



Miljø- og Energiministeriet
Danmarks Miljøundersøgelser

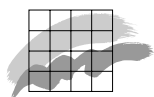
NOVA 2003

Atmosfærisk deposition 1999

Faglig rapport fra DMU, nr. 332



[Tom side]



Miljø- og Energiministeriet
Danmarks Miljøundersøgelser

NOVA 2003

Atmosfærisk deposition 1999

*Faglig rapport fra DMU, nr. 332
2000*

Thomas Ellermann

Ole Hertel

Carsten Ambelas Skjøth

Afdeling for Atmosfærisk Miljø

Datablad

Titel:	Atmosfærisk deposition 1999
Undertitel:	NOVA 2003
Forfattere:	T. Ellermann, O. Hertel og C. Ambelas Skjøth
Afdeling:	Afdeling for Atmosfærisk Miljø
Serietitel og nummer:	Faglig rapport fra DMU nr. 332
Udgiver:	Miljø- og Energiministeriet Danmarks Miljøundersøgelser©
URL:	http://www.dmu.dk
Udgivelsestidspunkt:	December 2000
Faglig kommentering: Feltundersøgelser, og laboratoriemålinger:	Helle Vibeke Andersen H. Ahleson, L.R. Christensen, T. Ellermann, L. Grundahl, B.V. Hansen, apparatur M. Hildan, M.F. Hovmand, T. Rasmussen, J. Riedel, H. Skov, L. Stausgaard, B. Thomsen, B. Vaabengaard, H. W. Madsen.
ETB og EDB-grafisk: Modelberegninger:	Anne Nymann, Ole Hertel, Thomas Ellermann, Kåre Kemp, Carsten Ambelas Skjøth Ole Hertel, Carsten Ambelas Skjøth
Bedes citeret:	Ellermann, T., Hertel, O. & Skjøth, C.A. (2000): Atmosfærisk deposition 1999. NOVA 2003. Danmarks Miljøundersøgelser Roskilde. s. 120 - Faglig rapport fra DMU, nr. 332 Gengivelse tilladt med tydelig kildeangivelse.
Sammenfatning:	Kvælstofdepositionen til danske havområder, fjorde, vige og bugte er for 1999 blevet bestemt til 120 ktøns N. Tilsvarende er depositionen til landområderne bestemt til 90 ktøns N. På målestationerne er koncentrationen af partikulært bundet ammonium og sumnitrat (partikulært bundet nitrat og salpetersyre) aftaget med henholdsvis 32-38% og 13-26 % i perioden 89-99. Derimod observeres igen tegn på ændringer i luftens koncentration af ammoniak. Depositionen af svovlforbindelser til danske landområder er for 1999 blevet bestemt mellem 0,4 og 1,5 tons S/km ² . Våddepositionen af kvælstof viser en aftagende tendens, mens der for svovl måles et signifikant fald. Koncentrationen af svovlforbindelser i atmosfæren er i perioden 89-99 faldet til under halvdelen. For fosfor vurderes at der ikke er sket betydelige ændringer i koncentrationer og depositioner.
Frie emneord:	Atmosfærisk deposition, tørdeposition, våddeposition, kvælstofforbindelser, kvælstoftilførsel til hav og fjorde, bidrag fra danske emissionskilder.
Redaktionen afsluttet:	November 2000
ISBN:	87-7772-574-3
ISSN (trykt):	0905-815X
ISSN (elektronisk)	1600-0048
Papirkvalitet og tryk:	Cyclus Office, 100 % genbrugspapir. Grønagers Grafisk Produktion AS. Denne tryksag er mærket med det nordiske miljømærke Svanen.
Sideantal:	120
Oplag:	200
Pris:	kr. 120,- (inkl. 25% moms, ekskl. forsendelse)
Supplerende oplysninger:	NOVA 2003 rapporterne er en fortsættelse af rapporterne om Vandmiljøplanens Overvågningsprogram, som dækker årene 1989-1997 (udgivet 1990-1998)
Internetversion:	Rapporten findes også som PDF-fil på DMU's hjemmeside
Købes i boghandelen eller hos:	Danmarks Miljøundersøgelser Postboks 358 Frederiksborgvej 399 4000 Roskilde Tlf.: 46 30 12 00 Fax: 46 30 11 14 Miljøbutikken Information og Bøger Læderstræde 1 DK-1201 København K Tlf.: 33 95 40 00 Fax: 33 92 76 90 e-mail: butik@mem.dk www.mem.dk/butik



Indhold

Forord 5

Sammenfatning 7

1 Indledning 13

- 1.1 Overvågningsprogrammet 13
- 1.2 Vejret i 1999 18
- 1.3 Årets rapport 22

2 Atmosfærisk deposition af kvælstof - måleresultater 23

- 2.1 Koncentrationer af kvælstofgasser og partikulært bundet kvælstof 23
- 2.2 Tørdeposition 34
- 2.3 Våddeposition 36
- 2.4 Samlet kvælstofdeposition 40

3 Atmosfærisk deposition af fosfor 43

4 Koncentration og våddeposition af svovlforbindelser - måleresultater 47

- 4.1 Koncentrationer af svovldioxid og partikulært bundet sulfat 47
- 4.2 Våddeposition 52

5 Modelresultater 55

- 5.1 Modelbeskrivelse og beregningsprocedure 55
- 5.2 Luftkoncentrationer 65
- 5.3 Tørdeposition af kvælstof 71
- 5.4 Våddeposition af kvælstof 72
- 5.5 Totaldeposition af kvælstof 75
- 5.6 Beregnet svovldeposition 76
- 5.7 Udvikling i kvælstofdeposition 1989 til 1999 77
- 5.8 Kilder til kvælstofdeposition 78
- 5.9 Fremtidige tiltag i forhold til ACDEP 80

6 Konklusion 83

Referencer 89

Bilag 1

Udvalgte resultater fra målinger på målestationerne 93

Bilag 2

Beregnete kvælstofdepositioner til de danske farvande 103

English Summary 113

Forord

Denne rapport er udarbejdet af Danmarks Miljøundersøgelser som et led i den landsdækkende rapportering af det Nationale Program for Overvågning af Vandmiljøet (NOVA), som fra 1998 afløste Vandmiljøplanens Overvågningsprogram, iværksat efteråret 1988.

Hensigten med Vandmiljøplanens Overvågningsprogram var at undersøge effekten af de reguleringer og investeringer, som er gennemført i forbindelse med Vandmiljøplanen (1987). Systematisk indsamling af data gør det muligt at opgøre udledninger af kvælstof og fosfor til vandmiljøet samt at registrere de økologiske effekter, der følger af ændringer i belastningen af vandmiljøet med næringssalte. Med NOVA er programmet udvidet til at omfatte både vandmiljøets tilstand i bredeste forstand og miljøfremmede stoffer og tungmetaller.

Danmarks Miljøundersøgelser har som sektorforskningsinstitution i Miljø- og Energiministeriet til opgave at forbedre og styrke det faglige grundlag for de miljøpolitiske prioriteringer og beslutninger. En væsentlig del af denne opgave er overvågning af miljø og natur. Det er derfor et naturligt led i Danmarks Miljøundersøgelsers opgave at forestå den landsdækkende rapportering af overvågningsprogrammet inden for områderne: ferske vande, marine områder, landovervågning og atmosfæren.

I overvågningsprogrammet er der en klar arbejdsdeling og ansvarsdeling mellem amterne og Københavns og Frederiksberg kommuner og de statslige myndigheder.

Rapporterne "Vandløb og kilder" og "Søer" er således baseret på amtskommunale data og rapporter af overvågningen af de ferske vande.

Rapporten "Marine områder - Status over miljøtilstanden i 1999" er baseret på amtskommunale data og rapporter af overvågningen af kystvande og fjorde samt Danmarks Miljøundersøgelsers og vore nabolandes overvågning af de åbne havområder.

Rapporten "Landovervågningsoplande" er baseret på data indberettet af amtskommunerne fra 7 overvågningsoplande og er udarbejdet i samarbejde med Danmarks Geologiske Undersøgelser.

Endelig er rapporten "Atmosfærisk deposition 1999" baseret på Danmarks Miljøundersøgelsers overvågning af luftkvaliteten i Danmark.

[Tom side]

Sammenfatning

Denne rapport præsenterer resultater fra dette års rapportering af atmosfæredelen af NOVA 2003 og opsummerer hovedresultaterne vedrørende måling og beregning af koncentrationer af atmosfæriske kvælstof-, fosfor- og svovlforbindelser og deposition af disse til danske hav- og landområder for 1999. Endvidere er koncentrationsniveauer og våddepositioner for 1999 sammenholdt med niveauerne for de sidste 10 år.

Målinger

Måleprogrammet består i 1999 af otte stationer, hvor der måles våddeposition af ammonium, nitrat, fosfat (semikvantitativt) og sulfat vha. bulkoopsamlere. På seks af disse stationer er luftens indhold af forurenende kvælstof-, fosfor- og svovlforbindelser i gas- og partikel-fase blevet opsamlet med filterpackopsamlere og efterfølgende analyseret i laboratoriet. Endelig er kvælstofdioxid blevet bestemt vha. kvælstofdioxidopsamlere og monitorer.

Modelberegninger

Målingerne i overvågningsprogrammet er suppleret med modelberegninger af koncentrationer og deposition af kvælstof- og svovlforbindelser til danske havområder, fjorde, vige, bugte og landområder udført med ACDEP-modellen (Atmospheric Chemistry and Deposition). Modellen er baseret på simulering af de fysiske og kemiske processer i atmosfæren og anvender meteorologiske data og emissionsopgørelser på europæisk skala som input. Modellen er en såkaldt trajektoriemodel.

Målet med at kombinere målinger og modelberegninger er, at fordelene ved de to metoder kan udnyttes. Konklusioner vedrørende

- aktuelle koncentrationsniveauer ved målestationerne,
- depositionen ved målestationerne,
- sæsonvariationer og
- udviklingstendenser for koncentrationer og depositioner

er således hovedsageligt baseret på målingerne, som også er anvendt til vurdering af resultaterne fra modelberegningerne. Beregninger og konklusioner vedrørende

- depositioner til de enkelte farvands- og landområder,
- kildefordeling og
- det danske bidrag

baseres på modelberegningerne, som netop anvendes for at kunne ekstrapolere resultaterne fra de enkelte målestationer ud til større geografiske områder og for at kunne vurdere bidraget fra forskellige kilder.

Kvælstofdeposition til farvande

For 1999 viser modelberegningerne, at den samlede kvælstofdeposition til de danske farvande, fjorde, vige og bugte varierer fra 0,9 til 1,9 ton N/km² med et gennemsnit på omkring 1,1 ton N/km² (se Figur 5.17). Dette giver en samlet kvælstofdeposition til de danske farvandsområder på 120 ktons N. En mere detaljeret opgørelse af depo-

sition opdelt på de forskellige danske farvandsområder, fjorde, vige og bugte er givet i Tabel 5.1 og i Bilag 2. Depositionen er størst til fjorde og kystnære områder. Tidligere var den beregnede deposition til den nordlige del af Nordsøen og den nordvestlige del af Skagerrak også meget høj, men ændringer i de nedbørsdata, som anvendes til modelberegningerne, har imidlertid reduceret depositionen i den nordlige del af Nordsøen og Skagerrak. Dette vurderes at give et bedre billede af den egentlige deposition. Endvidere ses en gradient i kvælstofdepositionen med højest deposition i syd og lavest i nord. Kvælstofdepositionen til de danske farvande fordeles med 80 % tilført som våddeposition og 20 % som tørdeposition. Andelen af våddeposition er lidt højere i forhold til tidligere år og dette er forårsaget af mere nedbør i 1999.

Kvælstofdeposition til landområder

Kvælstofdepositionen til landområderne ligger mellem 1,1 og 2,8 ton N/km², med højest deposition i den sydvestlige del af landet og med lavest deposition i den nordlige del og på Bornholm, se Figur 5.18. For landet som helhed beregnes en kvælstofdeposition på 90 ktøns N. Variationen i depositionen skyldes fordelingen af nedbørsmængde, forskelle i afstand til områder med høje emissioner i den nordlige del af det europæiske kontinent og intensitet af husdyrbrug og dermed ammoniak emissionen på mere lokal skala. Depositionen er generelt højere til land end til vand, hvilket primært skyldes deposition af ammoniak fra lokale landbrug og større deposition af kvælstofdioxid til landoverflader end til vandoverflader.

Landområder + farvande

Den samlede deposition af kvælstof til danske landområder og farvande i 1999 bliver sammenlagt 210 ktøns N, hvilket betyder at depositionen er af samme størrelse som emissionen. For 1998 er den samlede emission af kvælstof estimeret til 160 ktøns N (Vestreng & Stören 2000).

Fosfordeposition og udviklingstendenser

Det estimeres at den uorganiske fosfordeposition til de Indre Danske Farvande (areal 31.500 km²) er på ca. 255 tons P i 1999. Dette estimat angiver en øvre grænse og er fremkommet ud fra en vurdering af, at der ikke er sket ændringer i fosfordepositionen fra atmosfæren i forhold til de sidste år. Denne vurdering støttes af målingerne af luftens indhold af partikulært bundet fosfor og af målinger udført af Fyns Amt.

Svovldeposition

For svovlforbindelserne er der for 1999 kun præsenteret beregninger af den samlede deposition til landområder. Disse beregninger viser at svovldepositionen varierer mellem 0,4 og 1,5 tons S/km² med de højeste depositioner omkring de større byer og i de områder, hvor det regner meget.

Udviklingstendenser for tørdeposition af kvælstof og svovl

Den årlige tørdeposition af kvælstof- og svovlforbindelser følger i store træk koncentrationsniveauerne således at lavt koncentrationsniveau giver lav tørdeposition og vice versa. Derfor vurderes udviklingstendenserne i tørdepositionen på basis af udviklingen i de målte koncentrationsniveauer. Målingerne for 1999 viser at koncentrationsniveauerne for kvælstofforbindelserne er lidt højere end i 1998, mens der for svovlforbindelserne måles samme koncentrationsniveau i 1999 som i 1998. Målingerne for 1999 giver ingen ændringer i det generelle billede af udviklingstendenserne for perioden 1989-1999:

- Generelt set er der ikke sket nogen signifikant ændring i årsmiddelkoncentrationen af ammoniak på målestationerne. Om dette gælder for Danmark som helhed er vanskeligt at vurdere, fordi der er store forskelle mellem målestationerne. Ved Ulborg og Keldsnor måles en lille stigning i årsmiddelværdierne og ved Tange, Anholt og Frederiksborg måles fald i koncentrationen, men det er kun ved Tange, at faldet er signifikant.
- For årsmiddelkoncentrationen af partikulært bundet ammonium måles et signifikant fald. Faldet ligger for alle målestationer på 32-38 % for perioden 1989-1999.
- For årsmiddelkoncentrationen af sum-nitrat observeres et signifikant fald på fem ud af de seks målestationer. Faldet ligger på 13-26 % for perioden 1989-1999.
- For svovlforbindelserne måles et stort signifikant fald i årsmiddelværdierne på alle målestationerne. I perioden 1989-1999 måles fald på ca. 70-90 % for svovldioxid og 46-63 % for partikulært bundet sulfat.

Da ændringerne i koncentrationerne af partikulært bundet ammonium, sum-nitrat og svovlforbindelserne er meget ens på målestationerne gælder de målte reduktioner formentligt for landet som helhed.

En stor del af svovldioxid og den partikulært bundne kvælstof og svovl langtransporteres til Danmark fra den nordlige del af central europa. Faldet i koncentrationerne og dermed tørdepositionen af disse forbindelser følger stort set udviklingen i EMEP's opgørelser for emissionen af kvælstof og svovl i den nordlige del af det europæiske kontinent. Da lokale danske kilder også påvirker koncentrationsniveauerne har reduktionen i emissionen af svovl og kvælstof i Danmark også betydning. Udviklingen for kvælstofdioxid er endnu ikke vurderet statistisk grundet datamaterialets begrænsede omfang.

Udviklingstendens for våddeposition

I 1999 er der på alle stationerne målt en våddeposition på niveau med eller lidt højere end i 1998 (varierer lidt fra målestation til målestation). Dette er også forventet, da nedbørsmængden viser tilsvarende forskel mellem de to år. For hele perioden 1989-1999 måles meget forskellig våddeposition fra år til år, hvilket skyldes de store forskelle i den årlige nedbør. For ammonium og nitrat observeres en tendens til et svagt fald i våddepositions-mængden, men faldet er ikke signifikant. For sulfat måles til gengæld et stort signifikant fald på 33-51 % i perioden fra 1989-1999. Årsagen til det store fald er, som for koncentration-niveauerne af svovlforbindelser, det store fald i svovlemissionerne i Danmark og resten af Europa.

Samlet deposition

Da våddepositionen af kvælstofforbindelserne udgør størstedelen af den samlede deposition vurderes, at der i perioden 1989-1999 har været et lille fald i depositionerne til de danske land- og vandområder. Denne vurdering skal tages med forbehold for, at faldet formentligt ikke er statistisk signifikant, og at variationerne fra år til år kan være større end det samlede fald gennem hele perioden. For svovlforbindelserne måles store og signifikante fald i både våd- og

tørdepositionen. Den samlede deposition af svovlforbindelserne er derfor i den forløbne periode reduceret til omkring halvdelen af niveauet i 1989.

Sæsonvariation af koncentrationer

For hovedparten af de målte forbindelser ses en sæsonvariation, som primært er bestemt af sæsonvariationer i emissioner, fysisk og kemisk omdannelse og transport i atmosfæren. Det generelle billede af sæsonvariationerne kan sammenfattes til følgende:

- Ammoniakkoncentrationen er lavest om vinteren, højest forår og efterår og med lidt lavere koncentrationer om sommeren i forhold til koncentrationen forår og efterår. Årsagen hertil er primært sæsonvariation i den lokale landbrugspraksis, idet ammoniak i atmosfæren primært stammer fra landbruget, hvor navnlig udbringning af husdyrgødning spiller en stor rolle. Sæsonvariation i de meteorologiske forhold er dog også en vigtig faktor.
- Koncentrationen af partikulært bundet ammonium har maksimum i det tidlige forår og et lokalt maksimum i oktober. Årsagen hertil er samspillet mellem sæsonvariation i udslip af ammoniak, dannelse af ammoniumholdige partikler samt transportprocesserne, som er ansvarlige for langtransport af ammonium fra den nordlige del af det europæiske kontinent til Danmark.
- For kvælstofdioxid måles de højeste koncentrationer i vinterhalvåret. Kvælstofoxider emitteres i forbindelse med forbrændingsprocesser og emissionerne er størst i vinterhalvåret pga. opvarmning. Spredningsforhold er dog også en vigtig faktor.
- For sum-nitrat (hovedsageligt partikulært bundet nitrat) ses fuldstændig samme billede som for partikulært bundet ammonium. Her er det blot sæsonvariation af emission af kvælstofoxider i kombination med oxidation til salpetersyre/nitrat, der har betydning. Transportprocesserne har ligeledes en vigtig rolle ved forklaring af den observerede sæsonvariation i Danmark.
- For svovldioxid observeres, som gennemsnit for perioden 1989-1999, en meget klar sæsonvariation med de højeste koncentrationer om vinteren. Svovldioxid stammer primært fra emissioner i forbindelse med forbrænding af svovlholdigt brændstof og lige som for kvælstofdioxid er emissionen derfor højest i vinterhalvåret. Sæsonvariationen ses tydeligt i gennemsnittet for perioden 1989-1999. For 1999 måles imidlertid ingen udpræget sæsonvariation, hvilket kan skyldes de meteorologiske forhold og/eller en ændring i sæsonvariationen af emissionerne.
- For partikulært sulfat observeres ingen udpræget sæsonvariation, hvilket ellers kunne have været forventet ud fra sammenligning til de partikulært bundne kvælstofforbindelser. Årsagen er formentligt, at sulfat udover de menneskeskabte udslip ligeledes har andre kilder (havsalt og algenedbrydning), som har fået relativt mere betydning efter de store reduktioner i emissionen af menneskeskabt svovldioxid. Endvidere er der også betydelige forskelle i de kemiske processer, som fører til dannelse af de partikulært bundne forbindelser.

Sæsonvariation af våddeposition

For nitrat og sulfat ses ingen tydelig sæsonvariation, men der er dog tendens til at våddepositionen følger sæsonvariationen af nedbøren, der for perioden 1989-1999 var størst efterår og vinter og lavest forår og sommer. Den gennemsnitlige sæsonvariation af både nedbørsmængde og våddeposition af nitrat og sulfat er dog lille set i forhold til forskellene fra år til år, ligesom der er store geografiske forskelle. For ammonium ses en mere tydelig sæsonvariation med højst våddeposition i sommerhalvåret. Årsagen hertil er, at ammoniak let optages i vanddråber i atmosfæren, og at ammoniakkoncentrationen er høj i sommerhalvåret. Denne effekt spiller tydeligvis en lige så vigtig rolle, som variationerne i selve nedbørsmængden. Sæsonvariation for våddeposition af ammonium kan være vigtig i forbindelse med algeopblomstringer, da det netop er i sommerhalvåret, at den atmosfæriske deposition relativt betyder mest i forhold til andre tilførsler til de danske farvande.

Kilder til kvælstofdeposition

Den atmosfæriske deposition af kvælstof til danske farvande stammer i 1999 stort set ligeligt fra landbrug (ca. 40 %) og forbrændingsprocesser (ca. 60 %). For områder tæt på landbrug ses dog et lidt højere bidrag fra landbruget. Således bidrager landbrugskilder med godt 60 % af depositionen til Limfjorden og godt 50 % af depositionen til Kattegat, mens diverse forbrændingsprocesser er kilde til resten. Af den samlede deposition til farvandene bidrager danske kilder med 28 % til Kattegat og 9 % til Nordsøen. Derimod udgør det danske bidrag mere end 40 % for nogle fjorde, vige og bugte. Det høje danske bidrag i disse områder skyldes helt overvejende deposition af lokalt emitteret ammoniak. I gennemsnit udgør det danske bidrag omkring 15 % af den atmosfæriske kvælstoftilførsel til de danske farvande. For depositionen til landområderne vil de lokale danske kilder slå endnu stærkere igennem.

Kilder til svovldioxid- og sulfatdeposition

Kilder til deposition af svovl i Danmark er primært diverse forbrændingsprocesser. Dog kommer en mindre del af sulfat fra havsalt og nedbrydning af alger. Den danske del af kilderne til depositionen af svovl er ikke blevet præsenteret i forbindelse med dette års rapportering.

Usikkerhed på beregningerne

Usikkerheden på beregning af deposition af kvælstof til de danske farvande er meget svær at bestemme. På nuværende tidspunkt skønnes usikkerheden, lige som i tidligere rapporter, at ligge på 30-40 % for de åbne farvande og 40-60 % for kystnære farvande. For depositionerne til land er usikkerheden skønnet til at være op til en faktor 2 på den årlige depositionen. Det vurderes at revisionen af modellen og de nye meteorologiske data har givet en forbedring af resultaterne af modelberegningerne. Data fra et år er imidlertid ikke nok til at vurdere om de bedre resultater var tilfældigheder for 1999. Effekten af ændringerne af modellen vil derfor blive kvantificeret når der foreligger en længere tidsserie med den reviderede model og nye meteorologiske data. Endvidere skal det nævnes at emissioner fra skibe endnu ikke er inkluderet i beregningerne. Dette forventes gjort snarligt og dette forventes at give anledning til en mindre forøgelse af depositionerne.

[Tom side]

1 Indledning

NOVA - BOP

Årets rapportering præsenterer resultater fra atmosfæredelen af det Nationale Overvågningsprogram for Vandmiljøet (NOVA 2003) for 1999 og viser resultater fra bestemmelse af luftkoncentrationer og depositions-mængder af eutrofierende, forsurende og miljøskadelige stoffer. Dette arbejde udføres af Danmarks Miljøundersøgelser (DMU), Afdeling for Atmosfærisk Miljø (ATMI), som en del af Det Atmosfæriske Baggrundsovervågningsprogram (BOP).

Denne rapport præsenterer resultaterne for 1999 for de kvælstof-, fosfor-, og svovlforbindelser, som er vigtigst i relation til eutrofiering og forsurening. For at sætte målingerne i relief diskuteres sæsonvariationer og mulige udviklingstendenser for niveauerne af luftforureningskomponenterne i perioden 1989-1999, hvor Vandmiljøplanens Overvågningsprogram har været i funktion. Endvidere fremlægges resultater fra modelberegninger af luftkoncentrationer og depositions-mængder for 1999. Resultaterne for tungmetalmålingerne foretaget i forbindelse med NOVA 2003 præsenteres af praktiske og tekniske grunde i en separat rapport (Hovmand & Kemp 2000).

Som udgangspunkt for præsentationen af resultaterne gives i dette kapitel en kort introduktion til BOP med fokus på de væsentligste ændringer i programmet i forhold til tidligere år. En mere detaljeret gennemgang af måle- og analysemetoder samt modelopbygning og beregningsprocedure er givet i Ellermann et al. (1996) og Frohn et al. (1998). Herefter gives en kort opsummering af de meteorologiske forhold i 1999, idet disse spiller en afgørende rolle for niveauer og depositioner af luftforureningskomponenter. Endelig afsluttes med en kort gennemgang af rapportens opbygning.

1.1 Overvågningsprogrammet

Formål og strategi

Formålet med BOP er dels at beskrive luftforureningen over danske land- og havområder, dels at bestemme den atmosfæriske tilførsel af eutrofierende, forsurende og miljøskadelige stoffer til danske økosystemer. Det er hensigten med overvågningsprogrammet, at det skal være landsdækkende, kontinuert og langsigtet. Resultaterne fra overvågningsprogrammet bruges til at beskrive den geografiske og tidslige variation af luftforureningskomponenterne og giver mulighed for at vurdere årsagerne til eventuelle ændringer. I udførelsen af programmet arbejdes der hele tiden hen mod at implementere den nyeste viden inden for atmosfæreforskning og på at sikre høj kvalitet af resultaterne.

Målinger og modeller

Siden 1994 har beregninger med luftforureningsmodeller været en vigtig del af overvågningsprogrammet. Kombinationen af målinger og modelberegninger giver mulighed for at beskrive koncentrationer og depositioner for områder, som er svære at dække vha. målestationer; f.eks. havområder. Modellerne giver en større geografisk opløsning samt mulighed for at vurdere betydningen af bidrag fra de forskellige kilder til forureningen. Desuden kan modelresultaterne an-

vendes til at analysere årsager til observerede niveauer og eventuelle ændringer i disse.

Optimering af målenettet

I 1999 omfattede målenettet i BOP otte målestationer (se Figur 1.1) fordelt over det danske baggrundsområde og opdelt på seks hovedstationer (Ulborg, Tange/Sepstrup Sande, Lindet, Anholt, Keldsnor og Frederiksborg), en nedbørsstation (Pedersker) og en udviklingsstation (Lille Valby). Siden 1998 er der kun sket en mindre ændring af stationsnettet, idet nedbørsmålingerne ved Tange er for blevet flyttet til Sepstrup Sande; ca. 30 km sydvest for Tange, hvor der i forbindelse med ionbalanceprogrammet hidtil er blevet udført nedbørsmålinger. Flytningen fortages for at forbedre målingerne, idet nedbørsmålingerne ved Tange hyppigt blev kontamineret med biologisk materiale (edderkopper, fugleklatter m.m.). Årsagen til den hyppige kontaminering af prøverne er formentligt beliggenheden tæt ved Gudenå. Konsekvenserne af flytningen vil blive diskuteret kort i forbindelse med præsentationen af resultaterne fra Tange og Sepstrup Sande.



Figur 1.1 Eksempler på udstyr på målestationerne. Til venstre: Filterpackopsamler til opsamling af luftprøver. Filterpackopsamleren består af en filterholder (for enden af hver af de otte arme) indeholdende fire filtre, som luften suges igennem. Luftforureningskomponenterne opsamles derved på de fire filtre. Til højre: Nedbørsopsamlere til bestemmelse af bulkdeposition (dvs. våddeposition plus et lille bidrag fra tørdeposition). Nedbørsopsamlere består af et stativ, en tragt og en opsamlingsflaske skruet på forinden af tragten. Opsamlingsflasken er placeret i et rør for at beskytte mod solens lys.

Måleprogrammet

Placeringen af målestationerne samt en beskrivelse af lokaliteten ved målestationerne fremgår af Figur 1.2 og Tabel 1.1. På hovedstationerne måles våddeposition af kvælstofforbindelser (ammonium og nitrat) og sulfat samt luftens indhold af kvælstofforbindelser i gasfase (ammoniak, kvælstofdioxid og salpetersyre), samt på partikelform (ammonium og nitrat). Tilsvarende måles svovldioxid og sulfat i henholdsvis gas- og partikelfase. På målestationen ved Pedersker måles kun våddeposition mens der ved Lille Valby måles våddeposition og kvælstofdioxidkoncentration (i forbindelse med det Landsdækkende Måleprogram). På målestationen ved Ll. Valby foretages endvidere undersøgelser til dokumentation af målemetoder.

Tabel 1.1 Målestationer i Det Atmosfæriske Baggrundsovervågningsprogram i 1999. Den geografiske placering er angivet i UTM-32-koordinater (Universal Transverse Mercator Grid). Endvidere angives landskabstype, lokale kilder, hvilke prøveopsamlere, der er på lokaliteten, samt tidspunktet for oprettelse af målestationen.

