft gehad.



Figuur F2. Gevoeligheid van de gemodelleerde ammoniak concentraties voor het emissiearm aanwenden van mest.