Stationsnavn	UTM-koordinater (km Ø, km N)	Landskabstype	"Lokale" kilder	Prøvetagere ^A	Oprettelses- tidspunkt
Ulborg	465, 6239	skov	få	nedb., luftp. ^E	85.05.23
Tange	537, 6246	skov, sø	landbrug	luftp.	78.10.01
Sepstrup Sande	526, 6215	hede	få	nedb.	89.06.01
Lindet	493, 6111	skov	landbrug	nedb., luftp.	88.06.01
Anholt	657, 6287	kyst	få	nedb., luftp. ^B	88.09.15
Keldsnor ^C	611, 6066	kyst, skov	landbrug	nedb., luftp.	78.10.01
Frederiksborg	709, 6206	skov	Hillerød by	nedb., luftp.	85.05.23
Lille Valby ^D	696, 6177	mark	landbrug	nedb. ^D , luftp. ^E	96.01.01
Pedersker	880, 6113	kyst	få	nedb.	89.06.06

A. Nedb.: Bulk-opsamlere til indsamling af nedbør, luftp.: filterpacks til opsamling af luftprøver

B. Suppleret med NO₂-opsamler.

C. Består af tætplacerede målestationer ved Keldsnor, Føllesbjerg og Bagenkop

D. Stationen kom i funktion i løbet af 1996.

E. Suppleret med monitor til måling af kvælstofdioxid

Våddeposition

Målingerne af våddeposition foretages på halvmånedsbasis vha. bulkopsamlere (se Figur 1.1). Med bulkopsamlere er nedbørstragten altid åben, hvilket betyder at bulkopsamlere opsamler våddeposition plus et lille bidrag fra tørdeposition af luftens indhold af luftforureningskomponenterne. Nedbørsprøverne analyseres efterfølgende i laboratoriet på DMU-ATMI bl.a. for indhold af ammonium, nitrat og sulfat.

Gasser og partikelbundet kvælstof og svovl

Målingerne af luftens indhold af kvælstof- og svovlforbindelser foretages på døgnbasis vha. filterpackopsamlere (se Figur 1.1). Med filterpackmetoden opsamles prøver af gas og partikler på fire filtre i serie, hvorved de forskellige kemiske forbindelser kan separeres fra hinanden. Filtrene analyseres efterfølgende i laboratoriet, og ud fra analyseresultaterne og det anvendte luftvolumen bestemmes luftens indhold af ammoniak, svovldioxid og salpetersyre samt indholdet af partikulært bundet ammonium, nitrat og svovl. Bemærk at filterpackmetoden ikke giver nogen fuldstændig separation af salpetersyre og partikulært nitrat, og derfor rapporteres i stedet summen af koncentrationerne; i det følgende betegnet sum-nitrat.

Kvælstofdioxid (NO₂) målingerne foretages på døgnbasis med NO₂-opsamlere (findes kun på Anholt). En NO₂-opsamler opkoncentrerer luftens kvælstofdioxid på et imprægneret glasfilter, og ved den efterfølgende analyse i laboratoriet bestemmes koncentrationen ud fra analyseresultat og luftvolumen. Desuden måles kvælstofdioxid med kemiluminescensmonitor ved Ulborg, Lille Valby og Keldsnor i forbindelse med Ionbalanceprogrammet og det Landsdækkende Måleprogram (LMP). Monitormålingerne vil i denne sammenhæng blive præsenteret i form af beregnede døgnmiddelværdier.



Figur 1.2 Målestationer i Det Atmosfæriske Baggrundsovervågningsprogram. (●) Station hvor der måles både våddeposition og koncentrationer i luft. (▲) Station hvor der kun måles våddeposition.

Ud over de nævnte kvælstof- og svovlforbindelser måles en lang række andre kemiske forbindelser (se Tabel 1.2). Primært måles en række tungmetaller både på partikulær form i luften og i nedbør. Resultaterne vil, som allerede nævnt, blive publiceret i en separat rapport (Hovmann & Kemp 2000). Derudover måles indholdet af fosfor i atmosfærens partikler og i nedbør (dog kun semikvantitativt), dels fordi fosfat er et vigtigt næringssalt og dels fordi fosforindholdet i nedbør anvendes til vurdering af om nedbørsprøverne er forurenet med biologisk materiale f.eks. fugleklatter (se Kapitel 3). Endelig måles en række andre komponenter, som er vigtige i andre luftforureningssammenhænge, og som bidrager til den nødvendige kvalitetssikring.

Internationale forpligtelser og programmer

Ud over anvendelsen af måleresultaterne i NOVA 2003 varetages de danske forpligtelser i forbindelse med internationale monitoringsprogrammer via BOP. Dette drejer sig om følgende tre programmer:

- Det Europæiske Monitorings- og Evalueringsprogram (EMEP), som fokuserer på den grænseoverskridende luftforurening i Europa.
- Luftmonitoring under Paris Kommissionen (OSPARCOM) til overvågning af luftforureningens belastning af Nordsøen.
- Luftmonitoring under Helsinki Kommissionen (HELCOM) til overvågning af luftforureningens belastning af Østersøen.

I disse overvågningsprogrammer måles en lang række kemiske forbindelser relateret til luftforurening, herunder størstedelen af de i Tabel 1.2 anførte forbindelser.

Andre danske programmer

Endvidere indgår en række af målestationerne i Ionbalanceprogrammet (koordineret af Mads F. Hovmand, DMU-ATMI), som er en del af Skov- og Naturstyrelsens Overvågningsprogram for skov og naturlokaliteter. Måledata fra Det Atmosfæriske baggrundsovervågningsprogram anvendes desuden i mange forskningsprojekter på DMU, blandt andet i forbindelse med udvikling og verifikation af luftforureningsmodeller. Endvidere anvendes resultaterne til optimering og identifikation af nødvendige nye tiltag indenfor overvågningsprogrammet f.eks. ændringer af målenet samt måling af supplerende forbindelser.

Tabel 1.2 Liste over analyserede forbindelser i nedbørsprøver og i gas- og partikelprøver. Nedbørsprøverne opsamles på halvmånedsbasis undtagen for tungmetaller, hvor prøver opsamles på månedsbasis. Gas- og partikelprøver opsamles på døgnbasis. "XX" indikerer metoder (opsamling inklusiv analyse), som i 1999 blev akkrediteret.

	Nedbørsprøver	Gas- og partikelprøver
Kvælstofdioxid		XX
Ammonium	XX	XX
Ammoniak		XX
Nitrat	XX	
Sum-nitrat		XX #
Sulfat	XX	XX
Svovldioxid		XX
Klorid	XX	X *
Natrium	X	X
Magnesium	X	X ***
Kalium	X	XX
Calcium	X	XX
Brintioner	XX	
Fosfor	X *	XX
Tungmetaller	X **	XX **

Sum-nitrat er summen af luftkoncentrationen af salpetersyre og partikulært bundet nitrat. * semikvantitativt. ** As, Cu, Ni, Pb, Cd, Cr, Zn. *** Kun første halvår.

Akkreditering

For at sikre høj kvalitet af overvågningsprogrammet har DMU-ATMI igennem de seneste år arbejdet hen mod en akkreditering af samtlige prøveopsamlinger og analyser. I 1999 blev DMU-ATMI således akkrediteret under EN45001 til at foretage akkrediterede opsamlinger og analyser for en stor del af de komponenter, der måles i forbindelse med NOVA 2003. Disse komponenter er markeret med "XX" i Tabel 1.2. Akkrediteringen har i forbindelse med NOVA 2003 været gældende for sidste halvdel af 1999. I tidligere årsrapporter fra Vandmiljøplanens Overvågningsprogram og NOVA 2003 blev resultater fra DMU-ATMI's deltagelse i interkalibreringer præsenteret for at dokumentere kvaliteten af måleprogrammet m.m. Disse data bliver præsenteret andetsteds i forbindelse med den løbende kontrol af akkreditering og er derfor ikke medtaget i denne rapport.

ACDEP-modellen

Til dette års rapportering er der udført omfattende modelberegninger af luftkoncentrationer og depositioner med DMU-ATMI's model kaldet ACDEP (*Atmospheric Chemistry and Deposition*). Formålet er via sammenstilling af måleresultater og modelberegninger at opnå et bedre grundlag for vurdering af kvælstofbelastningen primært til de danske hav- og fjordområder. ACDEP-modellen er en trajektoriemodel, hvor luftpakker følges under fire døgns transport frem til et net af gitterfelter på 30 km x 30 km, som er repræsenteret vha. såkaldte receptorpunkter. Under transporten modtager luftpakkerne emissioner, der foregår spredning af forureningen i vertikal retning, forbindelserne omdannes kemisk og fjernes ved våd- og tørdeposition. Modellen udregner således koncentrationer, tør- og våddepositions-mængder til nettet af gitterfelter. Disse dækker de danske hav- og fjordområder samt landområder. Tidsopløsningen på beregningerne er seks timer, men i denne sammenhæng udregnes et gennemsnit for hvert døgn. Alt i alt foretages beregninger af lidt over 340.000 trajektorier til de 233 gitterfelter for hvert beregningsår. En detaljeret gennemgang af ACDEP-modellen og den anvendte beregningsprocedure er givet i Hertel et al. (1995), og en beskrivelse på dansk er givet i Ellermann et al. (1996). Senere modifikationer er beskrevet i Frohn et al. (1998) og modifikationer i forbindelse med dette års beregninger præsenteres i Kapitel 5.

Meteorologiske modeldata

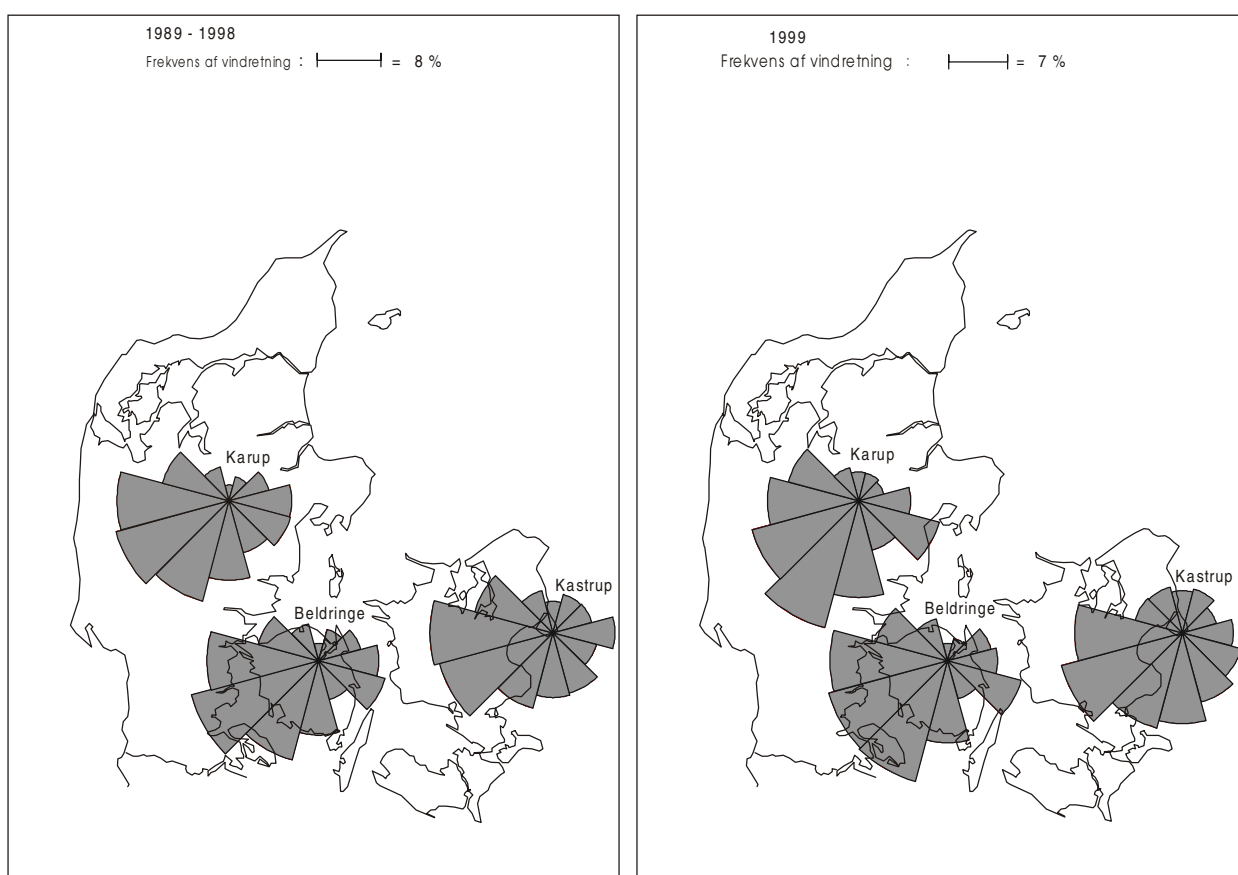
EMEP (Co-operative programme for monitoring and evaluation of the long range transmission of air pollutants in Europe) fremstiller ikke længere de meteorologiske datasæt, som hidtidig er blevet anvendt som basis for modelberegningerne. Derfor er beregningerne for 1999 blevet udført med meteorologiske data baseret på Eta-modellen fra DMU-ATMI's Thor system (Brandt et al. 2000). Eta-data foreligger med betydelig højere geografisk og tidslig opløsning end de tidligere anvendte EMEP-data. Betydningen af denne ændring diskuteres i Kapitel 5.

1.2 Vejret i 1999

Da de meteorologiske forhold spiller en afgørende rolle for niveauer og depositioner af luftforureningskomponenterne opsummeres her nogle nøgletal for de meteorologiske forhold i 1999. Forholdene i 1999 sammenlignes med forholdene i den hidtidige overvågningsperiode; dvs. i perioden fra 1989 til 1998.

Vindretning

En af de vigtigste parametre for niveauerne af luftforurening er vinden, som bestemmer hvor luftmasserne kommer fra. For baggrundsområder i Danmark ses typisk høj luftforurening ved transport af luft til Danmark fra den nordlige del af det europæiske kontinent, hvor emissionerne af luftforurening er høj. Figur 1.3 viser vindroser for Kastrup, Karup og Beldringe lufthavne. Af figuren ses, at vinden i 1999 har været mere præget af sydvestlig vindretning end gældende for resten af perioden 1989-1998, hvilket kunne indikere større transport af luftforurening til Danmark fra den nordlige del af det europæiske kontinent. Bemærk dog at vindretningen i Danmark kun giver et fingerpeg om oprindelse af luftmasserne, idet transporten af luftforurening er et resultat af luftmassernes samlede bevægelser igennem de døgn, som det har taget at transportere luftforureningen til Danmark.

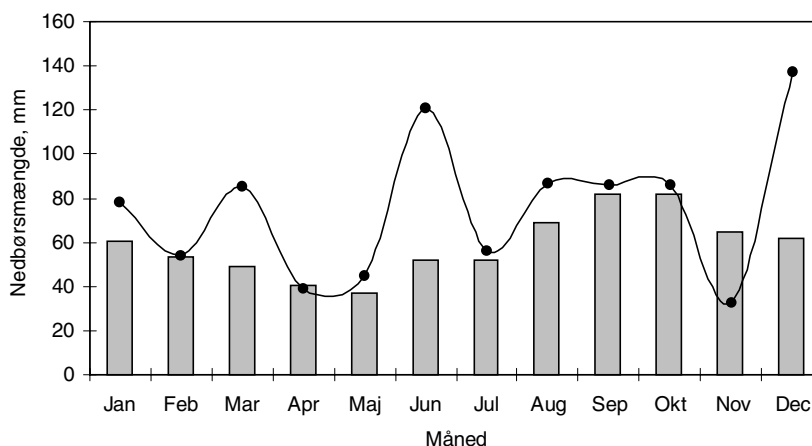


Figur 1.3 Vindroser for Karup, Beldringe, og Kastrup . Til venstre vises gennemsnit for perioden 1989-1998, mens der til højre vises gennemsnit for 1999. Beregningerne er foretaget for vindhastigheder større end 1,5 m/s. Måling af vindretning er udført af Danmarks Meteorologiske Institut (DMI).

Nedbør

Størstedelen af depositionen af kvælstof- og svovlforbindelserne foregår i form af nedbør, idet regndråber er meget effektive til at optage luftforurening, som derved deponeres med nedbøren. I Figur 1.4 vises den månedlige nedbørsmængde opgjort som gennemsnit for Jylland og Øerne. Som det ses ligger nedbørsmængden over land i 1999 for de fleste måneder over gennemsnittet for 1989-1998, hvilket har givet anledning til en høj deposition af kvælstof i 1999 set i for-

hold til de seneste år (se Kapitel 2). Den samlede nedbørsmængde på 905 mm er også historisk høj, idet det er den største nedbørsmængde målt siden de landsdækkende meteorologiske målinger begyndte i 1874 (Cappelen 2000a). Fordelingen af nedbøren på de forskellige måneder var også usædvanlig, idet juni og december er de næst vådeste nogensinde registreret, mens november, der normalt er en måned med stor nedbørsmængde, blev en meget tør måned (Cappelen 2000a). Bemærk at disse nedbørsmålinger kun er repræsentative over land, og at de meteorologiske data, som indgår i modelberegningerne, indikerer, at nedbøren til f.eks. den danske del af Nordsøen ikke var exceptionelt høj.



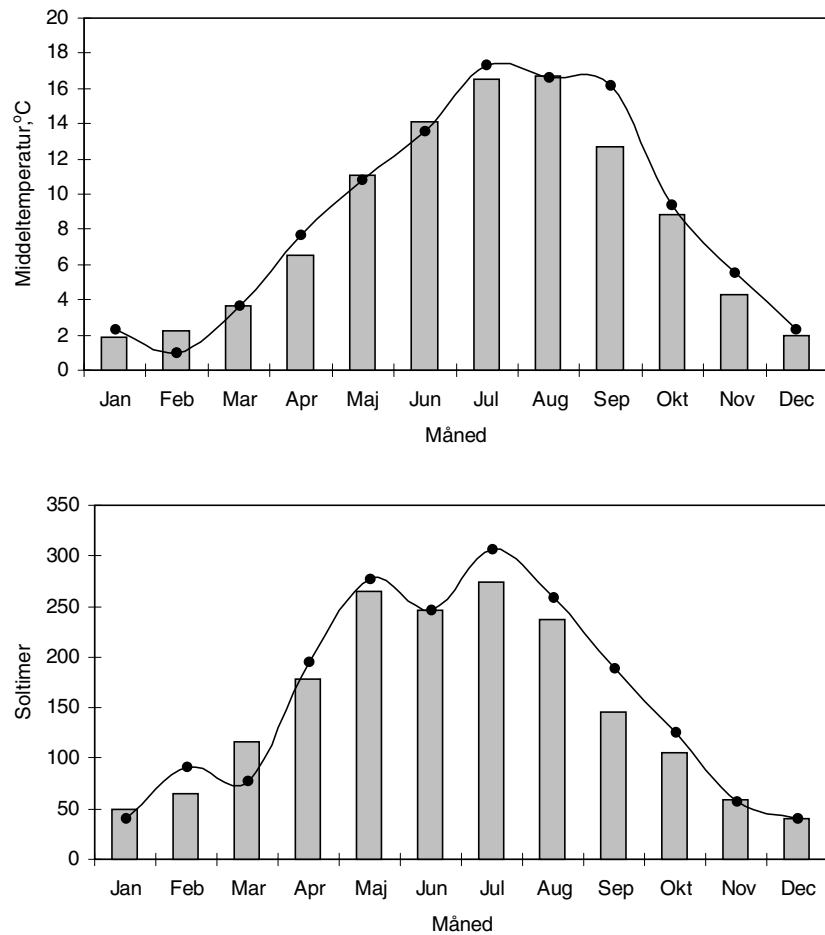
Figur 1.4 Månedlig nedbør for Jylland og Øerne (areal vægtet gennemsnit); kurven angiver resultater for 1999, mens søjlerne angiver middel for 1989-1998. Data er fra Cappelen (2000b).

Temperaturen og solindstrålingen

Koncentrationsniveauer og depositions-mængder afhænger endvidere også af faktorer som temperatur og solindstråling; f.eks. er:

- hastigheden af de kemiske omdannelser i atmosfæren afhængig af temperaturen,
- sollyset igangsætter for mange af de kemiske reaktioner i atmosfæren,
- emission af ammoniak fra husdyrgødning afhængig af temperaturen,
- deposition af luftforureningskomponenter afhængig af planternes aktivitet og dermed indirekte af temperatur og solindstråling.

I Figur 1.5 vises månedlig gennemsnitstemperatur og antallet af soltimer. Det ses, at såvel middeltemperatur som antal soltimer for 1999 ligger over gennemsnittet for 1989-1998, hvilket er usædvanligt, når det tages i betragtning, at 1999 var meget regnfuld. 1999 ligger også i den høje ende når temperaturen og soltimerne vurderes i længere perspektiv; således blev 1999 det femte varmeste og fjerde solrigeste, siden målingerne begyndte (Cappelen 2000a).



Figur 1.5 Månedlig gennemsnitstemperatur (øverst) og antal soltimer for Jylland og Øerne (nederst; areal vægtet gennemsnit); Kurverne angiver resultater for 1999, mens søjlerne angiver middel for 1989-1998. Data er fra Cappelen (2000b).

Orkanen

Endnu en exceptionel hændelse skal fremhæves vedrørende vejret i 1999 og det er orkanen d. 3/12. Orkanen har for de fleste forbindelser ikke stor betydning for koncentrationsniveauer og depositioner på årsplan, men den har fået stor praktisk betydning for overvågningsprogrammet. Den kraftige vind ødelagde praktisk talt målestationen ved Lindet, idet størstedelen af træerne i området omkring målestationen væltede og ødelagde en stor del af måleudstyret. Omgivelserne for målestationen er derfor blevet radikalt ændrede, hvilket dog ikke har den store betydning i forbindelse med NOVA 2003, hvor der kun anvendes resultater fra prøveopsamling på "friland" f.eks. prøveopsamlere, som er placeret i tårn over trækroneerne. På de øvrige stationer skete kun mindre skader, men en del af udstyret blev sat ud af drift under og i perioden efter orkanen.

1.3 Årets rapport

Denne rapport dækker, som allerede nævnt, resultater for målinger og modelberegninger af koncentrationsniveauer og depositioner af luftforurenende kvælstof-, fosfor- og svovlforbindelser. For at lette læsningen af rapporten er en del figurer og tabeller flyttet om til bilag.

<i>Kvælstof</i>	Kapitel 2 præsenterer måleresultater for 1999 af luftkoncentrationer samt tør- og våddepositioner af de kvælstofforbindelser, som er vigtigst i forbindelse med eutrofiering og forsurening. Endvidere inddrages resultater fra målestationer fra perioden 1989-1998 ved vurdering af sæsonvariationer og mulige udviklingstendenser i koncentrationer og våddepositioner. Endelig vises resultater for den samlede deposition til hav- og landområder.
<i>Fosfor</i>	Det atmosfæriske bidrag af fosfor til danske farvandsområder blev vurderet i forbindelse med rapporteringen for 1996 (Ellermann et al. 1997). Kapitel 3 giver en opdatering af udviklingen siden 1996.
<i>Svovl</i>	Kapitel 4 præsenterer resultaterne fra måling af svovldioxid og partikulært svovl i 1999. Derudover vurderes udviklingstendenser og sæsonvariationer i koncentrationer og våddeposition for svovlforbindelserne for perioden 1989-1999.
<i>Modelresultater</i>	Kapitel 5 beskriver ACDEP-beregningerne af depositioner for de danske hav- og fjordområder. I kapitlet diskuteres den geografiske fordeling af koncentrationen af de forskellige kvælstof- og svovlforbindelser i 1999. Igennem kapitlet fokuseres der på depositionen til de danske havområder, men resultater for deposition til land omtales også.
<i>Kvælstofbelastning fra atmosfæren</i>	Hovedkonklusionerne fra rapporten opsummeres i Kapitel 6, hvor der navnlig fokuseres på bestemmelsen af atmosfærens kvælstofbelastning af danske havområder.
<i>Bilag</i>	Bilag 1 viser figurer med måleresultater med relevans for Kapitel 2 og 4. Bilag 2 viser tabeller for beregnede årlige tør-, våd- og totaldepositioner til de danske underfarvande for 1999.

2 Atmosfærisk deposition af kvælstof - måleresultater

I dette kapitel præsenteres måleresultater for 1999 fra de seks hovedstationer (Anholt, Tange/Sepstrup Sande, Keldsnor, Frederiksborg, Ulborg og Lindet) og målestationer ved Pedersker og Lille Valby (se Figur 1.2). I kapitlet præsenteres først resultater fra måling af luftens indhold af de vigtigste eutrofierende kvælstofforbindelser dvs. ammoniak, partikelbundet ammonium, sum-nitrat (summen af salpetersyre og partikelbundet nitrat) og kvælstofdioxid. Herefter vises resultaterne fra beregning af tørdepositionen af kvælstof foretaget ud fra de aktuelle målinger. Endelig vises resultater fra måling af våddeposition af kvælstofforbindelserne og den samlede deposition af kvælstof ved målestationerne på Anholt og Ulborg estimeres. Ud fra dette års resultater og tidligere rapporterede resultater for perioden 1989-1998 diskuteres årstidsvariationer og udviklingstendenser i koncentrationsniveauer og depositions-mængder baseret på statistiske analyser. Da datamaterialet er stort, vises kun illustrationer af udvalgte resultater; primært fra målestationerne på Anholt og ved Keldsnor og Tange/Sepstrup Sande. Udvalgte dele af måleresultaterne fra de øvrige målestationer findes i Bilag 1.

2.1 Koncentrationer af kvælstofgasser og partikelbundet kvælstof

Filterpack

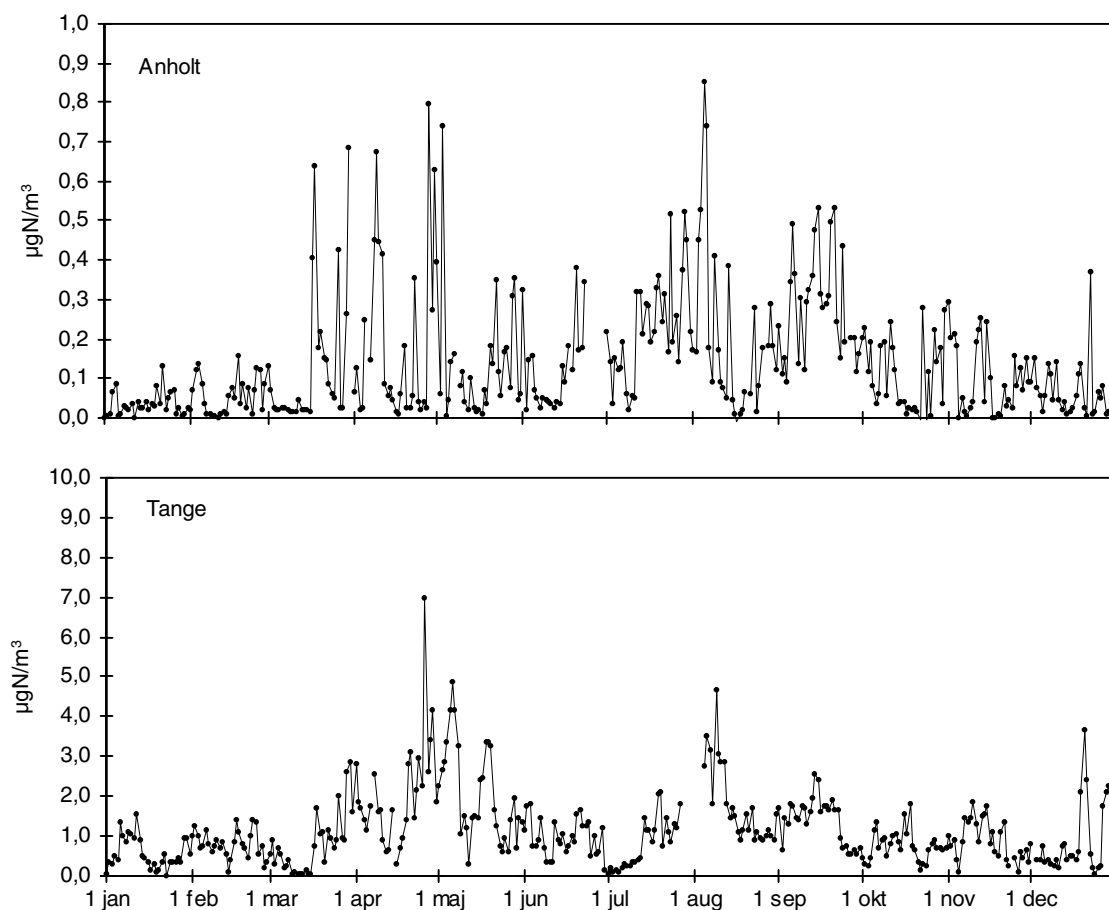
På hovedstationerne måles døgnmiddelværdier af luftens indhold af ammoniak, partikelbundet ammonium og sum-nitrat vha. filterpackmetoden. Ved denne metode opsamles luftens indhold af en række forskellige kemiske forbindelser selektivt på en serie filtre; først et partikelfilter og derefter tre filtre imprægneret med hhv. natriumfluorid, kaliumhydroxid og oxalsyre (for flere detaljer se Ellermann et al. 1996).

Sum-nitrat

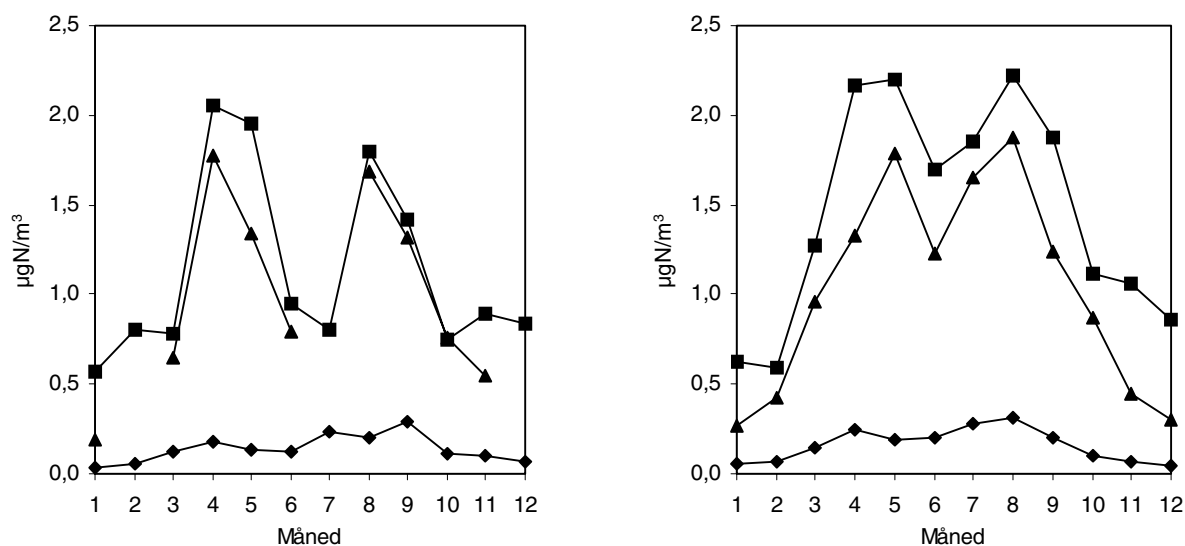
Metoden kan ikke på tilfredsstillende vis separere gasformig salpetersyre og partikelbundet nitrat. Derfor angives disse samlet under betegnelsen sum-nitrat. Fordelingen mellem salpetersyre og partikelbundet nitrat varierer med årstiden og de meteorologiske forhold, men i Danmark udgør salpetersyre mindre end 20% af sum-nitrat (baseret på data fra Hovmand et al. 1993). Den manglende adskillelse mellem de to forbindelser giver et mindre detaljeret billede af kvælstoffordelingen i den nedre atmosfære (se Afsnit 2.2), men af ressourcemæssige årsager har der ikke været bedre metoder til rådighed.

Kvælstofdioxid

På Anholt og Ulborg måles endvidere døgnmiddelværdier af luftens indhold af kvælstofdioxid. På Anholt udføres dette vha. NO_2 -opsamlere, der er baseret på opsamling af kvælstofdioxid på et glasfilter imprægneret med en opløsning af iodid og arsenit (for flere detaljer se Ellermann et al. 1996). Ved Ulborg og Lille Valby udføres målingerne vha. NO_x -monitorer baseret på kemiluminescens teknik.



Figur 2.1 Døgnmiddelværdier af koncentrationen af ammoniak målt på Anholt og ved Tange i 1999. Bemærk af y-aksens skala er en faktor ti større for Tange end for Anholt.



Figur 2.2 Månedsmiddelkoncentrationer af ammoniak i 1999 (venstre) og gennemsnit for perioden 1989-1999 (højre) beregnet ud fra målinger på Anholt ($\diamond$), ved Tange ($\blacksquare$) og ved Keldsnor ($\blacktriangle$). For 1999 er der kun medtaget måneder med mere end 25 døgnmålinger af hensyn til repræsentativitet.

Udviklingstendensen for årsmiddelværdierne af ammoniakkoncentrationen for perioden 1989 til 1999 er illustreret i Figur 2.3 for målestationerne på Anholt og ved Tange og Keldsnor og angivet i Tabel 2.2 for alle hovedstationerne. Som det fremgår af Figur 2.3, er der ligesom for døgnmiddelværdierne store variationer fra målestation til målestation. For Anholt er årsmiddelværdierne uændrede, ved Tange observeres et fald og ved Keldsnor måles stor variation fra år til år med maksima i 1993 og 1997 og minima i 1991, 1995 og 1998. Ved Frederiksborg måles et uændret niveau omkring $0,3 \mu\text{g N/m}^3$ igennem hele perioden. Årsmiddelværdien ved Ulborg har udvist en stigning fra $0,48 \mu\text{g N/m}^3$ i 1989 til $0,81 \mu\text{g N/m}^3$ i 1996, hvorefter der er et fald igen de seneste to år. Årsmiddelværdierne ved Lindet viser ingen tendens, men der er store forskelle fra år til år. Det skyldes til dels, at målestationen er flyttet i løbet af perioden. Det generelle billede af årsmiddelværdierne er derfor, at der er stor variation fra år til år og at der observeres såvel små stigninger som små fald i ammoniakkoncentrationen i perioden 1989-1999; dog er det kun ved Tange, der registreres en signifikant ændring.

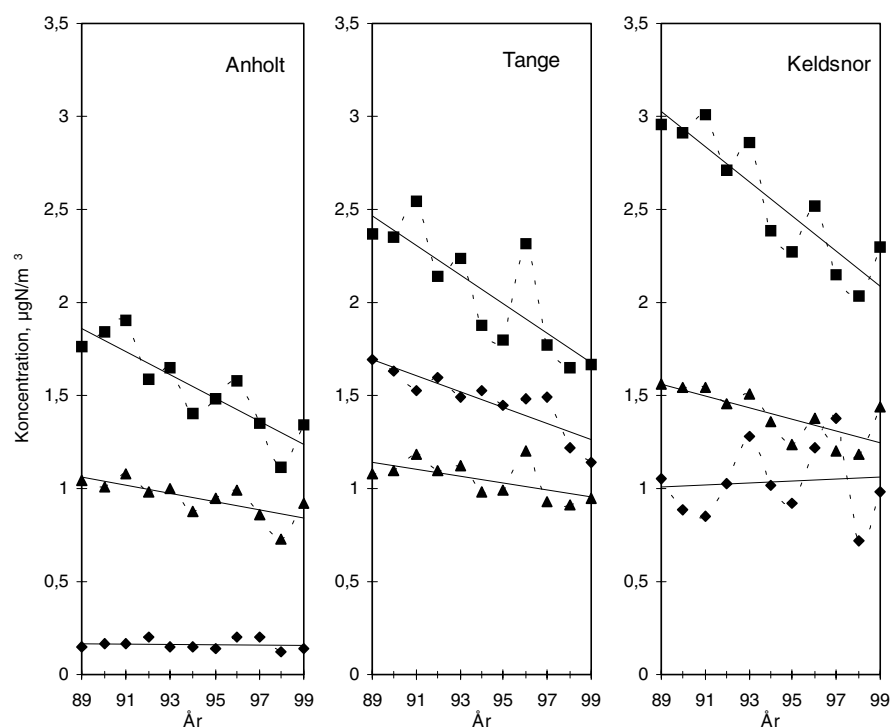
Tabel 2.2 Ændringer i luftens indhold af ammoniak, ammonium og sum-nitrat i perioden 1989-1999. Værdierne angiver relativt fald i % over måleperioden (11 år) beregnet på basis af lineær regression og med udgangspunkt i værdierne for 1989. Signifikansniveauer er beregnet på basis af T-test (Woodward et al. 1993). Værdier angivet med *** indikerer signifikansniveau på >99%, ** angiver signifikansniveau på >95%, mens værdier angivet med * ikke er signifikante.

	NH ₃	NH ₄ ⁺	Sum-nitrat
Ulborg	14*	-32***	-13*
Tange	-26***	-33***	-17**
Lindet#		-35***	-26***
Anholt	-10*	-35***	-21***
Frederiksborg	-13*	-38***	-23***
Keldsnor	5*	-32***	-20***

#Placeringen af Lindet er ændret i perioden og det har påvirket ammoniakkoncentrationen og den er derfor ikke medtaget her.

Lokale kilder til ammoniak

De store variationer mellem målestationerne viser, at udviklingstendenserne primært er bestemt af de lokale forhold, herunder navnlig landbrugspraksis i området. Der kan derfor ikke konkluderes noget om en mulig udvikling for hele Danmark. I måleperioden fra 1989-1999 er der sket en lille reduktion i emissionerne af ammoniak i Danmark (ca. 13%, baseret på Vestreng & Stören 2000) og i resten af Europa (ca. 18%, baseret på Vestreng og Stören 2000). Alene ud fra reduktionen i emissionerne af ammoniak kunne en svag nedgang derfor have været forventet. Da reduktion af navnlig svovlemissionerne vil kunne ændre omdannelseshastigheder for ammoniak i atmosfæren er det imidlertid ikke sikkert, at den nuværende lille reduktion i ammoniakemissionerne vil komme til udtryk. Endvidere er variationerne i årsmiddelkoncentrationerne store fra år til år, hvilket gør det vanskeligt at bestemme udviklingstendenserne.



Figur 2.3 Årsmiddelniveauerne af koncentrationerne af ammoniak (♦), partikelbundet ammonium (■) og sum-nitrat (▲) på målestationerne på Anholt, ved Tange og ved Keldsnor. Tendenslinier er beregnet ved simpel lineær regression.

Partikulært bundet ammonium

Døgnmiddelværdier

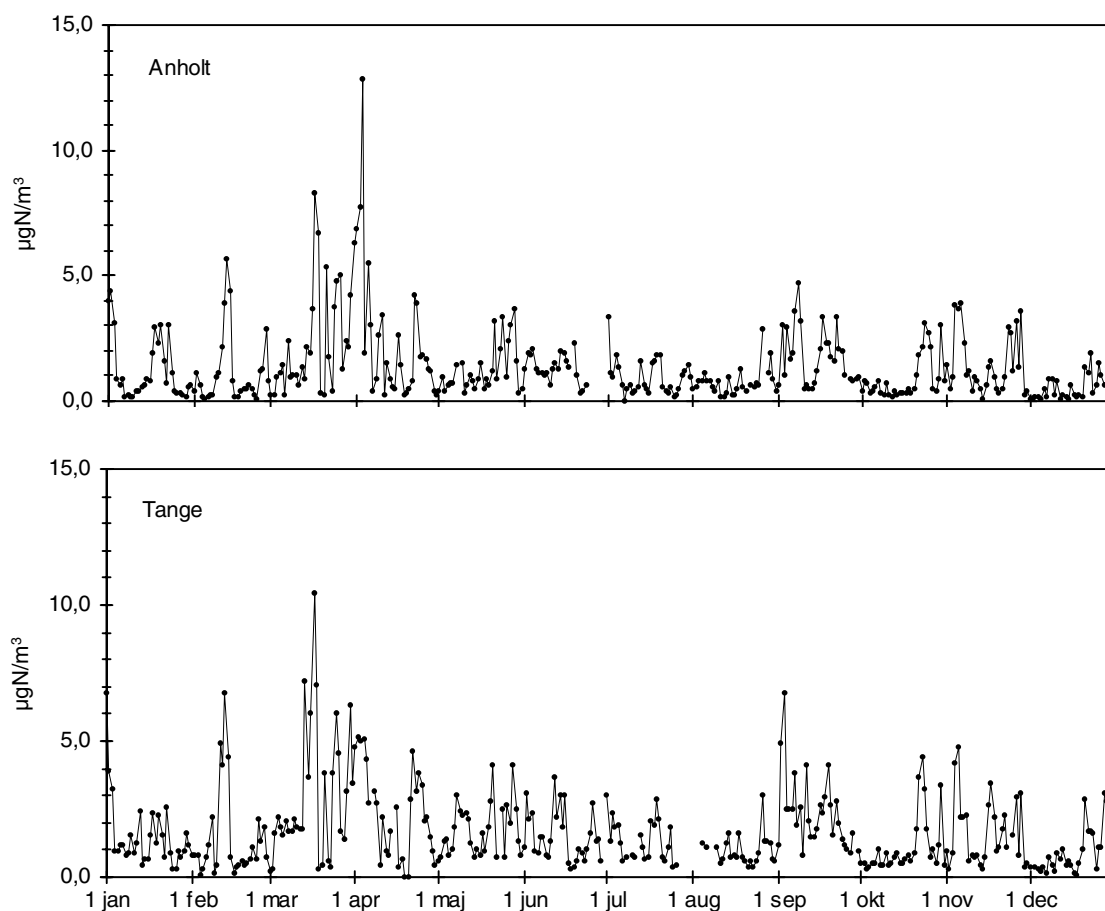
Ammoniak deponerer eller omdannes i atmosfæren til forskellige partikelbundne ammoniumsalte via reaktion mellem ammoniak og sure partikler; oftest sulfat- og nitratholdige partikler. Døgnaværdierne for luftens indhold af partikelbundet ammonium ses i Figur 2.4 for Anholt og Tange. I modsætning til resultaterne for ammoniak, som er kilden til ammonium, viser døgnmiddelværdierne en tydelig tidslig korrelation mellem hovedstationerne; dvs. episoder med høje døgnmiddelværdier falder i reglen samtidigt på alle stationerne. Koncentrationerne ligger også på samme niveau for de forskellige målestationer. Årsagen til denne jævne geografiske fordeling og den tidslige korrelation er primært, at de ammoniumholdige partikler deponeres langsomt og at partiklernes levetid i atmosfæren derfor er lang. Partiklerne kan transporteres med luften over store afstande, hvilket bevirker at lokale forskelle i emissionerne af ammoniak udviskes af luftmassernes opblanding. Den lange levetid, og dermed transportvej, bevirker også at størstedelen af den målte ammonium transporteres til Danmark; hovedsageligt fra den nordlige del af det europæiske kontinent, hvor de store kildeområder for ammoniak findes (Hovmand et al. 1993; Skov et al. 1994, Frohn et al. 1998). Grundet de høje danske ammoniakemissioner spiller lokale kilder dog også en vigtig rolle. Da dannelse af partikulært ammonium oftest involverer sulfat- og nitratholdige partikler ses endvidere en stærk korrelation mellem sulfat- og ammoniumindholdet og ammonium- og nitratinholdet i atmosfæren.

Koncentrationsniveauer

Den jævne geografiske fordeling af koncentrationerne af partikulært ammonium fremgår ligeledes af årsmiddelværdierne og 98%-fraktilerne for de seks hovedstationer. Årsmiddelværdierne varierer mellem 1,3 og 2,4 $\mu\text{g N/m}^3$ og 98%-fraktilen mellem 4,5 og 7,7 $\mu\text{g N/m}^3$ (se Tabel 2.1). På trods af den jævne geografiske fordeling observeres en syd-nord-gående gradient i årsmiddelværdierne med højest koncentration på den sydligste målestation ved Keldsnor (2,3 $\mu\text{g N/m}^3$) og lavest koncentration på den nordligste målestation på Anholt (1,3 $\mu\text{g N/m}^3$). Dette afspejler igen langtransport.

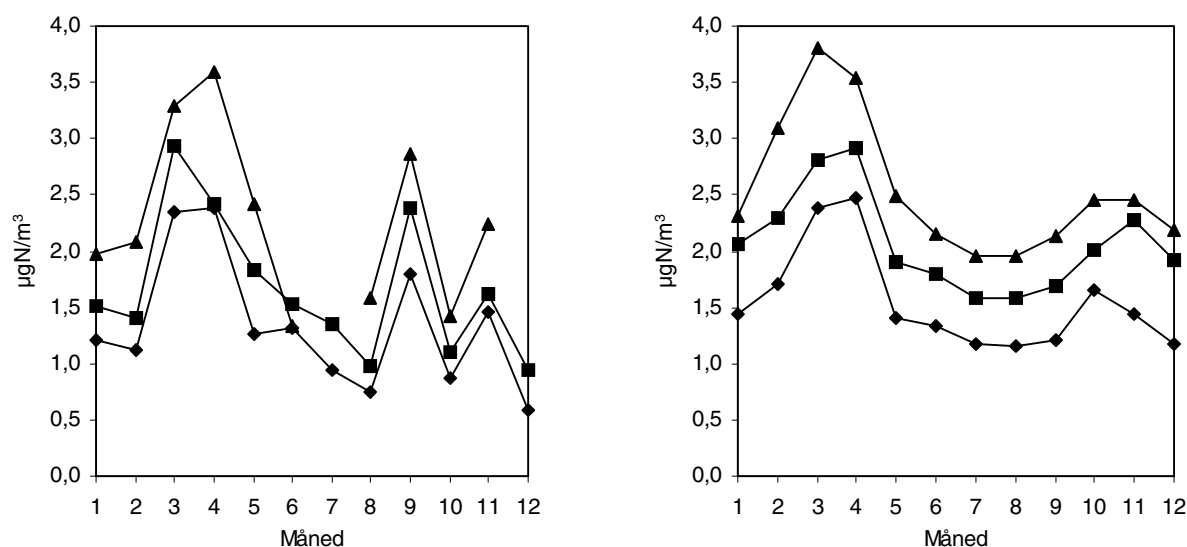
Sæsonvariation

Månedsmiddelværdierne, som gennemsnit for hele måleperioden 1989-99 af luftens indhold af partikulært bundet ammonium viser en sæsonvariation med maksimum i det tidlige forår (se Figur 2.5 og Bilag 1, Figur 8). På figuren ses endvidere, at partikulært bundet ammonium har et lokalt maksimum i oktober, som dog er meget tydeligt i 1999. Den tidlige variation kan forklares med sæsonvariationen i emissionerne af ammoniak i den nordlige del af det europæiske kontinent og med at omdannelsen af ammoniak til ammonium er associeret med tilstedeværelsen af sure partikler. Endvidere har de meteorologiske forhold stor betydning, idet de høje koncentrationer af partikulært ammonium er forbundet med langtransport.



Figur 2.4 Døgnmiddelværdier af partikulært bundet ammonium målt på Anholt og ved Tange i 1999.

Årsmiddelværdierne for perioden 1989-1999 af partikulært ammonium for målestationerne på Anholt, ved Tange og ved Keldsnor vises i Figur 2.3. På alle hovedstationerne observeres et signifikant fald i perioden 1989-1999 på 30-40 % (Tabel 2.2). Variationen fra år til år afhænger selvfølgelig af de meteorologiske forhold, men det observerede fald i årsmiddelværdierne for ammonium følger faldet, som er estimeret i EMEP's emissionsopgørelser for ammoniak i den nordlige del af det europæiske kontinent. Emissionen af ammoniak i Holland og Tyskland er således ifølge opgørelserne faldet med h.h.v. ca. 40 % og 21 % fra 1989 til 1997 (Vestreng & Stören 2000). I Holland øges ammoniak emissionen dog betydeligt igen i 1998 (Vestreng & Stören 2000). For Danmark ses, som tidligere nævnt, et lidt mindre fald i ammoniakemissionerne. En anden årsag til faldet i ammoniumkoncentrationen kan være den faldende sulfatkoncentration over Europa, der medfører, at der er færre sure partikler i luften. Herved bliver omdannelsen af ammoniak til ammonium langsommere og en større del af ammoniakken deponerer tæt ved kilden. Det er på nuværende tidspunkt ikke muligt at afgøre den relative vigtighed af disse forklaringer. Hertil vil det være nødvendigt med en betydeligt bedre beskrivelse af de komplekse atmosfæriske processer dels ved mere intensive feltnmålinger og dels ved i ACDEP-modellen at inkludere et mere detaljeret skema for partiklernes kemiske omdannelser.



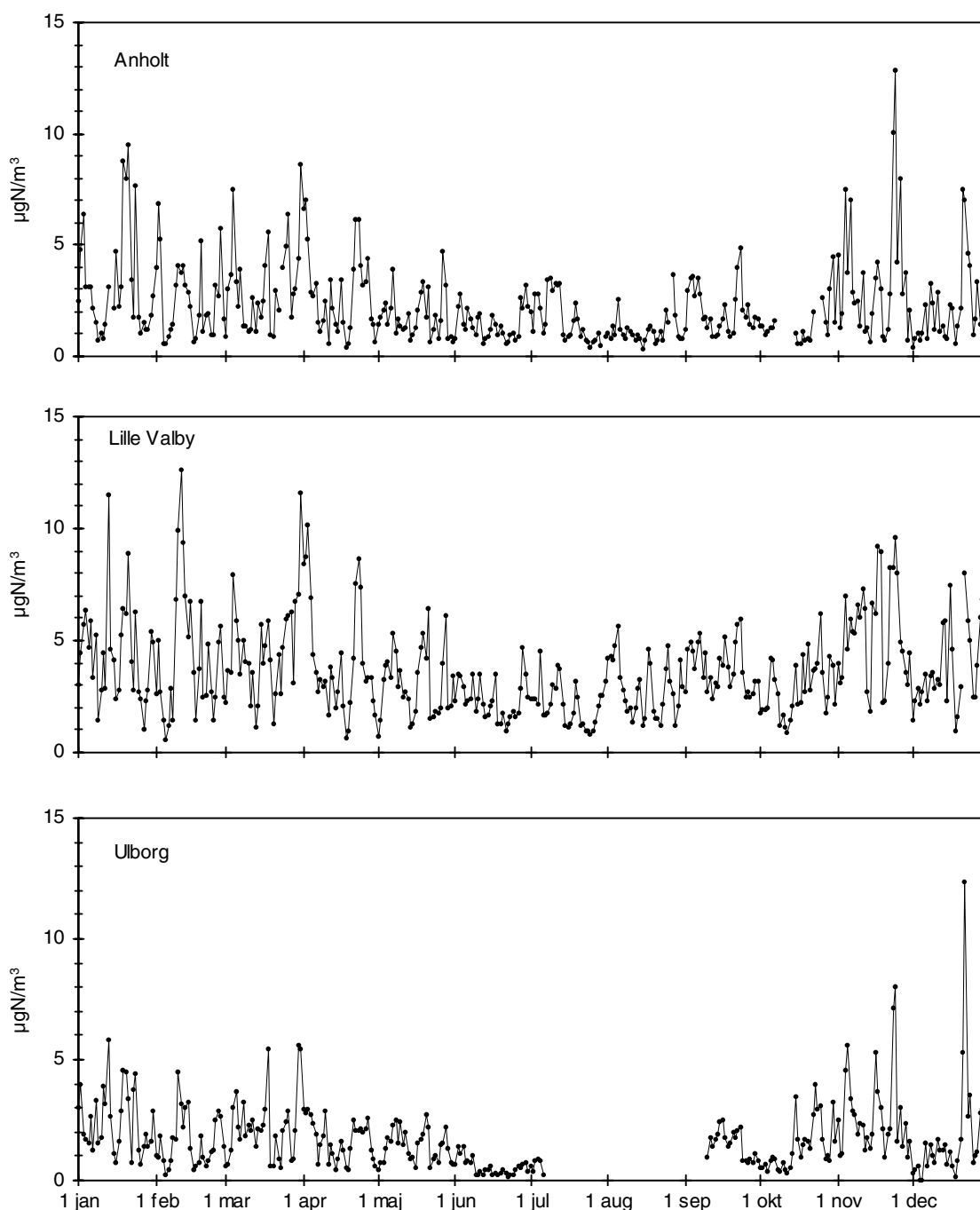
Figur 2.5 Månedsmiddelværdier for indholdet af partikulært bundet ammonium i 1999 (venstre) og gennemsnit for perioden 1989-1999 (højre) beregnet ud fra målinger på Anholt (♦), ved Tange (■) og ved Keldsnor (▲). For 1999 er der kun medtaget måneder med mere end 25 døgnmålinger af hensyn til repræsentativitet.

Kvælstofdioxid

Koncentrationsniveauer

Kvælstofdioxid findes i de relativt høje koncentrationer i Danmark set i forhold til de øvrige eutrofierende kvælstofforbindelser. Alligevel bidrager den kun lidt til kvælstofbelastningen af havområder, da den stort set ikke er vandopløselig. Til gengæld er dens deposition til vegetation over land vigtig. I 1999 blev kvælstofdioxid målt på Anholt, ved Ulborg og ved Lille Valby. Døgnmiddelværdierne viser i store træk det samme tidslige mønster på Anholt og ved Lille Valby, ligesom koncentrationerne ligger på samme niveau (se Figur 2.6).

Koncentrationerne målt ved Ulborg følger koncentrationerne på de to andre stationer undtagen for sommermånederne, hvor koncentrationen er betydeligt mindre end på de to andre målestationer. De sammenlignelige koncentrationsniveauer for Anholt og Lille Valby fremgår også af årsmiddelværdierne og 98%-fraktilen (se Tabel 2.1). De lidt højere niveauer ved Lille Valby skyldes påvirkning fra lokale emissioner fra Roskilde og København (Skov et al. 1997). Ved Ulborg måles en koncentration, som er ca. 50 % lavere end for Anholt og Lille Valby, hvilket primært skyldes de lave koncentrationer i sommermånederne.

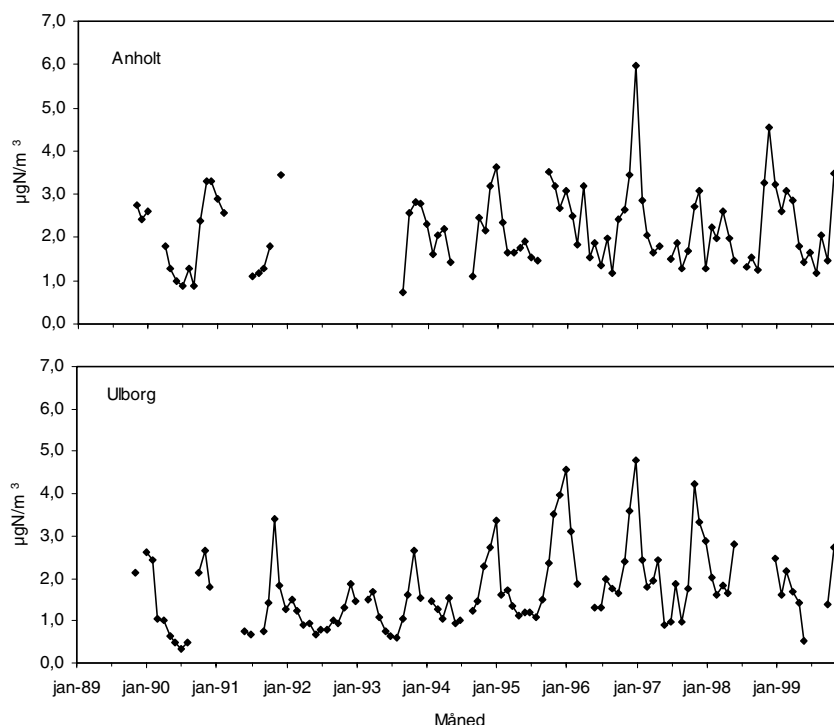


Figur 2.6 Døgnmiddelkoncentration af kvælstofdioxid på målestationerne på Anholt, ved Ulborg og ved Lille Valby i 1999. Målingerne på Anholt er foretaget med NO_2 -apparat og ved Ulborg (over skoven i 36 m højde) og Lille Valby med monitor. Målingerne på Lille Valby er udført i forbindelse med det Landsdækkende Måleprogram (Kemp & Palmgren 2000).

Månedsmiddelkoncentrationerne af kvælstofdioxid i perioden 1989-1999 viser, at koncentrationen er højest i vinterhalvåret og lavest i sommerhalvåret (se Figur 2.7). Der er flere årsager til sæsonvariationen:

- Sæsonvariation af emissionerne af kvælstofdioxid med høje emissioner om vinteren i forbindelse med fyringssæsonen. Kvælstofoxider ($\text{NO}_x = \text{NO} + \text{NO}_2$) emitteres fra forbrændingsprocesser, primært som kvælstofmonoxid. Denne reagerer hurtigt med ozon under dannelse af kvælstofdioxid, således at kvælstofoxiderne i atmosfæren i praksis findes som kvælstofdioxid.
- Kvælstofdioxid omdannes via fotokemiske processer til salpetersyre (HNO_3) i atmosfæren. Denne proces er hurtigst om sommeren, hvor solindstrålingen er størst, hvilket betyder at kvælstofdioxid nedbrydes hurtigst om sommeren.
- Sæsonvariation i den såkaldte blandingshøjde, som udtrykker den højde, hvortil forureningen hurtigt opblandes (typisk indenfor 20 til 40 minutter). Blandingshøjden afhænger bl.a. af solens opvarmning af jordoverfladen og er derfor gennemgående væsentlig større om sommeren end om vinteren. Om vinteren vil lokale forureningsudslip derfor i større udstrækning ophobes tæt ved jordoverfladen, hvilket bl.a. kan føre til højere koncentrationer af kvælstofoxider sammenlignet med sommersituationen.

Af disse punkter spiller sæsonvariation i emissionerne formentligt den væsentligste rolle.



Figur 2.7 Månedsmiddelkoncentrationer af kvælstofdioxid målt på Anholt og ved Ulborg fra 1989 til 1999. Bemærk at data for 1999 ved Ulborg er målt med monitor. Øvrige data er målt med NO_2 -opsamlere.

År til år variation

Datamaterialet for kvælstofdioxid på målestationerne på Anholt og ved Ulborg er begrænset. Derfor er det på nuværende tidspunkt ikke muligt at vurdere den tidslige udvikling statistisk. Dog ses en svag tendens til en stigning i kvælstofdioxid koncentrationen (se Figur 2.7).

Sum-nitrat

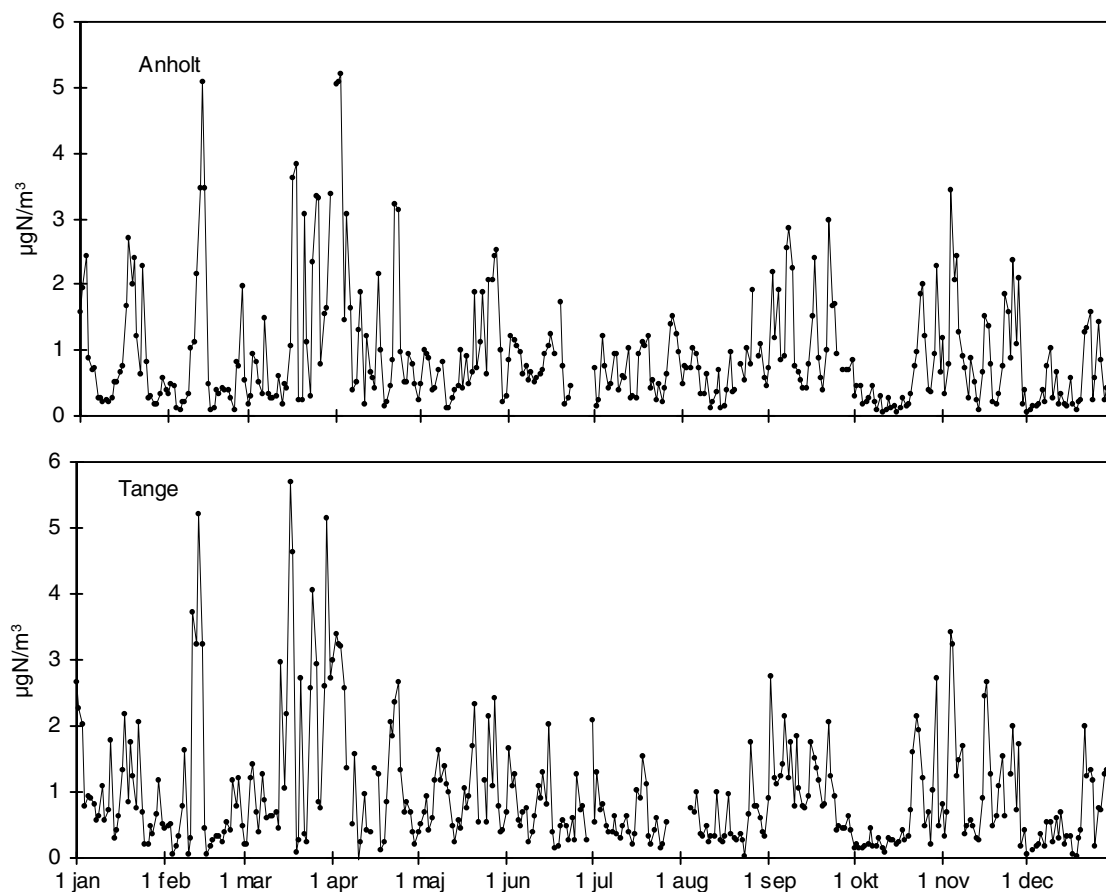
Døgnmiddelværdier

Sum-nitrat er som nævnt defineret som summen af salpetersyre i gasfase og nitrat på partikelform. Hovedparten af sum-nitrat udgøres dog af partikulært bundet nitrat, således at de tidslige variationer og koncentrationsniveauer primært afspejler forholdene for partikulært nitrat. Døgnmiddelværdierne af sum-nitrat i 1999 vises i Figur 2.8 for Anholt og Tange. En ensartet tidslig variation og ens koncentrationsniveauer kan observeres, hvilket indikerer en jævn fordeling af sum-nitrat i det danske baggrundsområde. Ved sammenligning af døgnmiddelværdier af partikulært ammonium med de tilsvarende værdier for sum-nitrat ses den samme tidslige variation. Baggrunden er, at den målte sum-nitrat og den partikulært bundne ammonium er knyttet til partikler i de samme luftmasser. Den jævne fordeling af sum-nitrat i Danmark skyldes derfor, som for partikulært ammonium, at den målte sum-nitrat stammer fra langtransport fra de store emissionsområder i den nordlige del af det europæiske kontinent. For koncentrationsniveauerne af sum-nitrat ses en gradient gående fra syd mod nord se Tabel 2.1. Således observeres den højeste årsmiddelværdi for døgnmålingerne på målestationen ved Keldsnor ($1,44 \mu\text{g N/m}^3$) og en lidt lavere koncentration på Anholt ($0,92 \mu\text{g N/m}^3$). De laveste koncentrationer måles i 1999 ved Frederiksborg og Ulborg (begge $0,88 \mu\text{g N/m}^3$), hvilket er atypisk idet koncentrationerne målt ved disse målestationer plejer at være højere end koncentrationerne på Anholt.

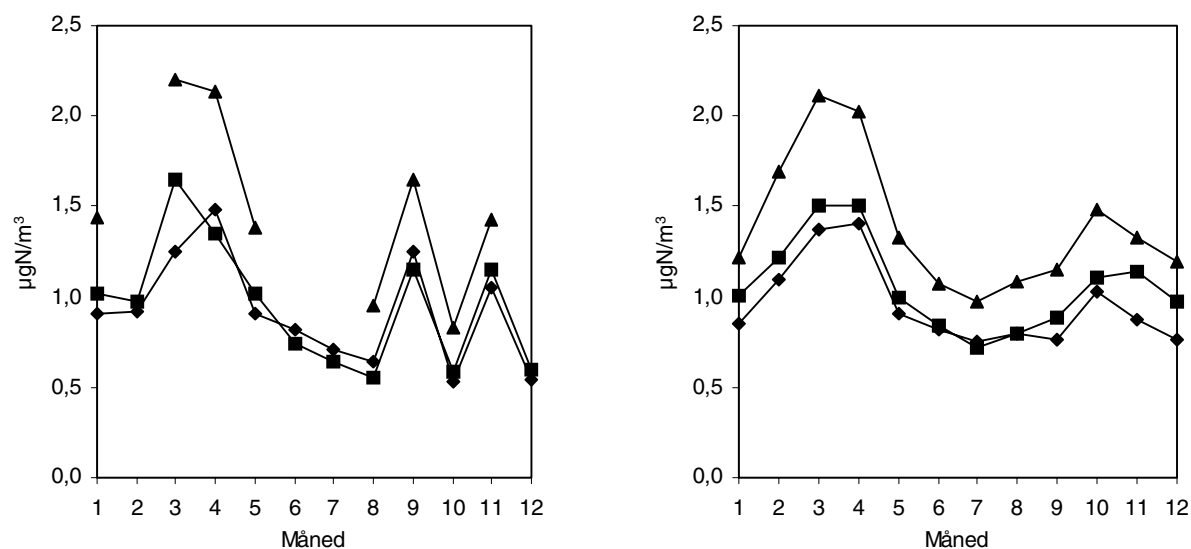
Sæsonvariationer

For sum-nitrat observeres som gennemsnit for perioden 1989-1999 en maksimumkoncentrationen i det tidlige forår og et lokalt maksimum i oktober (se Figur 2.9 og Bilag 1, Figur 9); lignende mønster som observeret for partikulært bundet ammonium. Dette er også forventeligt på basis af det tidslige sammenfald mellem døgnmiddelværdierne (se Figurerne 2.4 og 2.8) og som for ammonium var efterårsmaksimum mere markant for sum-nitrat i 1999 end generelt i perioden 1989-1999. Sum-nitrat består hovedsageligt af partikulært nitrat, og sæsonvariationen af luftens indhold af sum-nitrat beror derfor primært på variationen i dannelsen af nitratholdige partikler og langtransport af disse fra Centraleuropa til Danmark. Dannelse af nitratholdige partikler afhænger bl.a. af luftens indhold af salpetersyre, som er kilde til produktion af partikulært nitrat. Salpetersyre (HNO_3) dannes ved reaktion mellem hydroxylradikalet ($\text{HO}\bullet$) og kvælstofdioxid (NO_2), hvorefter der via forskellige kemiske processer kan dannes partikulært nitrat (se f.eks. Ellermann et al. 1996).

Ud over de forskellige kilder til dannelse af salpetersyre og partikulært nitrat spiller depositions- og transportprocesser også en vigtig rolle. En klarlægning af årsagerne bag sæsonvariationerne må derfor inkludere detaljerede modelberegninger.



Figur 2.8 Døgnmiddelværdier af sum-nitrat målt på Anholt og ved Tange i 1999.



Figur 2.9 Månedsmiddelværdier for indholdet af sum-nitrat i 1999 (venstre) og gennemsnit for perioden 1989-1999 (højre) beregnet ud fra målinger på Anholt ($\blacklozenge$), ved Tange ($\blacksquare$) og ved Keldsnor ($\blacktriangle$). For 1999 er der kun medtaget måneder med mere end 25 målinger af hensyn til repræsentativitet.

Årsmiddelværdierne for perioden 1989-1999 af sum-nitrat for målestationerne på Anholt, ved Tange og ved Keldsnor vises i Figur 2.3. På fem af hovedstationerne observeres et signifikant fald i perioden 1989-1999 på 17-26 %, se Tabel 2.2. Kun ved Ulborg er det målte fald ikke signifikant. Variationen mellem årene skyldes væsentligst variabiliteten af de meteorologiske forhold, mens årsagen til det generelle fald gennem perioden formentligt er faldet i emissionerne af kvælstofoxider i Danmark og resten af Europa. Ifølge EMEP faldt emissionen fra 1989 til 1999 med ca. 20 % i både Danmark og resten af Europa (Vestreng & Stören 2000).

2.2 Tørdeposition

Måling af tørdeposition med de nuværende tilgængelige målemetoder er vanskelig og ressourcekrævende for de fleste af de kvælstofforbindelser, der har depositions-mæssig interesse. Derfor er det i dag ikke muligt at bestemme tørdepositionen af kvælstofforbindelserne eksperimentelt i forbindelse med Det Atmosfæriske Baggrundsovervågningsprogram. Tørdepositionen af kvælstofforbindelserne beregnes derfor vha. ACDEP-modellens tørdepositionsmodul (se fx Ellermann et al. 1996, eller en mere teknisk beskrivelse i Asman et al. 1994 eller Hertel et al. 1995). Fremgangsmåden ved disse beregninger er, at tørdepositionen kan bestemmes ud fra de målte døgnmiddelværdier af luftens indhold af kvælstofforbindelser og en såkaldt depositions-hastighed. Denne afhænger af de kemiske forbindelsers fysiske og kemiske egenskaber, af jordoverfladens karakter (overflademodstanden), planternes aktivitet og de meteorologiske forhold. De meteorologiske data til beregning af tørdepositions-hastigheden er målt ved Beldringe Lufthavn (målingerne er udført af DMI).

Da tørdepositionen afhænger af mange faktorer har det været nødvendigt at forsimple beregningerne. Ved de nuværende beregninger er følgende forsimplinger anvendt:

- Kvælstofdioxid tørdeponeres på landområder hovedsageligt via optag i planter gennem planternes spalteåbninger (stomata). Ved de nuværende beregninger er hastigheden af depositionen for kvælstofdioxid antaget at være meget lav i vinterhalvåret (oktober til og med februar), hvilket giver en lav deposition i perioden, hvor planterne ikke er aktive. På linie med sidste års beregninger varieres hastigheden af depositionen også over døgnet. Således er depositions-hastigheden lavest om natten, hvor stomata åbningerne hovedsageligt er lukkede.
- For ammoniak, som både optages gennem planternes stomata og afsættes på overfladen, antages, at tørdepositions-hastigheden er uden sæsonvariation. Tørdepositionen af ammoniak afhænger også af forholdet mellem koncentrationen i luften og i planterne. Tørdepositions-beregningerne tager på nuværende tidspunkt ikke højde for disse forhold.
- Endvidere antages det at sum-nitrat deponeres som partikulært bundet nitrat. Da sum-nitrat egentligt består af summen af salpetersyre og partikulært bundet nitrat fører dette til en underestimering af tørdepositionen af sum-nitrat, idet salpetersyre deponerer

betydeligt hurtigere end partikulært bundet nitrat. For at vurdere effekten af dette er der blevet udført tørdepositionsberegninger, hvor det er antaget at ca. 17% af sum-nitrat er salpetersyre (se Af-snit 2.19). Dette viser at vi underestimerer tørdepositionen af sum-nitrat på Anholt med op til 20% og ved Ulborg med 25%. Dette medfører dog kun en forøgelse af den samlede kvælstofdeposition (se Tabel 2.8) på 2% ved Anholt og 10% ved Ulborg.

- Endelig er tørdepositions-hastigheder til land valgt således, at de svarer til en gennemsnitsoverflade for Danmark, dvs. svarende til en mark med omkring 10 cm høj plantevækst (Asman et al. 1994). Dette giver et estimat af den gennemsnitlige tørdeposition til landoverflader i baggrundsområderne, og ikke en egentlig beregning af tørdepositionen til målestationen ved Ulborg, som er placeret i et skovområde.

Tørdeposition til Kattegat

Månedlig tørdeposition

Tabel 2.3 viser den månedlige tørdeposition i 1999 og den årlige tørdeposition på Anholt fordelt på de forskellige kvælstofforbindelser. Beregningerne er foretaget med depositions-hastigheder, der repræsenterer havområder. Modelberegninger har vist, at koncentrationerne målt på Anholt er repræsentative for en stor del af Kattegat; det er derfor antaget, at det også gælder for den i Tabel 2.3 viste tørdeposition.

Tabel 2.3 Den månedlige tørdeposition af ammoniak, ammonium, sum-nitrat og den samlede tørdeposition til Kattegat i 1999. Beregningerne er foretaget på basis af målingerne på målestationen på Anholt. Kvælstofdioxiddepositionen er ikke medtaget, da den er forsvindende lille over vand. Enhed kg N/km².

	Ammoniak	Ammonium	Sum-nitrat	Samlet tørdeposition
Januar	0,9	1,7	1,3	3,9
Februar	1,5	1,3	1,1	3,9
Marts	2,5	3,2	1,7	7,4
April	4,5	3,1	1,9	9,5
Maj	2,7	1,7	1,2	5,7
Juni	2,0	1,7	1,1	4,7
Juli	3,8	1,2	0,9	5,9
August	3,1	1,0	0,9	4,9
September	4,7	2,3	1,6	8,6
Oktober	2,3	1,2	0,7	4,2
November	2,1	2,1	1,5	5,6
December	1,9	0,7	0,7	3,3
Sum	31,9	21,4	14,7	67,9

Tørdeposition af kvælstof

Den årlige tørdeposition på Anholt er beregnet til 68 kg N/(km² år) i 1999, hvilket er ca 5% højere end for 1998. Den højere tørdeposition er i overensstemmelse med, at koncentrationerne af kvælstofforbindelserne på Anholt har været højere i 1999 sammenlignet med 1998. Ammoniak og partikulært ammonium bidrager tilsammen med 78% og sum-nitrat med 22% af tørdepositionen.

Tørdeposition til landoverflader

Over land er tørdepositionen betydeligt større end over hav; dette skyldes bla. at ruheden er større her (dvs transport af luftforurening til jordoverfladen sker hurtigere), at kvælstofdioxid har en betydelig deposition her, og endelig at bidraget fra lokale ammoniakklender også er stort. I Tabel 2.4 er vist de månedlige tørdepositionsberegninger baseret på koncentrationsmålingerne ved Ulborg. Tørdepositionen til en gennemsnitlig landoverflade ved Ulborg er beregnet til 526 kg N/km², og det er 8 gange større end til Kattegat. Det skal i denne forbindelse bemærkes at tørdepositionen til land afhænger betydeligt af ammoniakkoncentrationen, således at disse beregninger er repræsentative for områder med ammoniakkoncentrationer tilsvarende dem ved Ulborg. For andre egne af landet vil tørdepositionen af kvælstof være betydeligt højere grundet højere koncentrationer af ammoniak.

Tabel 2.4 Den månedlige tørdeposition af ammoniak, ammonium, kvælstofdioxid, sum-nitrat og den samlede tørdeposition til en gennemsnitlig landoverflade ved Ulborg i 1999. Enhed kg N/km². Manglende kvælstofdioxidkoncentrationer i juli-september er ved beregningerne estimeret ud fra middelværdier af målinger fra Anholt og Keldsnor.

	Ammoniak	Ammonium	Kvælstofdioxid	Sum-nitrat	Samlet tørdeposition
Januar	9,7	3,9	1,3	2,9	17,8
Februar	6,1	2,9	0,8	2,4	12,1
Marts	10,0	9,2	3,7	5,5	28,4
April	45,4	7,1	25,3	4,5	82,4
Maj	54,1	5,1	22,0	3,0	84,3
Juni	7,6	3,2	79,0	1,9	20,5
Juli	29,6	4,0	21,6	2,2	57,3
August	42,1	2,5	22,3	1,8	68,7
September	42,2	5,2	28,1	3,2	78,6
Oktober	23,1	3,2	0,7	1,9	29,0
November	22,8	4,5	1,4	3,2	31,9
December	11,7	1,5	0,9	1,2	15,3
Sum	304	52	136	34	526

Ammoniak og ammonium bidrager tilsammen med ca. 70 % af tørdepositionen af kvælstof ved Ulborg og kvælstofdioxid og sum-nitrat bidrager tilsammen med de resterende ca. 30 % af kvælstofbelastningen.

2.3 Våddeposition

Våddeposition af kvælstofforbindelser er i 1999 målt på de seks hovedstationer, på nedbørsstationen ved Pedersker og på den eksperimentelle station ved Lille Valby. Bemærk specielt at nedbørsmålingerne ved Tange er blevet flyttet til Sepstrup Sande. Den geografiske placering af målestationerne og landskabstyperne omkring målestationerne fremgår af Figur 1.1 og Tabel 1.1. Våddeposition af kvælstof bestemmes vha. bulkopsamlere, hvor nedbøren opsamles på halv-månedsbasis og efterfølgende analyseres for bl.a. indholdet af nitrat og ammonium (se Ellermann et al. 1996).

<i>Sammenligning med DMI</i>	For at vurdere kvaliteten af nedbørsopsamlingerne i 1999 er DMU-ATMI's nedbørsmålinger sammenlignet med nedbørsmålinger fra DMI opdelt på gitterfelter på 10 km x 10 km. DMU-ATMI's målte årlige nedbør ligger 4-18% lavere end DMI's resultater for de felter, hvor målestationen er placeret. Den største forskel observeres ved målestationen ved Lille Valby, hvor bulkopsamlerne står meget frit, hvilket fører til en op til 20 % underestimering af nedbøren. Overensstemmelsen mellem DMU's og DMI's nedbørsmængder vurderes at være tilfredsstillende når det tages i betragtning at DMU's værdier er interpolerede værdier for gitterfelterne på 10 km x 10 km.
<i>Flytning til Sepstrup Sande</i>	Flytning af nedbørsopsamlingerne ca. 30 km i sydvestlig retning fra Tange til Sepstrup Sande er blevet foretaget for at øge udbyttet af målingerne, idet analyseresultater fra nedbørsopsamlingerne ved Tange ofte blev kasseret grundet forurening med fugleklatter, edderkopper mm. Resultaterne viser, at flytningen har været succesfuld i den henseende, idet det kun har været nødvendigt at kassere få resultater fra nedbørsprøver fra Sepstrup Sande i 1999.
<i>Sepstrup Sande i forhold til Tange</i>	Det generelle nedbørsbillede ved Sepstrup Sande er vurderet ved sammenligning mellem resultater fra Tange og Sepstrup Sande for perioden 1990-1998. De to stationer minder om hinanden; dog er nedbørsmængden typisk 20% større ved Sepstrup Sande end ved Tange. Tilsvarende ses en 20% højere våddeposition af nitrat på Sepstrup Sande i forhold til Tange. For ammonium ses generelt en lavere våddeposition ved Sepstrup Sande end ved Tange, hvilket formentligt skyldes, at målestationen ved Tange lå i område med større emissionstæthed (dvs. mere husdyrbrug) end målestationen ved Sepstrup Sande. På begge målestationer ses tendens til en faldende våddeposition af ammonium og nitrat.
<i>Estimering af manglende værdier</i>	Det kan ofte være vanskeligt at opnå en fuldstændig tidsserie af måling af våddeposition ved hjælp af bulkopsamlere. Et af de største problemer er uønsket forurening af nedbørsprøverne med fugleklatter, insekter m.m. Uregelmæssig skiftning af nedbørsopsamlere kan desværre også være et problem. I de tilfælde, hvor det er fundet fagligt forsvarligt, er de manglende værdier udfyldt ved skøn.
<i>Kriterier</i>	Kriterierne for, hvornår målingerne er repræsentative, er følgende: • Begge halvmånedsværdier skal være godkendt for, at en månedlig våddeposition kan accepteres. • Mindst 22 halvmånedsværdier skal være godkendt for, at den årlige våddeposition kan beregnes. Ved beregning af manglende værdier i forbindelse med årlig våddeposition estimeres den manglende våddeposition f.eks. ud fra nedbørsmængde bestemt af DMI og ud fra koncentrationen for den foregående halvmåned eller fra nærtliggende stationer.
<i>Manglende opsamling i 1999</i>	I 1999 var der kun tre halvmåneder med mangelfulde prøveopsamlinger, hvilket skyldtes et midlertidigt ophold i opsamlingerne på Keldsnor, og at orkanen i december ødelagde prøveopsamlingerne af nedbør ved Lille Valby og Lindet. Værdierne for de tre halvmåneder er derfor blevet estimeret på basis af nedbørsmålinger fra DMI og

målte koncentrationer i nedbør opsamlet på målestationen eller på de nærmeste målestationer. De estimerede værdier er fremhævet med * i den følgende tabel.

Geografisk og tidslig variation

I Tabel 2.5 angives den månedlige våddeposition af kvælstof, og i Tabel 2.6 angives den totale årlige våddeposition af kvælstof samt bidraget til våddeposition fra ammonium og nitrat. Tabel 2.6 angiver endvidere de årlige nedbørsmængder. Der observeres store forskelle i den månedlige våddeposition af kvælstof fra målestation til målestation, hvilket skyldes at nedbørsmængden er den væsentligste faktor for mængden af våddeposition og at nedbøren varierer kraftigt både tidsligt og geografisk. Det generelle billede er: jo mere nedbør jo større våddepositions-mængde. Der er dog ikke direkte proportionalitet mellem nedbørsmængden og våddepositions-mængden, da sidst-nævnte også afhænger af, hvor meget kvælstof, der bliver optaget i sky- og regndråberne (hvor optaget i skydråber dog er den vigtigste proces). Optagelsen af kvælstof er dels bestemt af luftens indhold af ammoniak, salpetersyre, kvælstofdioxid og partikelbundet ammonium og nitrat, dels af intensiteten og varigheden af nedbøren. For de stærkt vandopløselige kemiske forbindelser (f.eks. salpetersyre og ammoniak) observeres typisk højest våddeposition i begyndelsen af en nedbørsepisode, hvorefter våddepositions-mængden aftager efterhånden som luften "renses" for de pågældende kemiske forbindelser (Asman & Jensen 1994).

Tabel 2.5 Den månedlige våddeposition i 1999 af kvælstof (ammonium+nitrat) på de otte stationer, hvor der måles nedbør. Enhederne er kg N/km². Værdier angivet med * er baseret på estimat, idet målinger manglede grundet orkan eller ophold i opsamlinger.

	Lindet	Sepstrup	Keldsnor	Ulborg	Anholt	Frederiksborg	Lille Valby	Pedersker
Januar	117	75	63	77	60	66	55	54
Februar	73	43	45	39	40	58	43	48
Marts	143	151	91	139	119	83	89	96
April	67	54	33	74	69	65	71	51
Maj	80	115	82	45	69	57	80	22
Juni	100	77	163	132	87	67	84	96
Juli	60	44	147*	59	45	45	55	66
August	98	67	46	69	74	87	109	52
September	71	96	87	66	105	33	46	101
Oktober	68	74	48	47	53	43	71	56
November	50	41	37	50	30	27	30	62
December	112*	56	59	53	71	80	65*	79
Årligt	1040	894	901	849	822	710	798	784

Niveauer

Våddepositionen er stort set ligeligt fordelt mellem ammonium og nitrat (se Tabel 2.6). Endvidere er våddepositionen af ammonium oftest lavere på målestationerne ved kysten end på målestationerne placeret inde i landet. Årsagen er formentlig, at stationerne ved kysten udsættes for mindre nedbør, og at kyststationerne ikke påvirkes af emissioner fra lokale landbrug i samme grad som landstationerne. I 1999 er den geografiske fordeling af nedbør og koncentration i nedbør imidlertid således, at denne tendens ikke observeres. For Anholt, Keldsnor og Pedersker måles en våddeposition af ammonium på 394 til 512 kg N/km², mens der på stationerne Frederiksborg, Lindet, Ul-

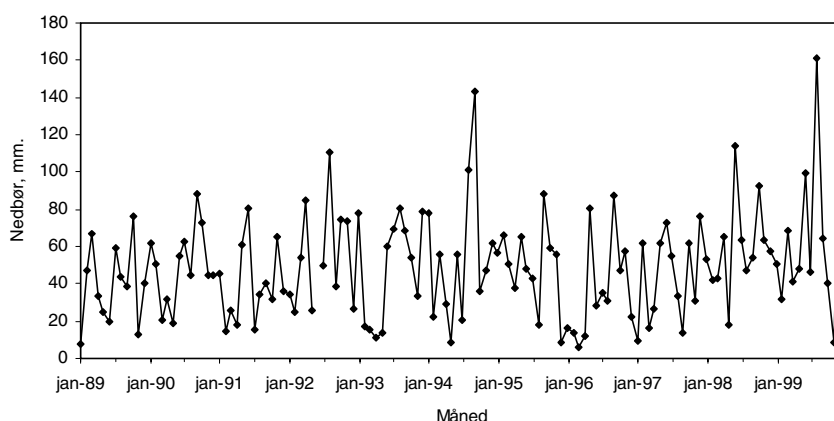
borg og Lille Valby måles 350 til 555 kg N/km². Samme mønster observeres ikke for våddepositionen af nitrat, der i 1999 ligger på 360 til 485 kg N/km².

Tabel 2.6 Årlig våddeposition i 1999 af ammonium, og nitrat på målestationerne. Endvidere angives den totale mængde våddeponeret kvælstof og den årlige nedbørsmængde. For Lindet, Lille Valby og Keldsnor mangler måling for en halvmåned. Den værdi er derfor estimeret på basis af nedbørmålinger fra DMI og målte koncentrationer på stationen eller de nærmest liggende målestationer.

	Ammonium	Nitrat	Totalmængde kvælstof	Nedbør
	kg N/km ²	kg N/km ²	kg N/km ²	mm
Lindet	555	485	1040	939
Sepstrup	485	409	894	900
Keldsnor	512	389	901	614
Ulborg	397	452	849	1087
Anholt	394	428	822	782
Frederiksborg	350	360	710	776
Lille Valby	380	418	798	563
Pedersker	408	376	784	680

Sæsonvariation

Mængden af nedbør på en given lokalitet varierer meget fra år til år, et eksempel er givet for Anholt i Figur 2.10. Trods dette er den generelle tendens at nedbørsmængden er størst efterår og vinter og lavest forår og sommer (se Figur 1.4). Der ses også store variationer mellem årene i den månedlige våddeposition af ammonium og nitrat (se eksempler fra Anholt på Figur 2.11 og 2.12). For våddeposition af nitrat observeres stort set ingen sæsonvariation for nitrat, mens der for ammonium observeres højest våddeposition i sommerhalvåret. Dette skyldes formentligt optag og udvaskning af luftens ammoniak, som netop findes i langt højere koncentrationer i sommerhalvåret.

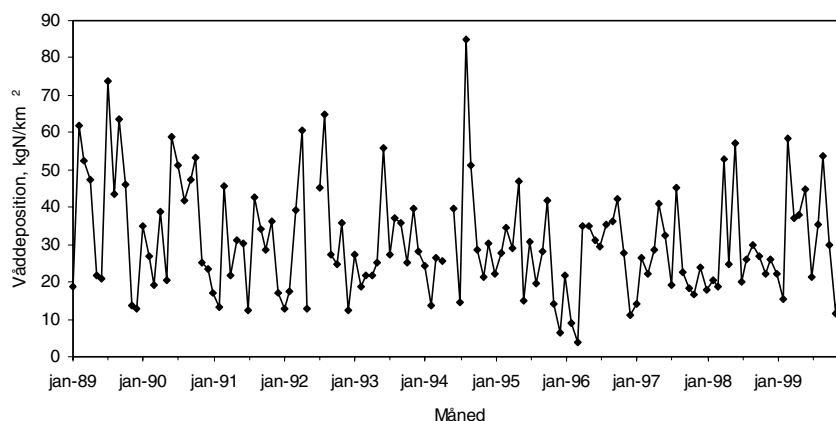


Figur 2.10 Månedlig nedbørsmængde på Anholt i perioden 1989 til 1999.

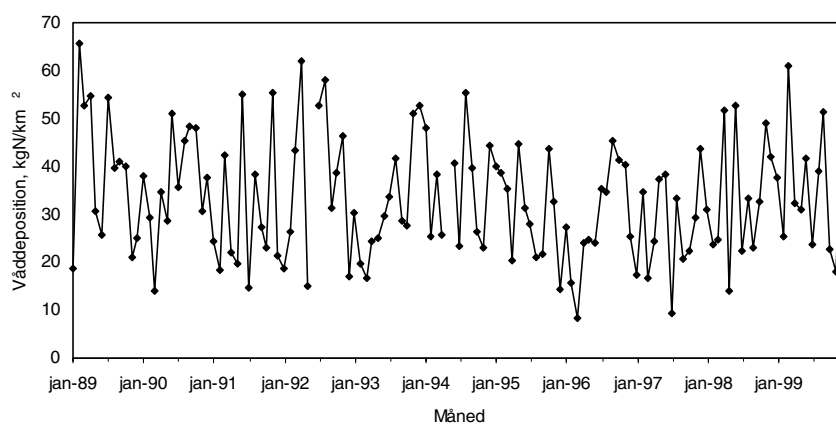
Udvikling i våddeposition

Af Figur 2.13 ses, at ændringerne i den årlige våddeposition af ammonium og nitrat i nogen grad følger mønsteret for ændringerne i den årlige nedbørsmængde, hvilket skyldes at nedbørsmængden er den primære faktor, som bestemmer størrelsen af våddepositionen. En lang række andre faktorer spiller dog, som allerede nævnt, også en vigtig rolle. For perioden 1989-1999 observeres en signifikant fal-

dende våddeposition ved Frederiksborg af såvel ammonium som nitrat (se Tabel 2.7), hvilket er en ændring af billedet ved 1998-rapporteringen. På de øvrige stationer observeres ligeledes et fald i våddepositionen, men i disse tilfælde er faldet ikke signifikant. Årsagen til at den tidlige udvikling af våddepositionen ændres fra rapportering til rapportering skyldes nedbørsmængdens store indflydelse på våddepositions-mængden og at udviklingstendensen igennem hele perioden er lille set i relation til variationen fra år til år. De faldende våddepositions-mængder - som dog for størstedelen ikke er signifikante - hænger formentlig sammen med aftagende emissioner af kvælstof i Europa (se Afsnit 2.1.2 og 2.1.4).



Figur 2.11 Månedlig våddeposition af ammonium på Anholt i perioden 1989 til 1999.



Figur 2.12 Månedlig våddeposition af nitrat på Anholt i perioden 1989 til 1998.

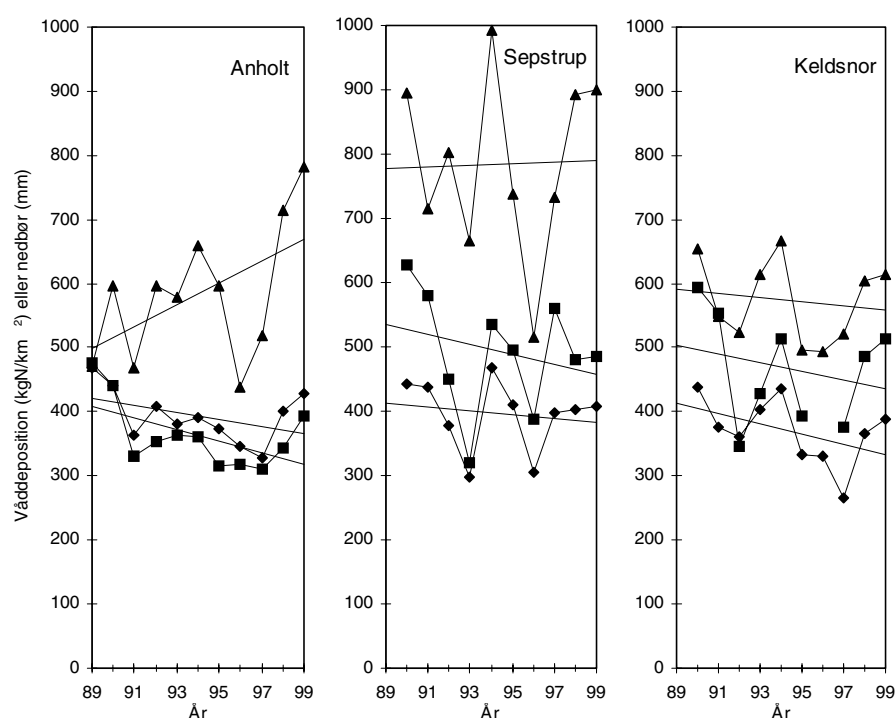
2.4 Samlet kvælstofdeposition

På basis af den målte våddeposition og den estimerede tørdeposition kan den samlede kvælstofdeposition beregnes. Det skal pointeres, at tørdepositions-beregningerne er behæftet med stor usikkerhed. Dog udgør tørdepositionen kun en del af den samlede kvælstofdeposition, hvilket reducerer betydningen for den samlede usikkerhed (se nedenfor).

Tabel 2.8 viser den samlede kvælstofdeposition baseret på målingerne på Anholt og ved Ulborg. I tørdepositionsberegningerne er der regnet med havoverflade på Anholt og landoverflade (overflade med ca. 10 cm plantevækst) ved Ulborg. Resultaterne repræsenterer derfor den atmosfæriske kvælstofbelastning til et havområde (dvs. Kattegat) og til et landområde med moderat belastning fra ammoniak fra landbrugsaktiviteter.

Tabel 2.7 Ændringer i våddepositions-mængden af ammonium og nitrat i perioden 1989-1999. Værdierne angiver relativt fald i % over måleperioden (11 år) beregnet på basis af lineær regression og med udgangspunkt i første måleår. Signifikansniveauer for test af hældning forskellig fra nul er beregnet på basis af T-test. (Woodward et al. 1993). Værdier angivet med *** indikerer signifikansniveau på >99%, ** angiver signifikansniveau på >95%, mens værdier angivet med * ikke er signifikante.

	NH_4^+	NO_3^-	Nedbør
Ulborg	-22*	-17*	15*
Sepstrup	-12*	-7*	2*
Lindet	-21*	-6*	14*
Anholt	-19*	-12*	36*
Frederiksborg	-27***	-17**	11*
Keldsnor	-11*	-18*	-5*



Figur 2.13 Den årlige våddeposition af ammonium (■) og nitrat (♦) og den årlige nedbørsmængde (▲) på målestationerne på Anholt, ved Sepstrup Sande og ved Keldsnor i perioden 1989-1999. Målingerne ved Keldsnor er middel af målingerne ved Bagenkop og Føllesbjerg.

Tabel 2.8 Samlede kvælstofdepositioner (kg N/km²) til en hav- og en land-overflade i 1999. Depositionerne er fremkommet ud fra målt våddeposition og beregnet tørdeposition. Sidstnævnte er baseret på målinger af luftens indhold af kvælstofforbindelser ved målestationer hhv. på Anholt og ved Ulborg.

	Havoverflade - Anholt	Landoverflade - Ulborg
Januar	64	95
Februar	44	51
Marts	126	167
April	79	156
Maj	75	129
Juni	92	152
Juli	61	116
August	79	138
September	114	145
Oktober	57	76
November	36	82
December	74	68
Årligt	890	1376

Større deposition over land

Der ses en ca. 50% højere kvælstofbelastning over land end over hav. Dette skyldes flere forskellige faktorer:

- Der er generelt større nedbørsmængde over land.
- Koncentrationen af ammoniak er generelt højere over land på grund af lokale kilder.
- Tørdepositions hastigheden er generelt større over land.

Ved at sammenligne Tabel 2.3 og 2.5 ses at tørdepositionen kun udgør ca. 6% af den samlede deposition til havoverflader ved Kattegat, og at tørdepositionen udgør ca. 40% af den samlede deposition til landoverflader.

Kilder

Ammoniak og dermed omdannelsesproduktet ammonium kommer hovedsageligt fra landbrug, hvorimod resten (kvælstofdioxid og sum-nitrat) kommer fra forbrændingsprocesser, hvor forbrænding med fossilt brændstof langt dominerer. På basis af denne viden er det muligt at opgøre, hvor meget kilderne bidrager med til depositionsbelastningen. Ved at sammenholde Tabel 2.4 og Tabel 2.6 kan det estimeres, at ca. halvdelen af kvælstofdepositionen til Kattegat stammer fra landbrug og halvdelen fra afbrænding af fossilt brændstof. Tilsvarende fordeling ses for kvælstofdepositionen til en gennemsnitlig landoverflade ved Ulborg.

3 Atmosfærisk deposition af fosfor

Mængden af fosfor er sammen med mængden af kvælstof ofte begrænsende for algevækst i vandløb, søer og hav. Derfor er det vigtigt at bestemme tilførslen af disse forbindelser til de danske farvande og søer. Dette kapitel præsenterer depositionsdata fra litteraturen og viser resultater fra måling af fosfat i partikler og nedbør (for nedbør er fosfatbestemmelsen semikvantitativ).

Partikler

Atmosfærisk fosfor er hovedsageligt bundet til partikler og transporteres i luften med disse. Fosfor findes i form af opløselige fosfat salte, bundet til metaller eller bundet i biologisk materiale som f.eks. pollen.

Kilder

Emission af fosfor stammer dels fra menneskeskabte kilder og dels fra naturlige kilder. De menneskeskabte kilder er primært emission af partikulært fosfor fra forbrænding af kul og halm, herunder markafbrænding. Derimod er emissionen af fosfor fra forbrænding af olie og gas lille. De naturlige kilder er primært ophvirvlet jordstøv og biologisk materiale som f.eks. luftbårne alger, pollen, svampesporer og mikroskopiske bladfragmenter.

Litteraturdata

Tabel 3.1 viser data fra litteraturen for den årlige deposition af fosfor og resultater fra tidligere målinger udført af DMU. Depositionerne er bestemt på vidt forskellig måde og i nogle tilfælde er der kun målt orto-fosfat (fra uorganiske fosfatsalte), i andre tilfælde er organisk bundet fosfor inkluderet. Trods dette varierer de rapporterede værdier for den årlige deposition af fosfor kun mellem 4 og 54,6 kg P/(km² år) og i Nordeuropa er variationen kun mellem 4 og 22 kg P/(km² år).

Tabel 3.1 Måling af fosfordeposition.

Reference	År	Opsamler	Lokalitet	kg P/(km ² år)
Grundahl & Grønbech, 1990, DMU	1989	bulk	Rabis Bæk (Midtjylland)	8
Hovmand et al, DMU 1993, DMU	1992	bulk	Anholt & Ulborg	6 ^A
Bendixen & Krüger 2000	1999	bulk	Fyn	15-26 ^B
KNMI/RIVM 1990	1983-1987	bulk	Nordlige Holland	7,7
	1988	wet only ^C		4,6
Draaijers 1993		bulk	Holland	4
Graham & Duce 1982	1974-1975	bulk ^D	Bermuda	6
Chen et al. 1985	1983		New Zealand	15
Pareja et al. 1994	1987	bulk	Spanien	54,6
Gibson et al. 1995	1993	bulk	Nordlige Irland	22

A. Kun organisk fosfor. Hovmand et al. estimerer at uorganisk fosfat ligeledes udgør 6 kg P/(km² år)

B. Uorganisk fosfor udgør ca. halvdelen.

C Opsamler der kun er åben, når det regner og derfor minimerer bidraget fra tørdeposition.

D Estimat af samlet tør- og våddeposition.

Deposition til sø - et eksempel

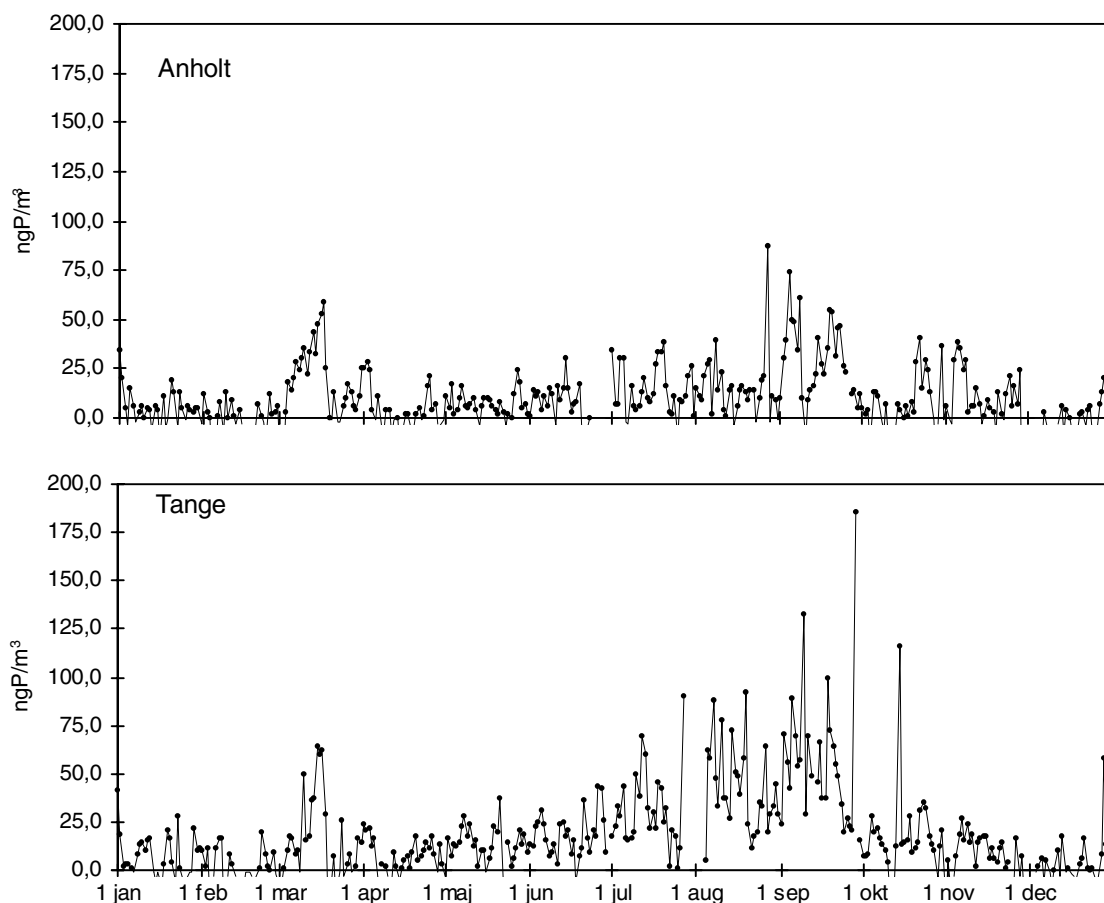
I en enkelt undersøgelse er variationen i deposition af fosfor til en sø blevet undersøgt. Cole et al. (1990) målte summen af organisk og uorganisk fosfordeposition til vandoverfladen af en skovsø som funktion af afstanden til bredden. Indenfor de første 10 km fra bredden faldt fosfordepositionen eksponentielt med en faktor ca. 4.5. Omkring 90 % af det målte fosfor blev identificeret som fosfor fra blade, insekter m.m. og det uafhængigt af afstanden fra bredden. Denne undersøgelse illustrerer først og fremmest kompleksiteten i bestemmelsen af fosfordeposition: at det er svært at sætte grænse mellem den egentlige atmosfæriske deposition og nedfald af blade m.m., og at fosfordepositionens størrelse afhænger af, hvor denne grænse sættes.

Partikelmålinger

I forbindelse med NOVA 2003 er fosfor i 1999 blevet målt i partikler på de seks hovedstationer (se Figur 1.2 og Tabel 1.1). Partikelmålingerne foretages ved opsamling af partikler med filterpack-opsamlerne og direkte analyse af partikelfiltret vha. PIXE-analyse (Proton Induced X-ray Emission; se Ellermann et al. 1996 for flere detaljer). Med analysemetoden måles den samlede mængde fosfor og der skelnes ikke mellem uorganiske eller organiske fosforforbindelser. Resultaterne fra målingerne for Anholt og Tange vises i Figur 3.1. Det ses at indholdet af partikulært bundet fosfor er meget lavt med kun ca. 20-30 % af målingerne over detektionsgrænsen på 20-50 ng P/m³ (grundet interferensproblemer afhænger detektionsgrænsen af prøvens indhold af chlor). De højeste værdier i 1999 observeres i det tidlige forår og i sensommeren (se også Bilag 1, Figur 6). Årsag til sæsonvariationerne er ikke fuldt klarlagt, men de høje koncentrationer i sensommeren kunne måske skyldes markafbrænding. Ved sammenligning med lignende målinger fra 1996 (Ellermann et al. 1996) ses, at der ikke er sket store ændringer i niveauet for indhold af partikulært fosfor i atmosfæren, når det samtidig tages i betragtning at koncentrationerne er lave og analysen derfor er behæftet med betydelig usikkerhed.

Semikvantitativ

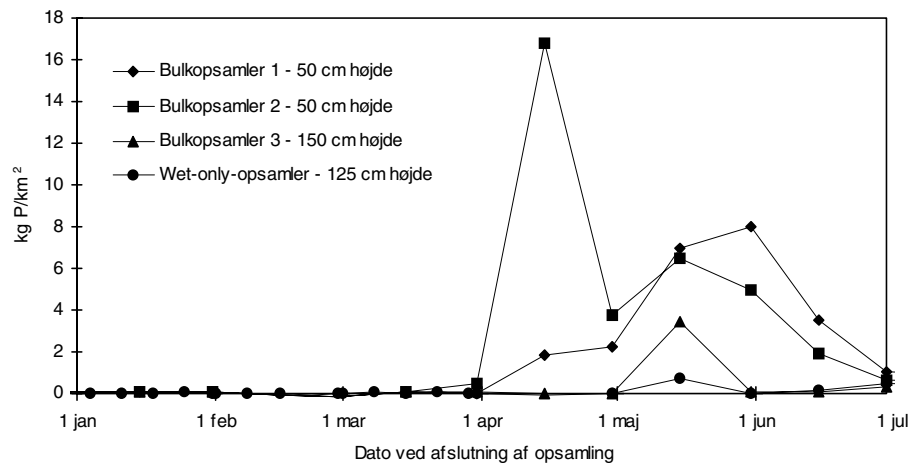
Nedbørsprøverne indsamlet med bulkopsamlerne på de otte målestationer, hvor der opsamles nedbør (se Figur 1.1), er igennem de seneste år kun blevet analyseret semikvantitativt for den vandopløselige uorganiske fosfat. At bestemmelsen af fosfat er semikvantitativ skyldes opsamlingsmetoden, idet prøverne ikke fikseres med syre, da dette ville ødelægge bestemmelsen af de øvrige kemiske forbindelser. Analyse foretages med automatiseret spektrofotometrisk metode (se Ellermann et al. 1996). Når der ikke foretages en kvantitativ bestemmelse af fosfat, skyldes det, at den atmosfæriske deposition af fosfor generelt er lille, og at fosfatbestemmelsen ofte ødelægges pga. kontaminering af nedbørsprøverne med små forureninger af nedbørstragten med fugleklatter, insektdele, bladfragmenter mm. Kontaminering med biologisk materiale giver også kontaminering med ammonium og kalium og bestemmelsen af fosfat anvendes derfor primært til kvalitetskontrol af nedbørsprøverne. Ved for høje koncentrationer af fosfat kasseres resultater for bl.a. ammonium, kalium og pH for den pågældende prøve.



Figur 3.1 Døgnmiddelkoncentrationer af partikulært bundet fosfor i 1999 opsamlet vha. filterpackopsamlere og analyseret med PIXE-analyse. Bemærk at størstedelen af målingerne ligger under detektionsgrænsen på 20-50 ng P/m³.

Våddeposition på Anholt

En egentlig måling af våddepositionen af fosfat kan derfor ikke præsenteres. Figur 3.2 er medtaget for at illustrere problemerne i forbindelse med bestemmelse af våddeposition af fosfat. Den viser resultaterne fra bestemmelse af våddeposition af fosfat på de tre bulkopsamlere på målestationen på Anholt, hvor de to er placeret i 50 cm højde og den sidste i 150 cm højde. Figuren inkluderer også resultater fra opsamling af nedbør med en såkaldt wet-only-opsamler, dvs. en opsamler som kun er åben ved nedbør, og derfor minimerer bidraget fra kontaminering og tørdeposition. Resultaterne afspejler primært den store forskel, der er i fosfatdepositionen mellem de fire opsamlere, og det på trods af, at våddepositionen af andre forbindelser (nitrat, ammonium og sulfat) er i god overensstemmelse. Den store forskel mellem de fire opsamlere skyldes derfor tilfældig kontaminering af nedbørsprøverne, hvilket understreges af at våddepositionen er højest i de laveste opsamlere, hvor risiko for kontaminering er højest, og lavest i wet-only-opsamleren, hvor risiko for kontaminering er lavest. Endvidere viser resultaterne, at kontaminering af prøverne giver resultater som er størrelsesordner højere end for de perioder, hvor prøverne ikke er kontamineret.



Figur 3.2 Våddeposition af fosfat målt med de fire nedbørsopsamlere på Anholt i første halvår af 1999. Bemærk at værdierne kun er bestemt semikvantitativ og derfor er behæftet med stor usikkerhed. Forskellene i våddeposition skyldes kontaminering. Wet-only-opsamleren blev anvendt på ugebasis indtil april, hvorefter der skiftedes til halvmånedsbasis ligesom for bulkopsamlerne.

Deposition til Indre Danske Farvande

Depositionen af fosfat i 1999 er derfor ikke blevet bestemt direkte ud fra målingerne i forbindelse med NOVA-2003. Fyns Amt (Bendixen & Krüger 2000) har igennem en årrække bestemt deposition af fosfat på basis af nedbørsprøver indsamlet med bulkopsamler på fire stationer på Fyn. Deres resultater viser, at der ikke er sket en udvikling i bulk-depositionen af fosfat, hvilket er i overensstemmelse med tidligere vurderinger i forbindelse med NOVA-2003 (Skov et al. 1999). På basis af partikelmålingerne og resultaterne fra Fyns Amt vurderes derfor, at der ikke er sket ændring i tør- og våddeposition af fosfor til de Indre Danske Farvande. Ellermann et al. (1996) estimerede den samlede uorganiske fosfatdeposition til De Indre Danske Farvande til ca. 8 kg P/km². Med et areal af de Indre Danske Farvande på 31.500 km² giver dette en samlet deposition på ca. 255 tons P. Bemærk at arealet af de Indre Danske Farvande er blevet reduceret med 9%; hvilket skyldes, at den tidligere anvendte beregning af arealet var fejlbehæftet. Det skal dog understreges at depositionen pr. km² ikke er blevet ændret, men blot arealet. Usikkerheden på estimatet er stor, men grundet den store risiko for kontaminering af prøverne anses estimatet som en øvre grænse for den atmosfæriske deposition af uorganisk fosfat. Den organiske fosfordeposition vurderes til at være på samme størrelse som den uorganiske fosfordeposition (Hovmand et al. 1993), hvilket understøttes af målingerne fra Fyns Amt (Bendixen & Krüger 2000).

4 Koncentration og våddeposition af svovlforbindelser - måleresultater

I dette kapitel præsenteres måleresultater for 1999 for svovldioxid og sulfat. Disse forbindelser bidrager til forsurening og indgår i de kemiske omdannelser af kvælstofforbindelserne i atmosfæren. I kapitlet præsenteres resultater fra måling af luftens indhold af svovldioxid og partikulært bundet sulfat og endelig vises resultater fra måling af våddeposition af sulfat. Målingerne fra 1999 perspektiveres ved at relatere resultaterne til udviklingstendenser og sæsonvariationer for perioden 1989-1999. Ligesom for kvælstofforbindelserne vises kun illustrationer af udvalgte resultater; primært fra målestationerne på Anholt og ved Keldsnor og Tange. Måleresultater fra de øvrige stationer vises i Bilag 1.

4.1 Koncentrationer af svovldioxid og partikulært bundet sulfat

Filterpack, SO₂, PIXE-S

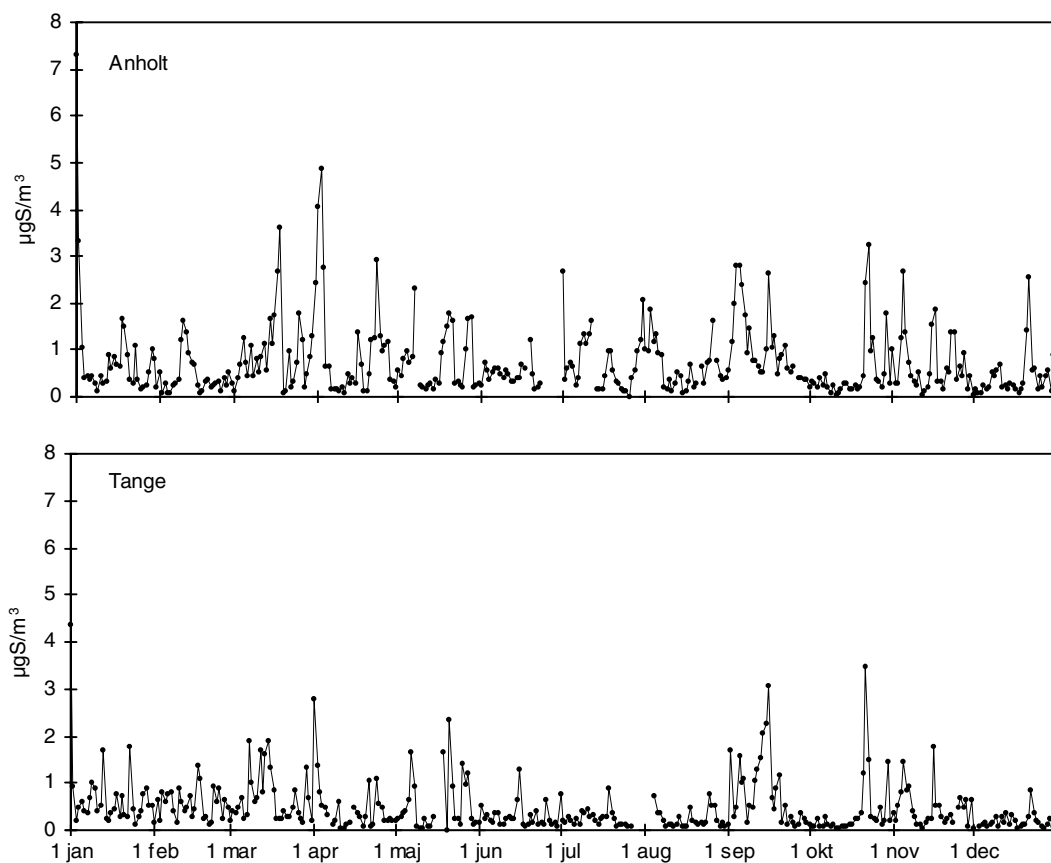
Døgnmiddelværdier af luftens indhold af svovldioxid og svovl bestemmes vha. filterpack-opsamlere på de seks hovedstationer (se Figur 1.1 og Afsnit 2.1). Svovldioxid opsamles på et imprægneret filter, som ekstraheres med vand og mængden af opsamlet svovldioxid bestemmes ved ionchromatografi. Mængden af partikulært bundet svovl bestemmes direkte vha. PIXE-analyse (Proton Induced X-ray Emission) af partikelfiltret. Ved denne metode bestemmes den totale mængde af svovl på partikelfiltret, men da stort set alt svovlet er sulfat omtales resultaterne fra PIXE-analysen i det følgende som sulfat.

Kilder

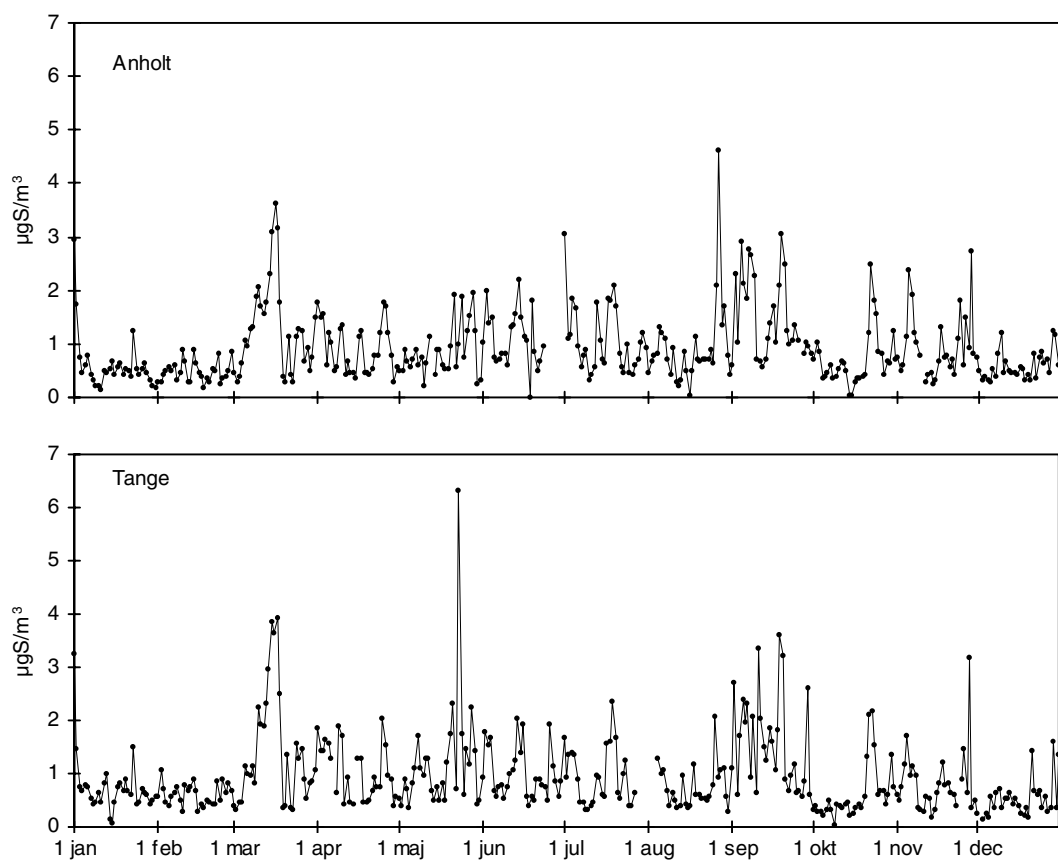
De vigtigste kilder til svovl i atmosfæren er afbrænding af kul og nogle typer olie. Under forbrænding frigives svovl til atmosfæren hovedsageligt i form af svovldioxid (>95%). I atmosfæren oxideres svovldioxid til svovlsyre, der hurtigt danner sulfatpartikler eller optages i allerede eksisterende partikler. Derudover emitteres svovl også fra naturlige kilder. De vigtigste er sulfat fra havsprøjt og dimethylsulfid fra nedbrydning af alger. Dimethylsulfid oxideres i atmosfæren til sulfat. Bemærk at der i nærværende kapitel ikke er foretaget korrektion for sulfat fra havsalt.

Niveauer

Døgnmiddelværdier af svovldioxid og partikulært bundet sulfat er vist i henholdsvis figur 4.1 og 4.2 for Anholt og Tange. Der ses en vis tidslig korrelation mellem målestationerne for koncentrationerne af svovlforbindelserne ligesom der ved sammenligning med data for partikulært ammonium og sum-nitrat ses korrelation. Koncentrationsniveauerne er stort set ens på målestationerne dog med en tendens til lidt højere sulfatkoncentrationer i det sydlige Danmark, se Tabel 4.1 og Bilag 1, Figur 5. Dette hænger sammen med, at koncentrationerne af svovlforbindelserne ligesom de partikelbundne kvælstofforbindelser i høj grad er bestemt af langtransport til Danmark fra de nordlige dele af det europæiske kontinent, selv om lokale kilder til svovlemission også har nogen betydning.



Figur 4.1 Døgnmiddelkoncentrationer af svovldioxid målt på Anholt og ved Tange i 1999.



Figur 4.2 Døgnmiddelværdier af partikulært bundet sulfat målt på Anholt og ved Tange i 1999.

Sæsonvariation- SO₂

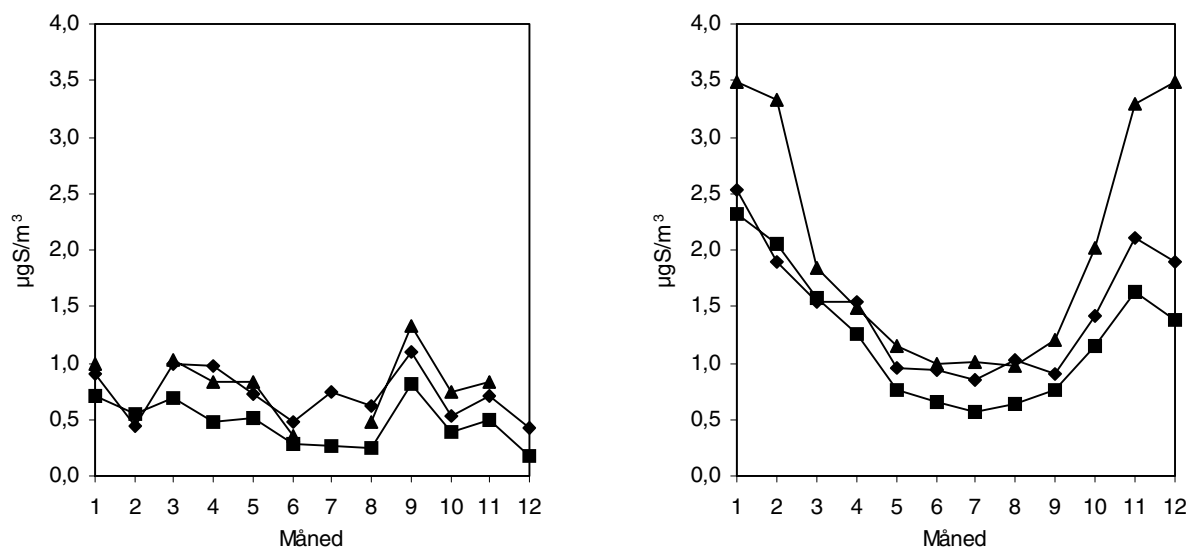
De højeste emissioner af svovl finder sted om vinteren i forbindelse med fyringssæsonen. Som gennemsnit for perioden 1999 ses de højeste koncentrationer af svovldioxid netop om vinteren (se Figur 4.3 og Bilag 1, Figur 9), hvilket også er forventet idet svovldioxid er en direkte emitteret luftforureningskomponent. Denne sæsonvariation ses tydeligt i de gennemsnitlige månedsmiddelkoncentrationer fra perioden 1989-1999, mens der for 1999 ikke ses nær så tydelig en sæsonvariation. Dette er formentlig et resultat af den meget kraftige reduktion i svovlemissionen, hvilket kan have ført til en ændring i betydning af de forskellige kilder til atmosfærisk svovl. Konklusioner vedrørende sæsonvariation af svovldioxidkoncentrationen skal derfor vurderes med forbehold for, at der er midlet over en periode, hvor der er sket en kraftig ændring i emissionerne.

Sæsonvariation - sulfat

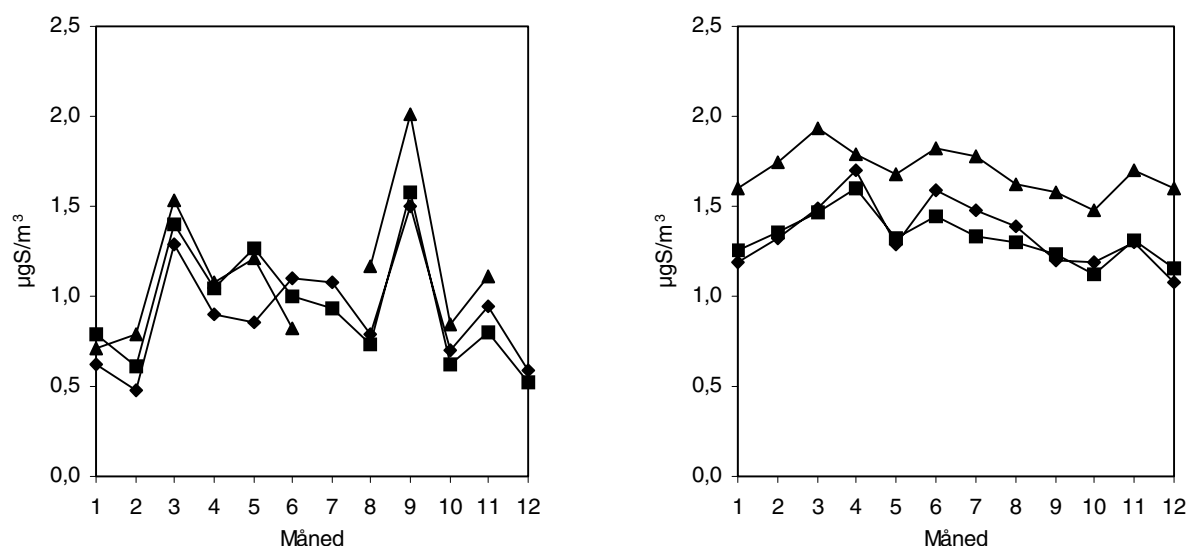
For sulfat observeres ikke nogen udpræget sæsonvariation; månedsmiddelkoncentrationen er stort set konstant gennem hele året (se Figur 4.4 og Bilag 1, Figur 10). Herved adskiller sulfat sig meget fra svovldioxid. Flere faktorer kan medvirke til dette:

- Reaktionshastigheden for dannelse af sulfat ud fra svovldioxid er betydeligt højere om sommeren end om vinteren. Derfor opvejes forskellene i svovldioxidkoncentrationen til dels af forskelle i reaktionshastighed, med andre ord, når svovldioxidkoncentrationen er høj er reaktionshastigheden lille og når koncentrationen af lille er reaktionshastigheden høj.
- Produktion af dimethylsulfid, som fører til dannelse af sulfat, foregår primært forår og sommer, hvor det er varmt. Selv om bidraget til sulfat fra dimethylsulfid er lavt (estimeret til ca 20%; Hertel et al. 1994) vil det medvirke til en udglatning i sæsonvariationen for sulfat, fordi produktion sker i modfase med fyringssæsonen.

Sæsonvariationen for sulfat er også mindre end observeret for sumnitrat og partikulært bundet ammonium på trods af at koncentrationen i Danmark af disse tre forbindelser i høj grad styres af langtransportprocesser. Forklaringen bag dette er formentlig at de høje koncentrationer af luftforurening ofte skyldes langtransport af luftforurening fra den nordlige del af det europæiske kontinent, men forholdet mellem emission af kvælstofforbindelserne og svovl varierer meget indenfor dette område. Årsagen til forskellene i sæsonvariationerne for de partikelbundne forbindelser er derfor forskelle i emissionsområderne, kildetyperne og forbindelsernes atmosfæriske kemi og fysik. Endelig skal der som for svovldioxid gøres opmærksom på, at de gennemsnitlige sæsonvariationerne er fremkommet ved at midle over en periode, hvor der er sket en kraftig ændring i emissionerne, og at konklusionerne derfor skal vurderes med forbehold her for.



Figur 4.3 Månedsmiddelkoncentrationer af svovldioxid i 1999 (venstre) og gennemsnit for perioden 1989-1999 (højre) beregnet ud fra målinger på Anholt (♦), ved Tange (■) og ved Keldsnor (▲). For 1999 er der kun medtaget måneder med mere end 25 målinger af hensyn til repræsentativitet.



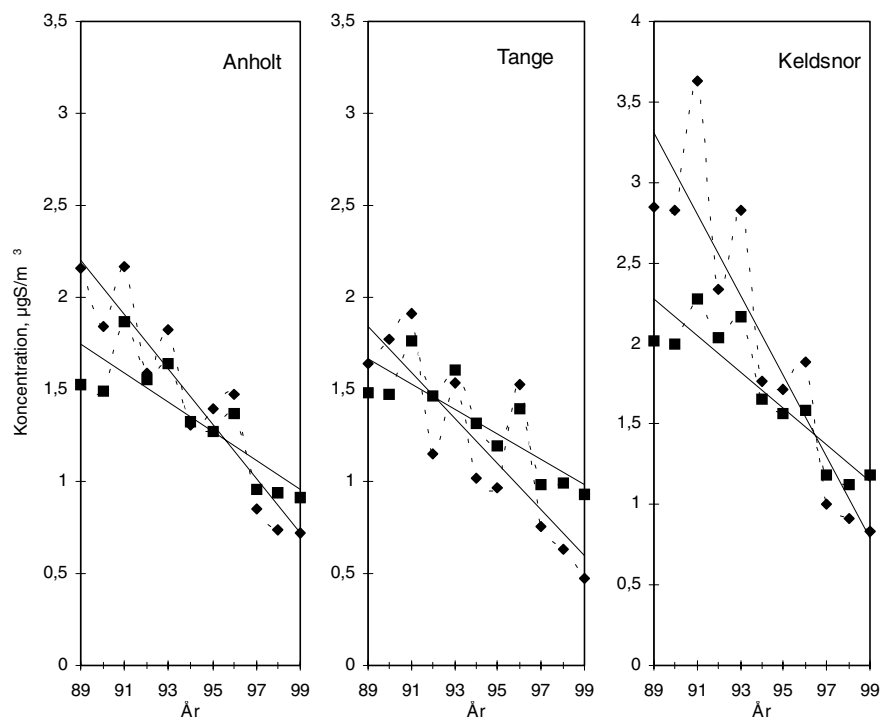
Figur 4.4 Månedsmiddelværdier for indholdet af partikulært bundet sulfat i 1999 (venstre) og gennemsnit for perioden 1989-1999 (højre) beregnet ud fra målinger på Anholt (♦), ved Tange (■) og ved Keldsnor (▲). For 1999 er der kun medtaget måneder med mere end 25 målinger af hensyn til repræsentativitet.

År til år variation

Figur 4.5 og Tabel 4.2 viser, at der er målt et stort signifikant fald i koncentrationerne af både svovldioxid (70-80%) og sulfat (46-63 %) fra 1989 til 1999, hvilket falder sammen med den generelle nedgang i svovldioxidemissionen i Europa (Vestreng & Stören 2000). Bemærk at faldet på Lindet på over 100% for svovldioxid blot skyldes, at 1989 er valgt som udgangspunkt for beregning af det procentvise fald gennem perioden og at 1989 ikke var året med den højeste koncentration.

Tabel 4.1 98%-fraktil og årsmiddelværdi for døgnmålinger af sulfat og svovldioxid på de seks aktive hovedstationer i 1999. Enhederne i tabellen er $\mu\text{g S/m}^3$.

	Sulfat		Svovldioxid	
	98%	Middel	98%	Middel
Ulborg	2,63	0,85	1,86	0,38
Tange	3,22	0,93	1,89	0,47
Keldsnor	3,33	1,18	2,71	0,83
Lindet	2,76	1,00	2,05	0,45
Anholt	2,89	0,91	2,82	0,72
Frederiksborg	2,82	0,94	2,62	0,54



Figur 4.5 Årsmiddelværdierne af koncentrationerne af svovldioxid (♦), og partikelbundet sulfat (■) på målestationerne på Anholt, ved Tange og ved Keldsnor. Tendenslinier er beregnet ved simpel lineær regression.

Tabel 4.2 Ændringer i luftens indhold af svovldioxid og partikulært bundet sulfat i perioden 1989-1999. Værdierne angiver relativt fald i % over måleperioden (11 år) beregnet på basis af lineær regression og med udgangspunkt i værdierne for 1989. Signifikansniveauer er beregnet på basis af T-test (Woodward et al. 1993). Alle fald er signifikante med signifikansniveau på $>99\%$.

	SO ₂	SO ₄ ²⁻
Ulborg	-86	-52
Tange/Sepstrup Sande	-76	-46
Lindet	-107	-63
Anholt	-68	-52
Frederiksborg	-83	-52
Keldsnor	-88	-56

4.2 Våddeposition

Måling af våddeposition

Våddeposition af sulfat er i 1999 målt på de seks hovedstationer, på målestationerne ved Pedersker og Lille Valby. Bemærk specielt at nedbørsmålingerne ved Tange er blevet flyttet til Sepstrup Sande. Den geografiske placering af målestationerne og landskabstyperne omkring målestationerne fremgår af Figur 1.1 og Tabel 1.1. Våddeposition af sulfat bestemmes vha. bulkopsamler, hvor nedbøren opsamles på halvmånedsbasis og efterfølgende analyseres for bl.a. indholdet af sulfat (se Ellermann et al. 1996). I Tabel 4.3 angives den månedlige våddeposition af sulfat og i Tabel 4.4 angives den årlige våddeposition sammen med nedbørsmængden.

Estimering af manglende værdier i 1999

Lige som for kvælstofforbindelserne kan det være vanskeligt at opnå en fuldstændig tidsserie af måling af våddeposition ved hjælp af bulkopsamlere (se afsnit 2.3 for detaljer omkring kriterier og estimer). I 1999 var der kun tre halvmåneder med mangelfulde prøveopsamlinger, hvilket skyldtes dels et midlertidigt ophold i opsamlingerne på Keldsnor, samt at orkanen i december ødelagde prøveopsamlingerne af nedbør ved Lille Valby og Lindet. Værdierne for de tre halvmåneder er derfor estimeret på basis af nedbørsmålinger fra DMI og målte koncentrationer i nedbør opsamlet på målestationen eller på de nærmeste målestationer. De estimerede værdier er afmærket i Tabel 4.3.

Tabel 4.3 Den månedlige våddeposition i 1999 af sulfat på de otte stationer, hvor der måles nedbør. Enhederne er kg S/km². Værdier mærket med * angiver estimer, idet målinger manglede grundet orkan eller ophold i opsamlinger.

	Lindet	Sepstrup	Keldsnor	Ulborg	Anholt	Frederiksborg	Lille Valby	Pedersker
Januar	61	42	33	55	38	29	24	26
Februar	63	33	26	56	41	36	25	28
Marts	54	60	39	55	61	49	44	59
April	30	23	14	39	33	40	31	27
Maj	34	48	37	26	49	33	46	51
Juni	51	37	56	78	50	39	36	48
Juli	34	26	62*	41	34	21	21	48
August	44	29	29	36	51	49	50	28
September	35	44	31	47	47	17	29	54
Oktober	80	59	25	59	48	28	32	24
November	41	32	22	36	17	15	20	38
December	186*	96	73	171	177	76	63*	113
Årligt	713	530	445	699	646	431	419	543

Geografisk og tidslig variation

Der observeres store forskelle i mængden af våddeponeret sulfat fra målestation til målestation både på årsbasis (se Tabel 4.4) og på månedsbasis (se Tabel 4.3). Variationen er særlig stor på månedlig våddeposition, idet nedbørsmængden er den væsentligste faktor for bestemmelse af våddepositions mængden. Nedbøren varierer kraftigt både tidsligt og geografisk. Det generelle billede er, at jo mere nedbør, der falder, jo større er våddepositions mængden. Der er dog ikke direkte proportionalitet mellem nedbørsmængden og våddepositions mængden, da sidstnævnte også afhænger af, hvor meget svovl, der bliver optaget i sky- og regndråberne (hvor optaget i skydråber dog er den vigtigste proces). Optagelsen af svovl er dels bestemt af luftens indhold af svovldioxid og partikelbundet sulfat og dels af

intensiteten og varigheden af nedbøren. Andre forbindelser f.eks. hydrogenperoxid, som kan omdanne svovlforbindelserne i sky- og regndråber spiller også en vigtig rolle.

Niveauer

Fordelingen af de årlige niveauer af våddepositionen af sulfat afspejler afhængighed af nedbørsmængden, således at der på stationerne med højest nedbør måles højest våddeposition af sulfat (se Tabel 2.4). Samtidig hermed ses at koncentrationen af sulfat i nedbøren varierer med afstand til kysten med lavest koncentration i stationerne længst fra kysterne og højere koncentrationer jo tættere stationerne ligger ved kysten. Dette skyldes formentligt bidrag af sulfat fra havsprøjt.

Tabel 4.4 Årlig våddeposition i 1999 af sulfat på de otte stationer, hvor der måles nedbør. Endvidere angives den årlige nedbørsmængde. For Lindet, Lille Valby og Keldsnor mangler måling for en halvmåned. Denne værdi er derfor estimeret på basis af nedbørsmålinger fra DMI og målte koncentrationer på stationen eller de nærmest liggende målestationer.

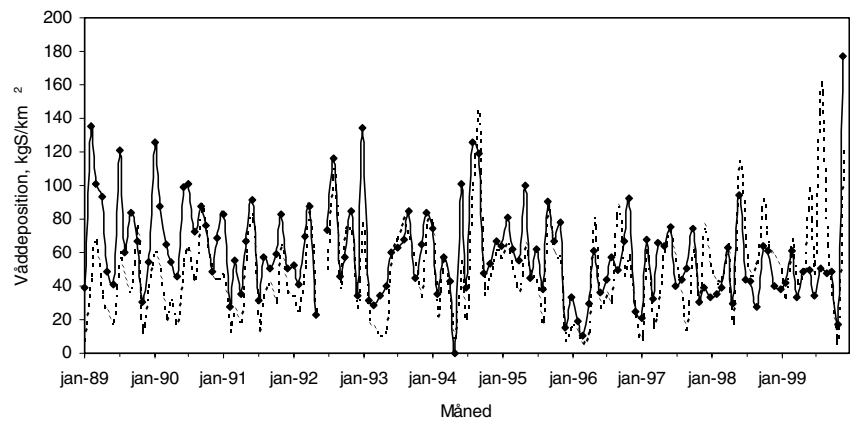
	Sulfat kg S/km ²	Nedbør mm
Lindet	713	939
Sepstrup	530	900
Keldsnor	445	614
Ulborg	699	1087
Anholt	646	782
Frederiksborg	431	776
Lille Valby	419	563
Pedersker	543	680

Sæsonvariation

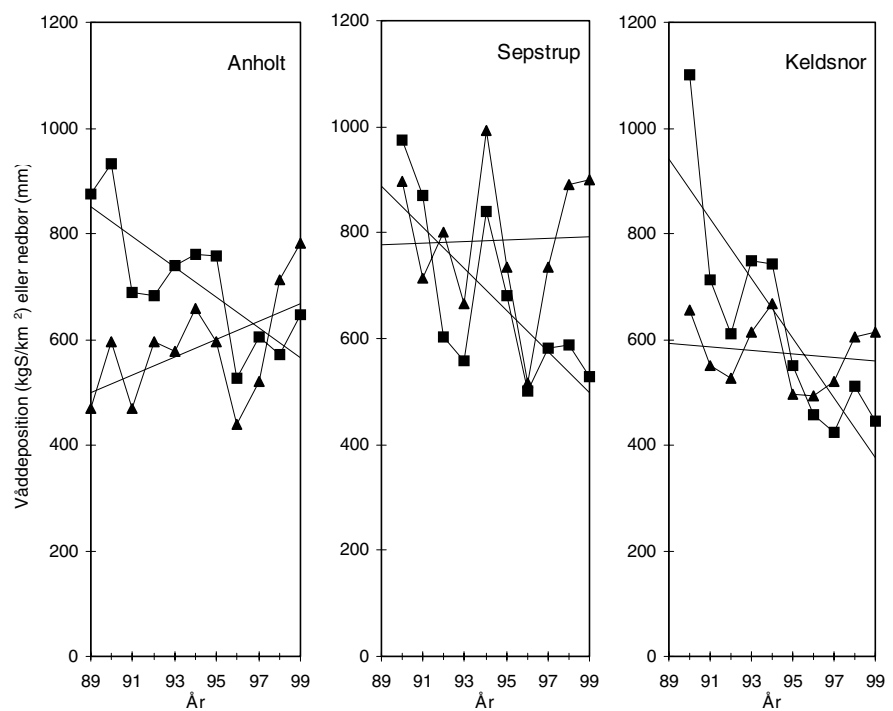
Mængden af nedbør på en given lokalitet varierer meget fra år til år, men trods dette er den generelle tendens, at nedbørsmængden er størst efterår og vinter og lavest forår og sommer (se Figur 2.6 og 1.3). For våddepositionen måles ingen tydelig sæsonvariation, men dog ses størst våddeposition i efterårsmånederne. Korrelation mellem nedbørsmængde og sulfatdeposition har for 1999 haft den betydning, at op til 27% af den samlede våddeposition af sulfat er målt i december i forbindelse med det kraftige regn- og blæsevejr; herunder orkanen.

Udvikling i våddeposition

Nedbørsmængdens indflydelse på våddepositionen fremgår ligeledes af den tidlige udvikling i den årlige våddeposition af sulfat. Af Figur 4.7 ses, at ændringerne i den årlige våddeposition i nogen grad følger mønsteret for ændringerne i den årlige nedbørsmængde, men at der samtidig er sket et stort fald i mængden af våddeponeret sulfat; faldet er statistisk signifikant (>99%; se Kapitel 2 for flere detaljer om den anvendte statistik) med et fald på 33-51 % for de tre stationer (Anholt, Sepstrup Sande og Keldsnor), hvor udviklingstendensen er vurderet. Den generelt faldende våddeposition af sulfat hænger sammen med aftagende emissioner af svovl i Danmark og resten af Europa; f.eks. er den danske svovlemission reduceret med ca. 60 % fra 1989 til 1998 (Vestreng & Stören 2000).



Figur 4.6 Månedlig våddeposition af sulfat på Anholt i perioden 1989 til 1998. Til sammenligning viser den prikkede linie den månedlige nedbør i mm.



Figur 4.7 Årsmiddelværdierne af våddeposition af sulfat (■) og årlig nedbørsmængde (▲) på målestationerne på Anholt, ved Tange og ved Keldsnor. Tendenslinier er beregnet ved simpel lineær regression.

5 Modelresultater

Kvælstof

I dette kapitel præsenteres og diskuteres modelberegninger af luftkoncentrationer og depositioner af kvælstofforbindelser til de danske farvande samt danske landområder. Beregningerne er foretaget med ACDEP-modellen (Atmospheric Chemistry and Deposition) (Hertel et al. 1995), som er en transport-kemi-model, der dækker hele Europa. Modellens opbygning og den anvendte beregningsprocedure er beskrevet på dansk i Ellermann et al. (1996). Beregningsproceduren blev ændret i forbindelse med beregningerne for 1997, og til beregningerne for 1999 har det igen været nødvendigt at foretage forskellige ændringer. De seneste ændringer, som bl.a. omfatter brug af en ny kilde til meteorologiske data og en ny type begyndelseskoncentrationer, er i det følgende beskrevet i forbindelse med en meget kortfattet præsentation af modellen. I rapporten præsenteres primært resultater for 1999, mens resultater for 1989 til 1998 kan findes i rapporterne for de tidligere år. Dog er de samlede kvælstofdepositioner til hovedfarvandene præsenteret på ny i denne rapport, idet ændringerne i modellen samt opdaterede emissionsopgørelser har ført til mindre ændringer af resultaterne.

Svovl

Den atmosfæriske svovldeposition har betydning ikke mindst for forsuren af terrestriske økosystemer. Derfor præsenteres beregninger af svovldeposition til Danmark ligeledes i rapporten. De beregnede luftkoncentrationer af svovl er vist i kvælstofafsnittet, idet de er anvendt til forklaring af resultaterne for kvælstof.

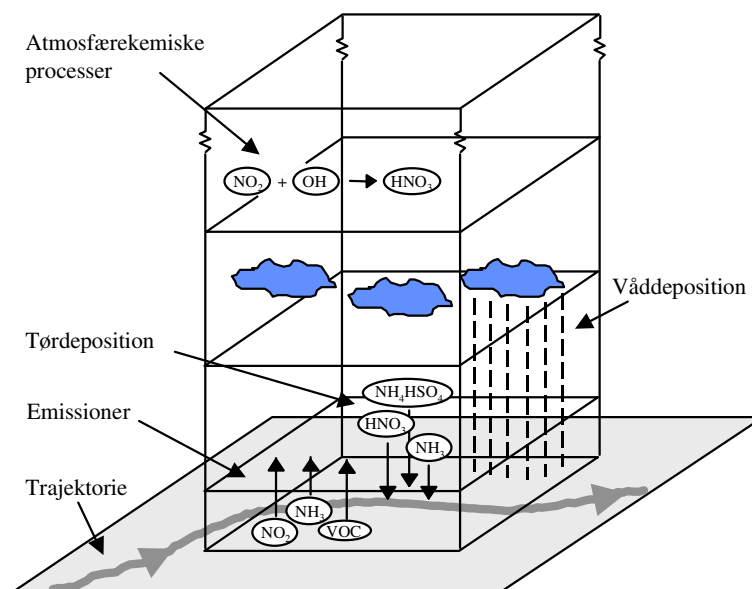
Arealopdeling

Resultaterne omfatter beregnede koncentrationer og depositioner for hovedfarvandene samt danske fjorde, vige og bugte; i alt godt 200 farvandsområder. Endvidere præsenteres tilsvarende beregnede depositioner til danske landoverflader. Tabeller for depositionerne til landoverflader fordelt på amtsniveau er placeret i Bilag 2.

5.1 Modelbeskrivelse og beregningsprocedure

Trajektoriemodel

ACDEP er en trajektoriemodel, som beregner koncentrationer og depositioner af en række kemiske forbindelser på baggrund af fire døgns transport af luftpakker frem til et net af receptorpunkter. Nettet af receptorpunkter repræsenterer det område, hvortil koncentrationer og depositioner af de kemiske forbindelser ønskes beregnet. Transportvejen, en såkaldt trajektorie, beregnes baglæns ud fra vindhastighed og vindretning; dvs. fra et givet receptorpunkt og et givet ankomsttidspunkt regnes bagud til startpunktet fire døgn tidligere. Der tildeles begyndelseskoncentrationer til de forskellige stoffer i luftpakkerne, og herefter transporteres luftpakkerne forlæns fra startpunktet frem til receptorpunktet via den beregnede trajektorie. Under transporten modtager luftpakken emissioner fra de kilder, som passerer, og de kemiske forbindelser omdannes via kemiske reaktioner, spredes i vertikal retning, og fjernes fra luftpakken ved tør- og våddeposition. En principskitse af modellens opbygning er vist i Figur 5.1. Modellen har en vertikal udstrækning fra jordoverfladen og op til 2 km's højde, og den er inddelt i 10 vertikale lag.



Figur 5.1 Opbygning af ACDEP-modellen. Under transporten modtager luftpakken emissioner fra de kilder, som passerer, og stofferne omdannes kemisk, spredes i vertikal retning og afsættes ved tør- eller våddeposition.

Kemiske forbindelser

De kemiske forbindelser i modellen er beskrevet ved en lettere modificeret version af den såkaldte Carbon-Bond Mechanism IV (CBM-IV), som omfatter 37 stoffer og 80 reaktioner. CBM-IV skemaet (Gery et al. 1989) er primært udviklet til modellering af forurenings-episoder med ozon (O_3), men indeholder samtidig en relativt detaljeret beskrivelse af kvælstofkemien. Princippet i CBM-IV er, at man inden for kulbrinterne lader en enkelt modelforbindelse repræsentere en gruppe af stoffer eller en reaktiv kemisk gruppe indeholdt i forskellige stoffer. Fordelen ved denne fremgangsmåde er, at der spares beregningstid ved at begrænse antallet af kemiske forbindelser og reaktioner i modellen. Da CBM-IV oprindeligt ikke omfatter ammonium og ammoniak, er disse tilføjet til mekanismen.

Kvælstofforbindelser i modellen

Således er kvælstofforbindelserne i modellen repræsenteret ved ammoniak (NH_3), ammoniumnitrat (NH_4NO_3), ammoniumbisulfat (NH_4HSO_4), ammoniumsulfat ($(NH_4)_2SO_4$), kvælstofdioxid (NO_2), kvælstofmonoxid (NO), salpetersyre (HNO_3), nitratraddikalet (NO_3), dinitrogenpentoxid (N_2O_5), salpetersyring (HNO_2), peroxysalpetersyre (HNO_4), PAN (peroxyacetylnitrat ($CH_3COO_2NO_2$)), andre organiske nitrater end PAN, samt uorganiske nitrater forskellige fra ammoniumnitrat. Da ammonium og ammoniak har stor betydning for kvælstofdepositionen til hav, er der endvidere udviklet en særlig rutine til behandling af disse forbindelser i modellen.

Partikulært bundne forbindelser

Modellen indeholder endnu ikke størrelsesfordelinger af partikler, og beskrivelsen af partikulært bundne forbindelser og heterogene reaktioner er derfor fortsat stærkt simplificeret (se bl.a. Vignati, Hertel 1996).

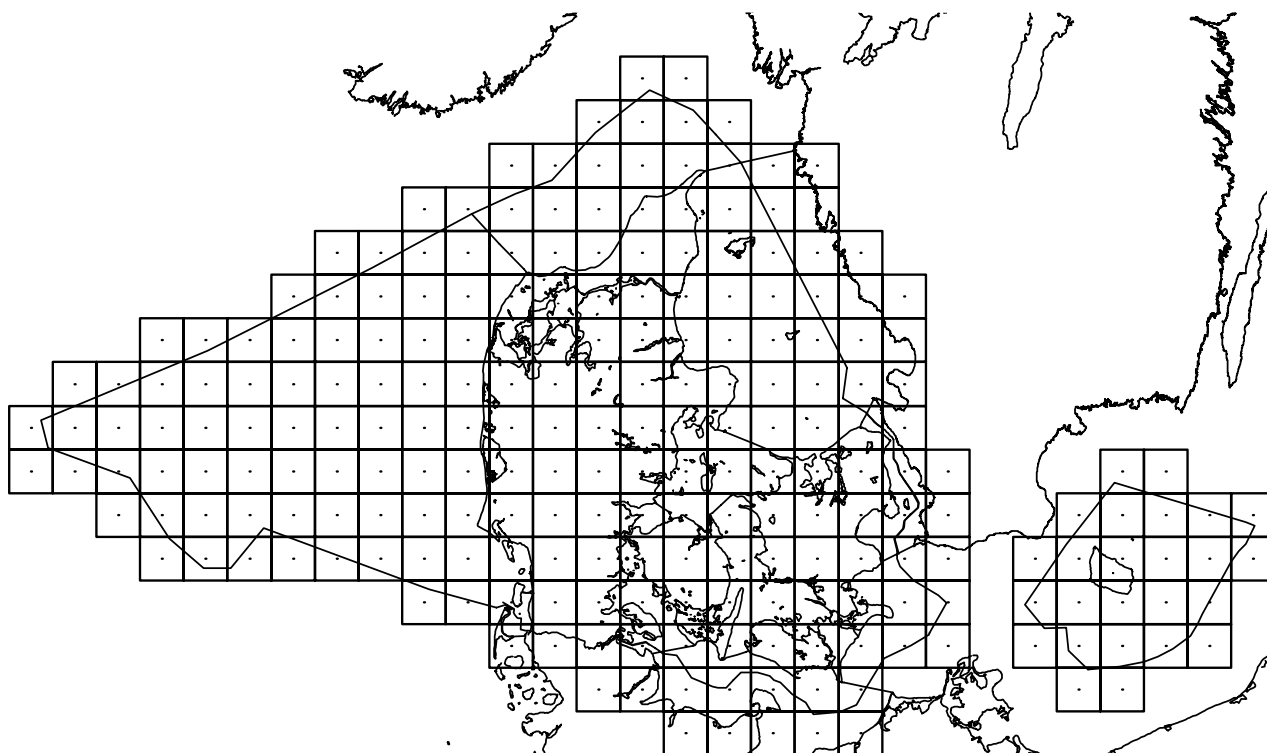
Tør- og våddeposition

Kemiske forbindelser fjernes fra modelsøjlen ved kemisk omdannelse, tørdeposition og våddeposition. Våddepositionen omfatter både "in-cloud scavenging" (optag i skydråber) og "below-

cloud scavenging" (optag i regndråber, som falder ned gennem atmosfæren). Ved beregning af tørdeposition af partikulært bundet materiale antages det, at alt materiale er bundet til partikler med en diameter på 0,8 μm .

Fremgangsmåde

Beregningerne foretages for hver 6. time til et net af 233 receptorpunkter. Efterfølgende interpoleres lineært mellem ankomsttids-punkterne. Til sidst integreres depositionen til de enkelte farvande ud fra resultaterne for receptornettet samt information om deres geografiske placering. Receptornettet har en opløsning på 30 km x 30 km og omfatter danske land- og farvandsområder, fjorde, vige og bugte, se Figur 5.2. Beregningerne er foretaget for gitterfeltets midtpunkt, som antages at repræsentere hele feltet.



Figur 5.2 Det anvendte beregningsnet med en opløsning på 30 km x 30 km for de danske marine farvande. Prikkerne angiver receptorpunkterne (233 i alt), hvortil beregningerne er foretaget. Farvandsgrænserne for de danske hovedfarvande er ligeledes angivet. Information om hvilket farvand de enkelte felter tilhører, er trukket ud fra GIS-systemet, ArcInfo, på baggrund af data fra Danmarks Geologiske Undersøgelser.

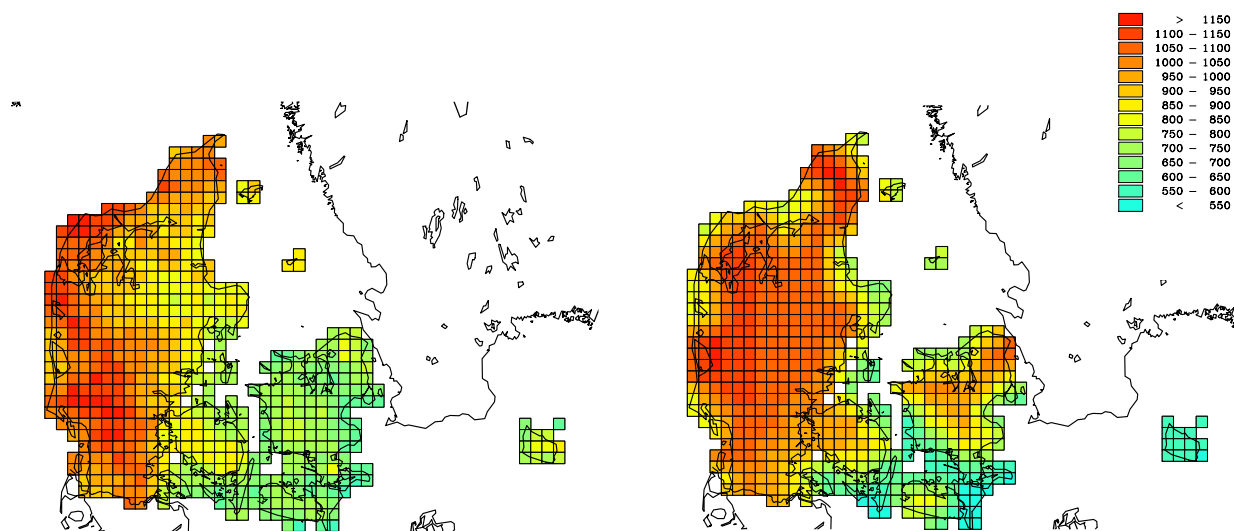
Ændringer i forhold til tidligere år

For at gennemføre beregningerne med ACDEP modellen kræves adgang til en lang række input-data. Det drejer sig primært om emissionsdata og meteorologiske data for hele Europa, men også om startkoncentrationer. Forskellige forhold har gjort det nødvendigt at anvende andre kilder til nogle af disse input-data samtidig med at modellen er blevet forbedret på en række områder. Der er foretaget fire større ændringer i forbindelse med beregningerne for 1999:

- 1) For 1999 er der anvendt meteorologiske data fra Eta-modellen under DMU's forureningsprognosesystem THOR (Brandt et al. 2000). Tidligere blev der anvendt meteorologiske data fra EMEP centeret på Det Norske Meteorologiske Institut (DNMI). EMEP-

felterne havde en opløsning på 150 km x 150 km. DNMI er imidlertid gået væk fra at producere disse meteorologiske data. De meteorologiske data fra Eta-modellen foreligger på et detaljeret 25 km x 25 km gitter, hvor Danmark er placeret i midten af gitteret. Da EMEP-felterne foreligger for hver sjette time og Eta-data er gemt for hver time, har de nye meteorologiske data fra Eta-modellen betydeligt højere tidslig opløsning end de hidtil anvendte EMEP-data. Eta-data har således såvel højere geografisk som tidslig opløsning, hvilket er en fordel i forbindelse med ACDEP-beregningerne.

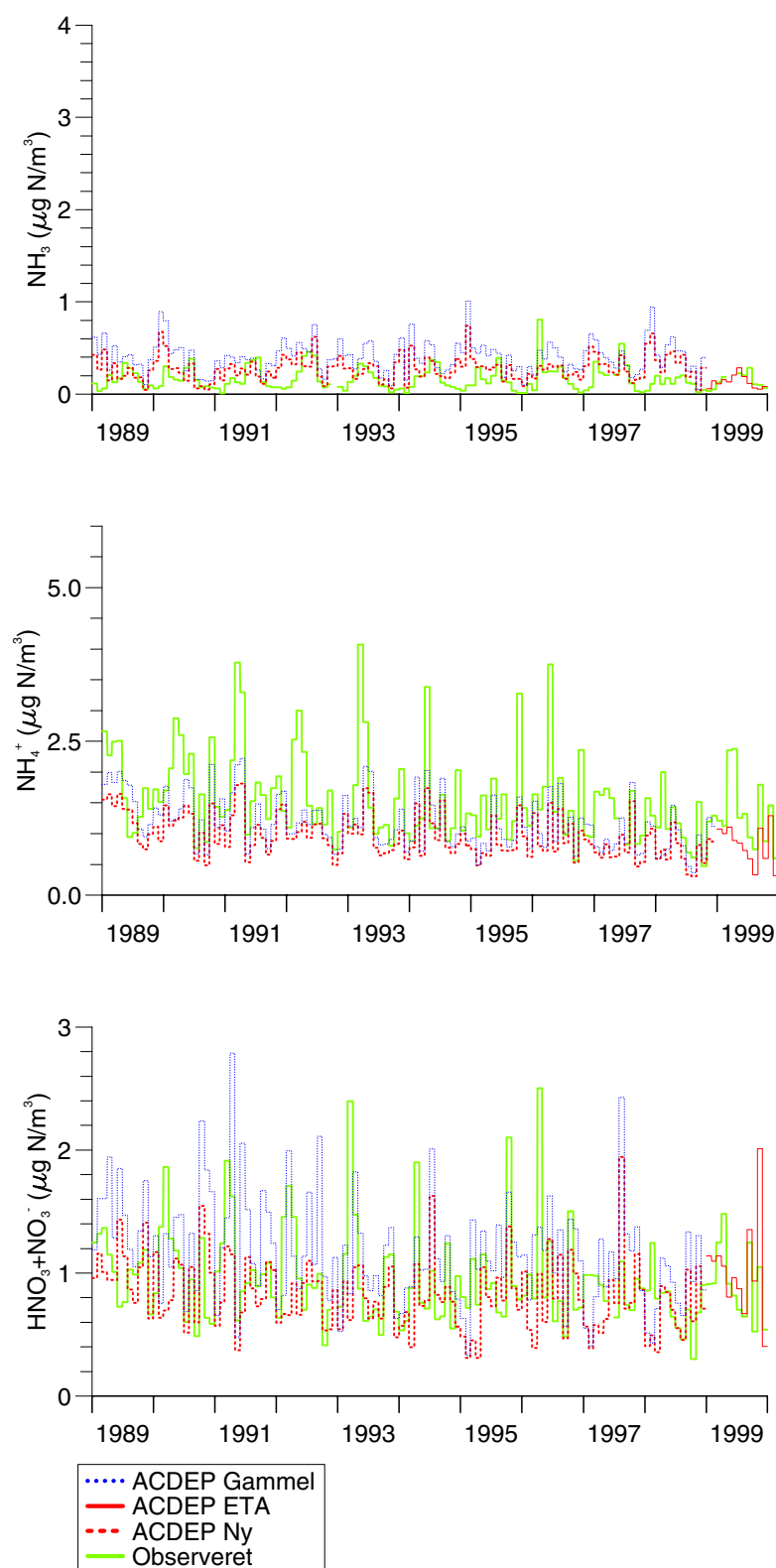
- 2) For 1999 er startkoncentrationerne taget fra DMU's DEOM (Danish Eulerian Operational Model) som ligeledes anvendes til løbende beregninger under prognosesystemet THOR (Brandt et al. 2000). Tidligere blev der anvendt beregnede månedsmiddelværdier fra DEM (Danish Eulerian Model) som også er udviklet på DMU. Beregninger med DEM foreligger ikke for året 1999 grundet manglende meteorologiske input-data (DEM anvendes ligeledes EMEP-meteorologi). Data fra DEOM ligger endvidere for hver time, hvilket også er en fordel for ACDEP-beregningerne.
- 3) De matematiske ligninger for de kemiske reaktioner (inklusive emissioner) og den vertikale transport (inklusive tørdeposition) løses nu samlet i modellen. Dette giver en mere fysisk korrekt løsning i forhold til tidligere, hvor ligningerne blev løst uafhængig af hinanden. I forbindelse med disse ændringer er kemirutinen blevet forbedret, hvilket tilsyneladende har givet en bedre overensstemmelse med måledata (foreløbig sammenligning). Samtidig er regnetiden blevet reduceret.
- 4) I beregningerne for 1989 til 1998 blev nedbørsfelterne i modellen korrigeret ind efter målte nedbørsmængder på udvalgte målestationer. I beregningerne for 1999 er der ikke korrigeret på ETA's nedbørsfelter. Disse beregninger er foretaget med meteorologiske data fra ETA-modellen, og sammenligninger med DMI's måledata har vist, at ETA-modellen beskriver nedbørsfelterne rimeligt godt (se Figur 5.2). For den gennemsnitlige årlige nedbør over Danmark er afvigelsen helt nede i to promille, mens der kan være noget større afvigelser for de enkelte felter. Den største afvigelse for 1999 resultaterne var omkring 60%, men typisk ligger afvigelsen under 20%. Håndteringen af EMEP nedbørsfelterne i beregningerne for årene før 1999 er endvidere ændret i forbindelse med den seneste revision af modellen. I de nye beregninger for 1989-1998 er der således foretaget to ændringer: Dels er udglatningen af felterne mindsket og dels er korrektionen med målte data nu foretaget efter udglatningen.



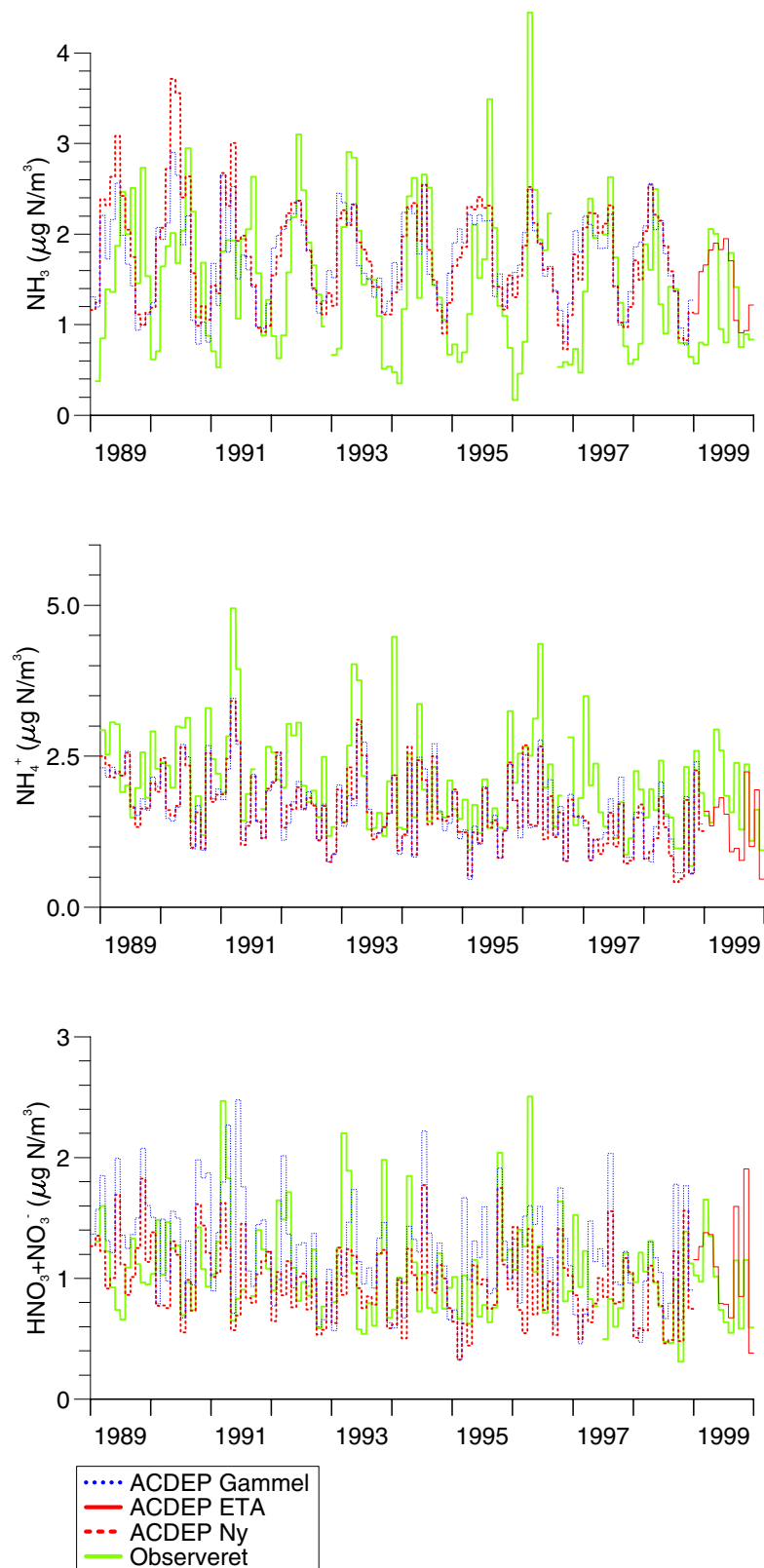
Figur 5.2 Sammenligning mellem nedbør fra DMI's nedbørsmålinger (til venstre) og ETA-modellen (til højre) for året 1999. Sammenligningen er foretaget for et gitternet på 10 km x 10 km. DMI har foretaget en interpolation af nedbørsmålinger ud fra de nærmeste stationer i deres nedbørsnet (metoden er beskrevet i Scharling 1998). ETA-modellens resultater er herefter interpoleret til samme beregningsnet.

Sammenligning med måledata

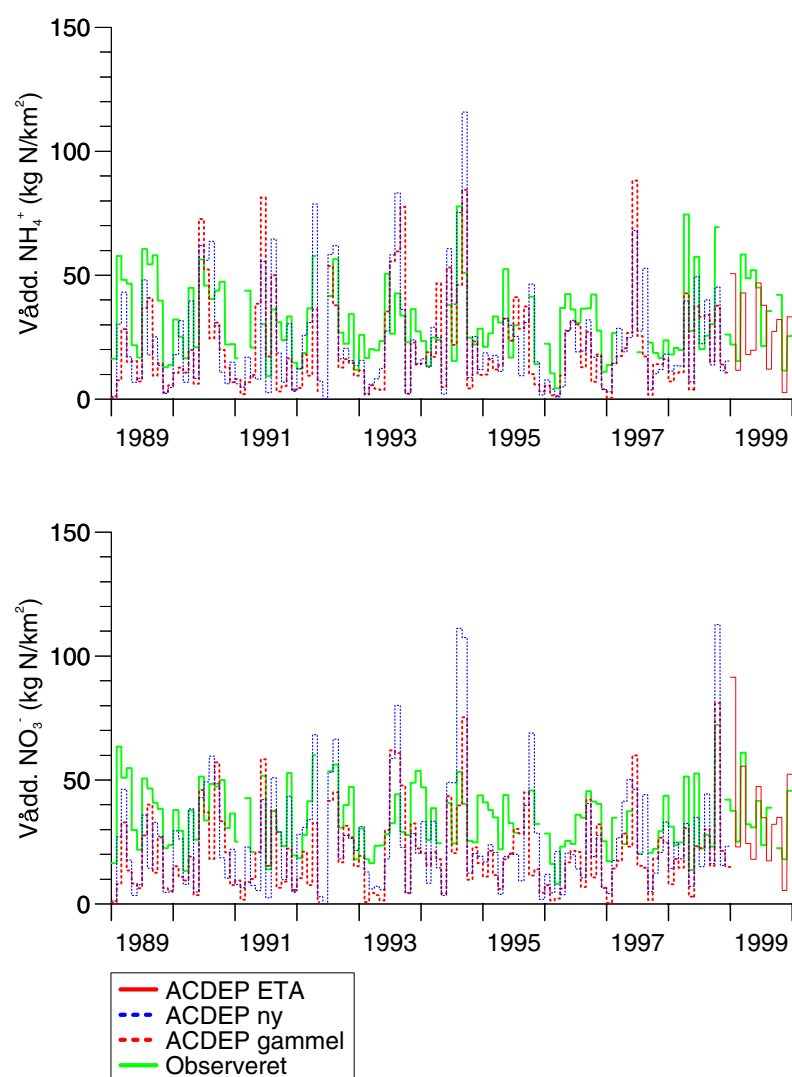
De beregnede luftkoncentrationer for 1999 er i rimelig god overensstemmelse med målinger fra de danske stationer i baggrundsovervågningsprogrammet. For Anholt er resultaterne for kvælstofforbindelserne forbedret betydeligt i forhold til de tidligere beregninger. Figur 5.3 til 5.4 viser sammenligninger med målte luftkoncentrationer af ammoniak, ammonium og sum-nitrat (sum af HNO_3 og NO_3^-) for målestationerne på Anholt og ved Tange. Figureerne præsenterer tre sæt af beregningsresultater: den tidligere modelversion (ACDEP gammel), den ny modelversion med EMEP-meteorologi (ACDEP ny) samt den nye modelversion med meteorologiske data fra Eta-modellen (ACDEP Eta). Det ses at ændringerne i modellen generelt har ført til lidt lavere koncentrationer, men i øvrigt relativt små ændringer. Beregningerne med den nye model med Eta-meteorologi er generelt i bedre overensstemmelse med målte koncentrationer. Dette er specielt udtalt for ammoniak på Anholt (Figur 5.3A). Figureerne 5.5 og 5.6 viser tilsvarende sammenligninger for våddeposition.



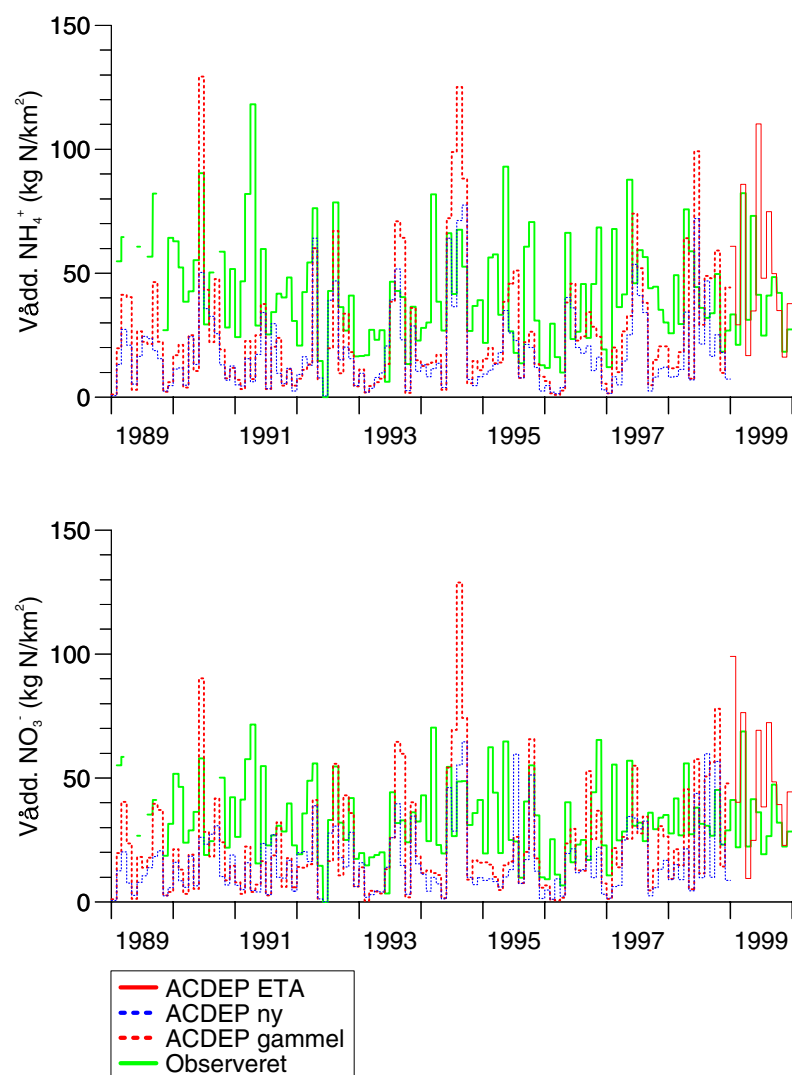
Figur 5.3 Sammenligning af målte og beregnede luftkoncentrationer af ammoniak, ammonium og sum-nitrat. Data er for målestationen på Anholt i perioden 1989 til 1999. Figurerne viser flere sæt af modelresultater. For perioden 1989 til 1998 er vist beregninger med modellen for de foregående år samt den reviderede model. For 1999 er der vist resultater fra den nye model gennemført med meteorologiske data fra ETA modellen (svarende til de resultater for 1999 som er vist i resten af dette afsnit).



Figur 5.4 Sammenligning af målte og beregnede luftkoncentrationer af ammoniak, ammonium og sum-nitrat. Data er for målestationen ved Tange i perioden 1989 til 1999. Figureerne viser flere sæt af modelresultater. For perioden 1989 til 1998 er vist beregninger med modellen for de foregående år samt den reviderede model. For 1999 er der vist resultater fra den nye model gennemført med meteorologiske data fra ETA modellen (svarende til de resultater for 1999 som er vist i resten af dette afsnit).



Figur 5.5 Sammenligning af målte og beregnede våddepositioner af ammonium og nitrat. Data er for målestationen på Anholt i perioden 1989 til 1999. Figureerne viser flere sæt af modelresultater. For perioden 1989 til 1998 er vist beregninger med modellen for de foregående år samt den reviderede model. For 1999 er der vist resultater fra den nye model gennemført med meteorologiske data fra ETA modellen (svarende til de resultater for 1999 som er vist i resten af dette afsnit).



Figur 5.6 Sammenligning af målte og beregnede våddepositioner af ammonium og nitrat. Data er for målestationen ved Tange i perioden 1989 til 1999. Figureerne viser flere sæt af modelresultater. For perioden 1989 til 1998 er vist beregninger med modellen for de foregående år samt den reviderede model. For 1999 er der vist resultater fra den nye model gennemført med meteorologiske data fra ETA modellen (svarende til de resultater for 1999 som er vist i resten af dette afsnit).

Emissionsdata

ACDEP-modellen anvender emissioner af svovldioxid, ammoniak, kvælstofoxider og kulbrinter fordelt på gitterfelter som input-data til beregningerne. For Danmark og de nærmest omkringliggende områder er der anvendt en detaljeret emissionsopgørelse på 15 km x 15 km gitterfelter, og for det øvrige Europa anvendes EMEP's opgørelser på 150 km x 150 km gitterfelter (Mylona 1996). EMEP's emissionsdata er senest opdateret i 1998 for perioden 1985 til 1996, og disse data er venligst stillet til rådighed af Sophia Mylona, DNMI. De anvendte emissionsdata omfatter kun totale årlige emissioner til det aktuelle felt. For at fordele emissionerne over året og over døgnet er der anvendt enkle funktioner, som beskriver de typiske variationer i Europa. De anvendte emissionsopgørelser har en geografisk fordeling svarende til forholdene i 1985, og blev efterfølgende skaleret op til at modsvare emissionerne i 1990, men fortsat med samme geografiske fordeling. Opgørelserne er opdateret til de enkelte beregningsår ved forholdsregning ud fra EMEP's emissionsopgørelser på landsbasis og ved at antage, at den geografiske fordeling er uændret siden 1985 (se Ellermann et al. 1996). EMEP's emissionsopgørelser for 1998 og 1999 har ikke været til rådighed for beregningerne, emissionerne er derfor antaget uændret i forhold til 1997. Det skal bemærkes, at de anvendte emissionsdata endnu ikke omfatter udslip fra skibsfart samt svovludslip fra naturlige kilder (primært dimethylsulfid (DMS) fra alger er her vigtig). I EMEP's emissionsopgørelse for 1998 udgør andre mobile kilder 6% af de danske svovlemissioner. Disse kilder omfatter skibstransport og flytrafik.

Output fra modellen

ACDEP-modellen beregner øjebliksluftkoncentrationer samt våd- og tørdepositioner for receptorpunkterne hver sjette time. Resultaterne omfatter samtlige 35 stoffer i modellen, men i det følgende præsenteres kun udvalgte stoffer. For at estimere niveauer og depositioner er der interpoleret lineært mellem øjebliksværdierne. Til hvert receptorpunkt beregnes tre typer af deposition: Tørdeposition per arealenhed for henholdsvis land- og vandoverflader samt våddeposition per arealenhed. Disse data gemmes normalt for hver sjette time. For at spare plads er der kun gemt beregnede koncentrationer ved overfladen. Trods denne datareduktion og anvendelsen af et komprimeret dataformat, fylder beregningsresultaterne for de 233 receptorpunkter lidt over 2 Gb for de 11 beregningsår.

Usikkerheden i beregningerne

Det er ikke muligt ved sammenligninger for kun et enkelt år at vurdere om resultaterne nu er i bedre overensstemmelse med måledata end de tidligere beregninger, selv om resultaterne kunne tyde på det. Derfor skønnes usikkerheden på de beregnede af kvælstof- og svovldepositioner at ligge på samme niveau som for tidligere års beregninger. For kvælstofdepositionen er denne usikkerheden tidligere skønnet til at ligge på 30 - 40% for de åbne farvande og 40 - 60% for kystnære farvande. For kvælstofdepositionerne til land er usikkerheden skønnet til ca. en faktor 2 på årsdepositionen. For svovldepositionen til land skønnes usikkerheden at være ca. 60%, men at kunne reduceres betydeligt ved at

opdatere svovlemissionerne, som specielt for Danmark er faldet væsentligt mellem 1998 og 1999.

5.2 Luftkoncentrationer

Dette afsnit indeholder grafiske fremstillinger af de beregnede luftkoncentrationer for receptornettet for året 1999 af ammoniak, ammonium, salpetersyre, kvælstofdioxid, nitrat, svovldioxid og sulfat. Sulfat og svovldioxid er medtaget pga. sulfats betydning for transporten af ammonium, idet ammonium i modellen bl.a. optræder som ammoniumsulfat og ammoniumbisulfat. I rapporten præsenteres koncentrationsplot i farveskala og uden tal, idet plottene kan laves i mindre udgave og dermed sparer farvetryk.

Ammoniak

Figur 5.7 viser årsmiddelkoncentrationer af ammoniak for hele receptornettet. Resultaterne afspejler primært de danske emissioner i landbrugsområderne, idet ammoniak hurtigt reagerer med svovlsyre, salpetersyre, saltsyre eller sure partikler i atmosfæren og danner partikulært bundet ammonium. Levetiden af ammoniak i atmosfæren er kort. Ved modeltilpasning har man estimeret den typiske levetid for ammoniak i Europa til ca. 3,5 time (Asman, Janssen 1987). Derfor er bidraget til ammoniakkoncentrationen fra langtransport af mindre betydning. Der kan dog frigives ammoniak fra langtransporteret ammoniumnitrat, men dette bidrag er normalt af mindre betydning for de lokale koncentrationer. Dette ses bl.a. af de meget lave koncentrationer, som kan observeres over den danske del af Nordsøen (typisk 0,03 til 0,5 $\mu\text{g N/m}^3$). Fjorde, vige og bugte udsættes generelt for betydeligt højere ammoniakkoncentrationer (typisk 1 - 2 $\mu\text{g N/m}^3$) pga. deres beliggenhed tæt på emissionsområderne på land. De modellerede koncentrationer er generelt i god overensstemmelse med de målte for Anholt, Frederiksborg, Lindet og Tange, mens der for Keldsnor er tale om en underestimering på næsten en faktor 3 og for Ulborg en overestimering på en faktor 2 på årsmiddelkoncentrationerne. Præcisionen i emissionsdata er her meget afgørende for beregningsresultaterne, ligesom en bedre beskrivelse af koncentrationerne i skovområderne kræver, at tørdepositionen til beplantningen bliver beskrevet detaljeret i modellen.

Ammonium

Partikler fjernes primært fra atmosfæren under nedbørsepisoder. Da der kan gå dage imellem, at en luftmasse udsættes for en nedbørsepisode, kan atmosfæriske partikler have meget lange levetider i atmosfæren (op til 8 - 10 dage i troposfæren). Ammonium er partikelbundet og kan derfor langtransporteres. I modellen antages ammonium at optræde i tre former: ammoniumnitrat, ammoniumsulfat og ammoniumbisulfat (se bl.a. Ellermann et al. 1996). De to sidste antages dannet ved en irreversibel proces, hvilket betyder, at ammonium bundet i en af disse former ikke frigiver ammoniak til atmosfæren igen. Det beregnede årsmiddelindhold af ammonium på partikelform er vist i Figur 5.8. Gradienten gående fra syd mod nord er bemærkelsesværdig. Denne gradient skyldes både store emissioner af svovlforbindelser og kvælstofoxider i den nordlige del af det europæiske kontinent og indflydelsen fra lokalt emitteret ammoniak. Som et eksempel på denne gradient gående fra

syd mod nord kan nævnes, at ammoniumniveauet over Nordsøen er beregnet til ca. $1,1 \mu\text{g N/m}^3$ i syd og $0,8 \mu\text{g N/m}^3$ i nord. Målingerne fra målestationer i overvågningsprogrammet viser tilsvarende gradienter (se kapitel 2). Koncentrationsniveauerne er generelt i god overensstemmelse med måledata fra målestationer, omend koncentrationerne generelt er underestimeret med 25 – 30% på årsmiddelværdierne.

Kvælstofdioxid

I baggrundsområderne i Danmark omdannes hovedparten af luftens kvælstofmonoxid til kvælstofdioxid ved reaktion med ozon. Ozon er stort set altid i overskud (i forhold til kvælstofmonoxid) i disse områder og derfor udgør kvælstofdioxid typisk over 90% af kvælstofoxiderne ($\text{NO}_x = \text{NO} + \text{NO}_2$). Kvælstofdioxid omdannes videre til salpetersyre med i gennemsnit ca. 5% i timen (se bl.a. Hertel 1995). Kvælstofdioxid deponerer meget langsomt til vand (se bl.a. Ellermann et al. 1996), hvorimod dets deposition over land er vigtig. Når det gælder depositionen af kvælstof til havområder, er det derfor kun som kilde til salpetersyre og nitrat, at kvælstofdioxid har betydning. De beregnede årsmiddelværdier af kvælstofdioxid viser betydelige gradienter nord - syd (fra ca. $3 \mu\text{g/m}^3$ i syd til ca. $1 \mu\text{g/m}^3$ i nord) pga. langtransport af kvælstofdioxid fra den nordlige del af det Europæiske kontinent, se Figur 5.9. Bemærk i øvrigt de væsentligt højere koncentrationer over byerne; især København, Århus, Odense og Aalborg. I ACDEP tages der hensyn til døgnvariationen i den hastighed hvormed kvælstofdioxid tørafsættes (tørdeponeres) til landoverflader, hvorimod der ses bort fra sæsonvariationen i NO_x emissionerne. Deposition af kvælstofdioxid sker hovedsageligt til beplantning og afhænger af om planternes spalteåbninger er åbne. Tørdepositionen af kvælstofdioxid til land er relativt langsom sammenlignet med den kemiske omdannelse, og derfor er denne fjernelse kun af mindre betydning for koncentrationsniveauet. Gradienter i koncentrationsniveauet tæt ved større emissionsområder over land (bl.a. i byområder), skyldes således primært vertikal spredning. Tørdepositionen er dog tilstrækkeligt stor til at NO_2 spiller en rolle for mængden af kvælstof, som tørdeponeres til land (se også afsnit om tørdeposition estimeret ud fra målte luftkoncentrationer). Det skal bemærkes, at resultaterne for NO_2 er væsentligt lavere (ca. en faktor 2) end beregningerne viste for 1998. Forskellen mellem beregningerne for de to år er et resultat af ændringerne i beskrivelsen af kemien og har ført til resultater som stemmer betydeligt bedre overens med måledata (se afsnit 5.1). Reviderede beregninger for 1998 vil blive præsenteret på DMU's hjemmeside ultimo 2000/primo 2001.

Salpetersyre

Salpetersyre dannes fotokemisk i atmosfæren, og har lige som ammoniak en kort levetid. Alligevel er denne komponent knyttet til langtransport, dels fordi omdannelsen af kvælstofoxider til salpetersyre, som tidligere nævnt, kun sker med ca. 5% i timen, og dels fordi salpetersyre kan optages såvel som frigives fra partikler. Ved optaget omdannes salpetersyre til partikulært nitrat. Nitrat kan således virke som et reservoir for salpetersyre i atmosfæren. Endelig kan partikulært ammoniumnitrat dannes ved, at salpetersyre og ammoniak reagerer; en reaktion som især finder sted på overfladen af partikler. Salpetersyre og partikulært nitrat vekselvirker derfor i betydelig grad i atmosfæren. Beregnede årsmiddelkoncentrationer af

salpetersyre er vist i Figur 5.10. Koncentrationen er nogenlunde homogen over havområderne med en middelværdi på ca. $0,3 \mu\text{g N/m}^3$. For fjorde, vige og bugte og over land er koncentrationen noget lavere end over hav. Eksempelvis er koncentrationen over Limfjorden ca. $0,07 \mu\text{g N/m}^3$. Dette skyldes den hurtige reaktion med ammoniak emitteret fra de lokale landbrugsområder. Den tredje ændring, som vedrørte modelleringen af kemiske reaktioner i modellen, førte til betydeligt mindre NO_2 koncentrationer. De lavere NO_2 koncentrationer betød ligeledes lavere HNO_3 koncentrationer i dette års beregninger. I beregningerne rapporteret for 1998 lå årsmiddeldkoncentrationen af salpetersyre over land mellem $0,15$ og $0,31 \mu\text{g N/m}^3$, hvor de nye beregninger for 1999 viser koncentrationer mellem $0,05$ og $0,08 \mu\text{g N/m}^3$. Over den danske del af Nordsøen er reduktionen betydeligt mindre. I beregningerne for 1998 var niveauerne mellem $0,36$ og $0,49 \mu\text{g N/m}^3$, hvor de nye beregninger viser koncentrationer mellem $0,25$ og $0,38 \mu\text{g N/m}^3$. Der er kun få målinger til rådighed for en sammenligning, men for Anholt er modellens årsmiddeldkoncentrationen ca. 20% lavere end observeret.

Nitrat

Ligesom ammonium er nitrat bundet til partikler, som for en stor del langtransporteres i atmosfæren. Beregningerne viser en tilsvarende syd - nord gående gradient for nitrat (Figur 5.11), som observeredes for ammonium. Dette skyldes langtransport fra den nordlige del af det europæiske kontinent. Betragtes Nordsøen igen som eksempel, aftager koncentrationen fra ca. $1,3 \mu\text{g N/m}^3$ i syd til ca. $1,0 \mu\text{g N/m}^3$ i nord.

Salpetersyre/nitrat forhold

Sammenholdes Figurerne 5.10 og 5.11, ses det, at modellen for landområder giver en salpetersyreandel på 2 - 3% af sum-nitrat på årsbasis. For de kystnære områder og de åbne havområder er andelen 15 til 20%, og over Nordsøen helt op i mod 30%. Det sidste skyldes til dels frigivelse fra partikulært nitrat. Resultaterne for landområderne er lidt lavere end måleresultater præsenteret i Andersen og Hilbert (1993). Måleresultater i Sorteberg et al. (1998) har givet salpetersyreandele mellem 18% og 49% for forskellige skandinaviske målestationer. De laveste værdier blev her fundet for den danske station ved Lille Valby. Salpetersyrekoncentrationen er meget følsom over for beskrivelsen af reaktionen med ammoniak, og det skal bemærkes at stationerne med høje salpetersyreandele præsenteret i Sorteberg et al. (1998) er placeret i områder med lave ammoniakkoncentrationer.

Sammenligning med måledata for sum-nitrat

Modellen reproducerer de observerede årsmiddeldkoncentrationer af sum-nitrat for 1999 inden for 10%’s afgivelse for alle 6 målestationer.

Sulfat

I modellen er sulfat koblet til transporten af ammonium via forbindelserne ammoniumsulfat og ammoniumbisulfat. Svovlemissionerne reduceres væsentligt i Europa i disse år (se fx Mylona 1996), og derfor må det forventes, at sulfat fremover får en mindre rolle for transporten af ammonium i atmosfæren. Ved vurdering af udviklingen i depositionen af kvælstofforbindelser, er det derfor interessant at følge udviklingen i sulfatkoncentrationerne og deres geografiske fordeling. En overslagsberegning baseret på måledata fra Frederiksborg viser, at andelen af ammonium associeret med sulfatholdige partikler typisk er over 70% om vinteren og ned til 30%

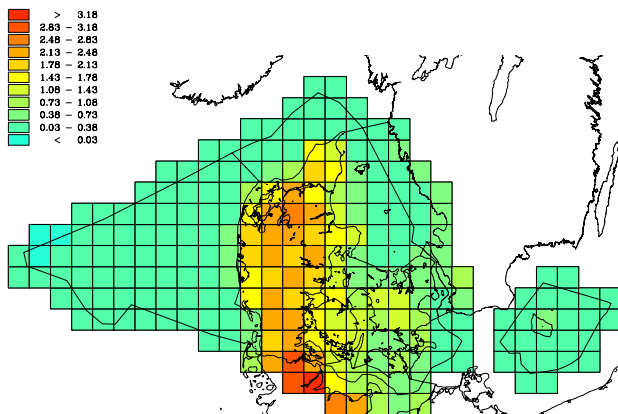
om sommeren (Hertel et al. 1996). Denne analyse afhænger meget af, om ammonium antages bundet som ammoniumsulfat eller ammoniumbisulfat; en information som vore måledata endnu ikke giver mulighed for at udlede. Analysen er endvidere baseret på beregninger med den tidligere beregningsprocedure og vil derfor ændre sig med de nye beregninger. Desuden er emissionerne opdateret fra 1996 til 1997 data, hvilket for Danmark har betydet en ca. 40% reduktion i udslippene af svovldioxid. Emissionsdata for 1998 og 1999 var ikke til rådighed for beregningerne.

Årsmiddelniveauer

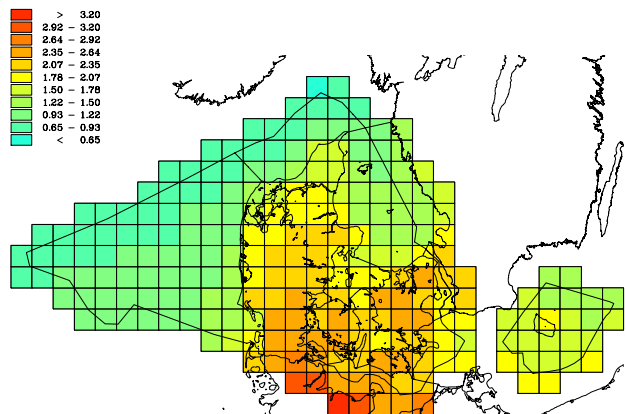
Resultaterne for årsmiddelkoncentrationen af sulfat viser en syd-nordgående gradient; i Nordsøen fx. fra ca. 0,45 $\mu\text{g S/m}^3$ i syd til 0,3 $\mu\text{g S/m}^3$ i nord (Figur 5.12). Derimod ses ingen klare øst-vest gradienter fra de danske kildeområder, hvilket skyldes den relativt langsomme omdannelse af svovldioxid til sulfat (ca. 2 - 3% per time; se bl.a. Hertel et al. 1995), og de stærkt reducerede emissioner fra danske kilder. For Anholt er der god overenstemmelse mellem målinger og beregninger, mens for Frederiksborg, Lindet, Tange og Ulborg er modellens årsmiddelværdi ca. en faktor 3 højere end den observerede. Her skal det igen bemærkes, at den anvendte emissionsopgørelse er for 1997 og de danske emissioner er reduceret yderligere i 1998 og 1999.

Svovldioxid

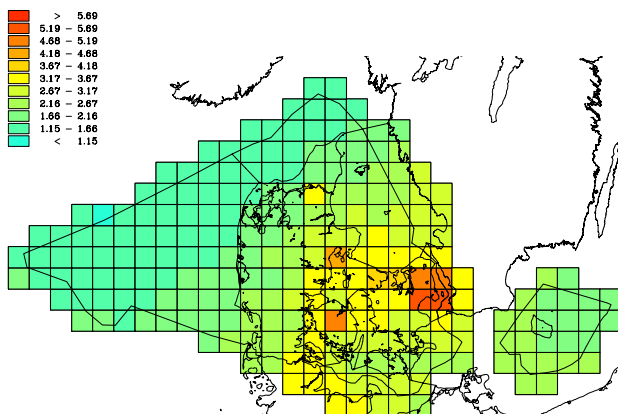
De beregnede årsmiddelkoncentrationer af svovldioxid viser en klar indflydelse fra de danske kilder (primært kraftværkerne) samt en tydelig syd - nord gradient som følge af langtransport fra den nordlige del af det europæiske kontinent (figuren er ikke vist her i rapporten).



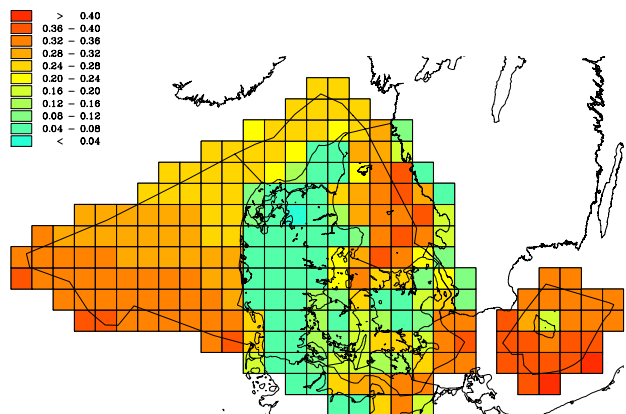
Figur 5.7 Beregnede årsmiddelkoncentrationer af ammoniak (NH_3) i $\mu\text{g N/m}^3$ i 1999.



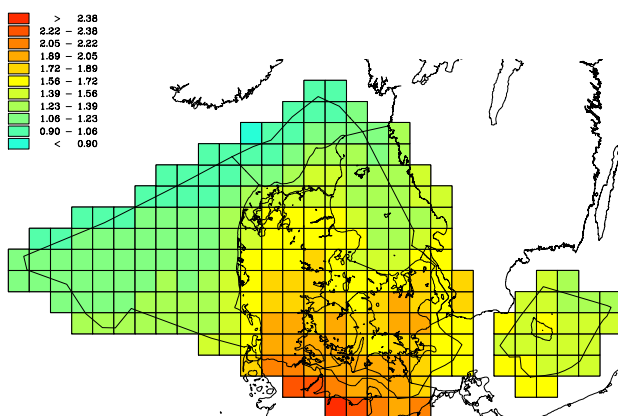
Figur 5.8 Beregnede årsmiddelkoncentrationer af ammonium (NH_4^+) i partikler $\mu\text{g N/m}^3$ i 1999.



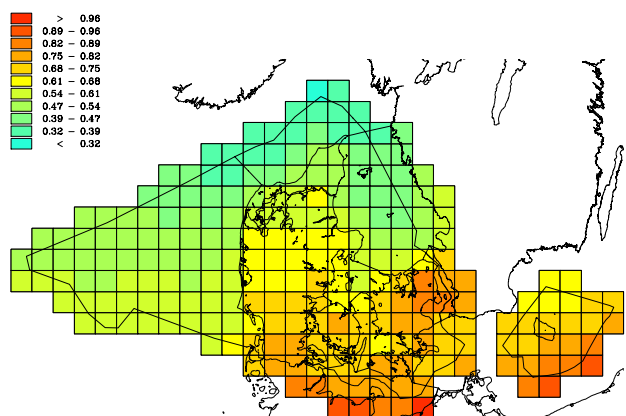
Figur 5.9 Beregnede årsmiddelkoncentrationer af kvælstofdioxid (NO_2) i $\mu\text{g N/m}^3$ i 1999.



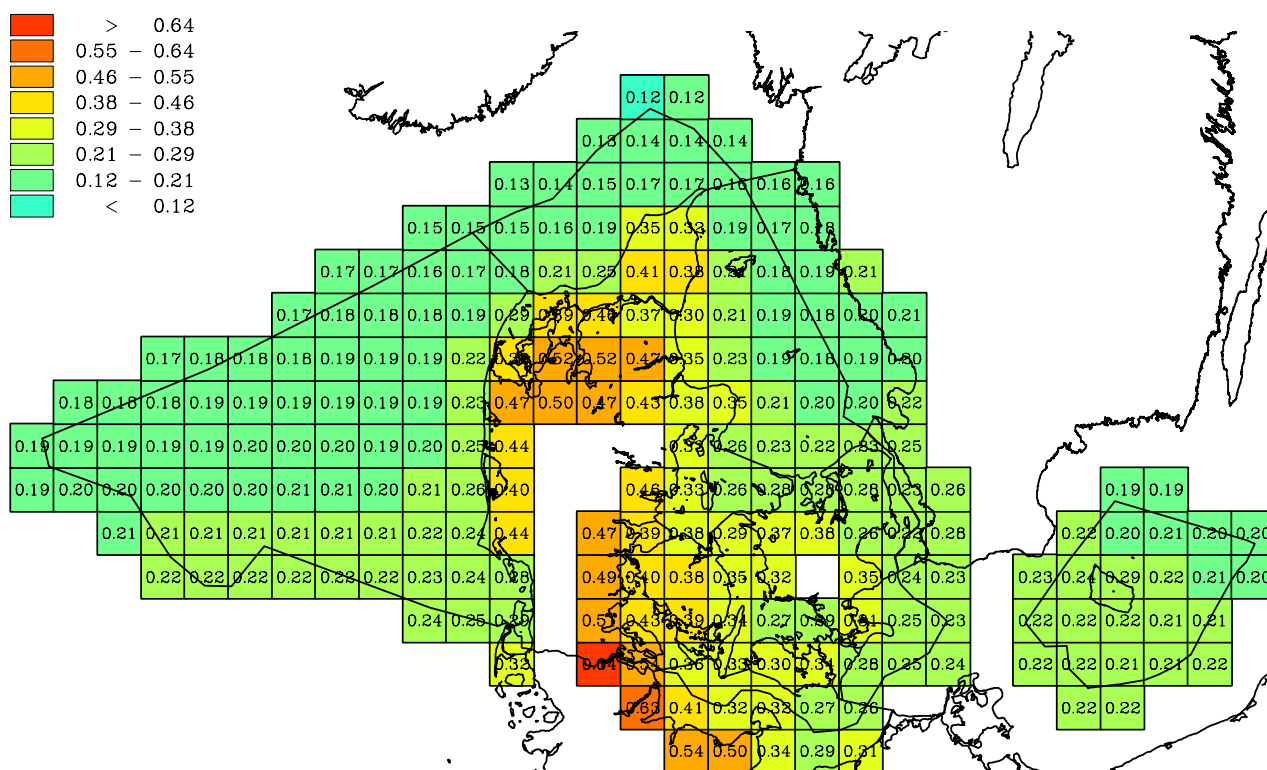
Figur 5.10 Beregnede årsmiddelkoncentrationer af salpetersyre (HNO_3) i $\mu\text{g N/m}^3$ i 1999.



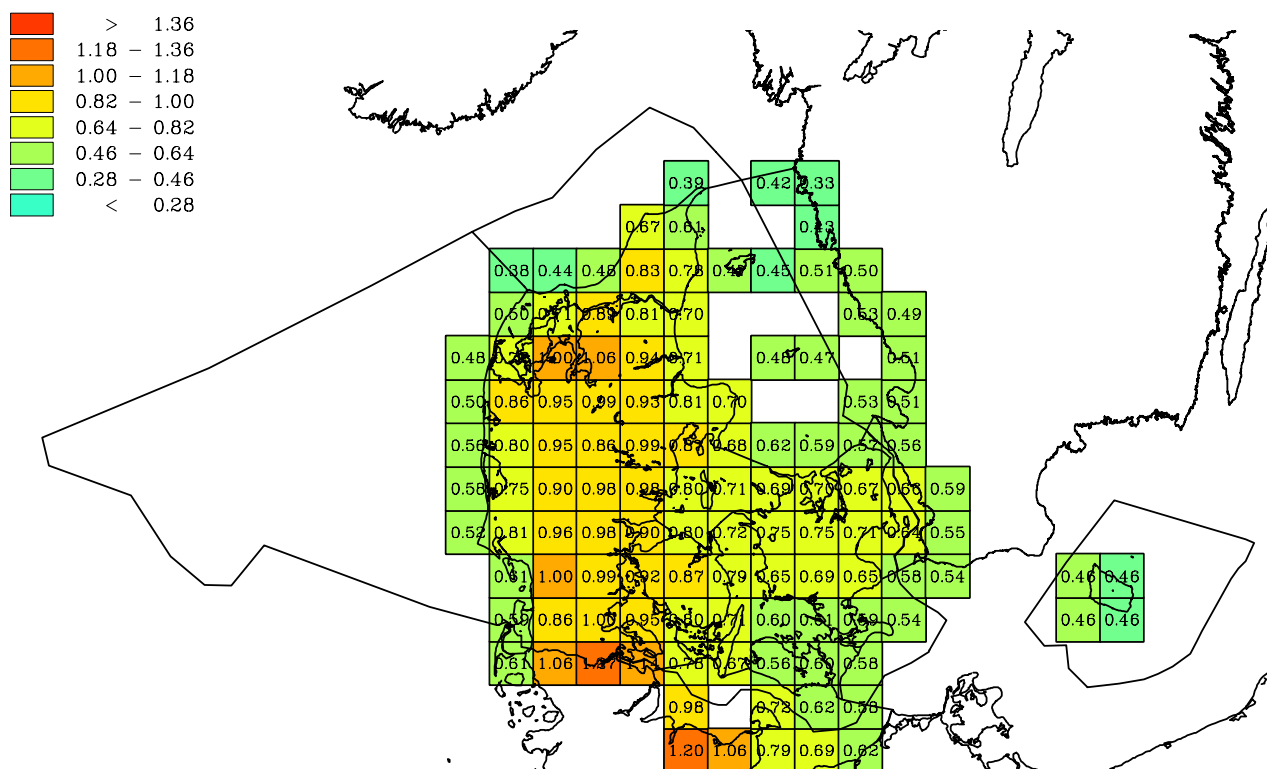
Figur 5.11 Beregnede årsmiddelkoncentrationer ($\mu\text{g N/m}^3$) af nitrat (NO_3^-) i partikler i 1999.



Figur 5.12 Beregnede årsmiddelkoncentrationer ($\mu\text{g S/m}^3$) af sulfat (SO_4^{2-}) i partikler i 1999.



Figur 5.13 Den totale tørdeposition af kvælstofforbindelser til havområderne beregnet for 1999. Tørdeposition i ton N/km² gælder kun for vandområder.



Figur 5.14 Den totale tørdeposition af kvælstofforbindelser til landområder beregnet for 1999. Tørdeposition i ton N/km² gælder kun for landområder.

5.3 Tørdeposition af kvælstof

I dette afsnit præsenteres de beregnede tørdepositioner af kvælstof-forbindelser for land- og vandoverflader for hele receptor-nettet for beregningsåret 1999. Efterfølgende præsenteres fordelingen af bidraget til tørdepositionen fra de forskellige kvælstofforbindelser.

Vand/land overflader

Figur 5.13 (til hav) og 5.14 (til land) viser den samlede tørdeposition af kvælstofforbindelser for hele receptornettet for 1999, angivet i ton N/km². Tørdepositionshastigheden afhænger i betragtelig grad af overflade-typen (se bl.a. Asman et al. 1993 og Ellermann et al. 1996). Derfor er det vigtigt at understrege, at de viste beregningsresultater i Figur 5.13 angiver tørdepositionen per arealenhed til *vandoverflader* i det pågældende gitterfelt, og tilsvarende viser resultaterne i Figur 5.14 tørdepositionen til *landoverflader*. Til beregningerne over land er der anvendt en fast typisk overfladetype, svarende til en græsmark. Dette betyder at tørdepositionen til f.eks. skovområder vil være underestimerede, men i gennemsnit for landoverflader må resultaterne vurderes at være rimeligt repræsentative.

Tørdepositionsgradienter i 1998

Resultaterne afspejler dels de danske emissionsområder over land, og dels deposition af langtransporteret partikulært bundet materiale. Langtransporteret partikulært materiale deponerer direkte eller frigives til komponenter i gasfase, som herefter deponerer. Det sidste gælder salpetersyre (fra partikulært nitrat) og i mindre omfang ammoniak (fra partikulært bundet ammoniumnitrat).

Fjorde

Primært som følge af de væsentligt højere ammoniakkoncentrationer over fjordene er tørdepositionen per arealenhed til vandoverflader i fjordområderne betydeligt højere end over det åbne hav. Eksempelvis er tørdepositionen af kvælstof til Limfjorden i 1999 beregnet til godt 0,5 ton N/km², og dermed mere end 50% højere end den tilsvarende tørdeposition til midten af det danske Nordsø-område.

Hav/land

Kvælstofdioxid deponerer stort set ikke til vandoverflader. Over land giver depositionen af kvælstofdioxid imidlertid et betydeligt ekstra bidrag til tørdepositionen, bl.a. derfor er tørdepositionen til land generelt større end til hav. Salpetersyrekoncentrationen er til gengæld lavere over land end over hav pga. reaktionen med lokalt emitteret ammoniak. Den lokalt emitterede ammoniak giver her det største bidrag til tørdepositionen over land.

Komponentfordeling

Ammoniak fra landbruget bidrager væsentligt til tørdepositionen af kvælstof til danske havområder. I gennemsnit for alle de danske farvande omfattet af beregningerne (208 i alt) udgør tørdepositionen af ammoniak lidt over 20% af den samlede tørdeposition af kvælstof. Bidraget fra ammoniak er, som tidligere nævnt, større for fjorde, vige, bugte og søer. Beregningsresultater for Limfjorden viser, at ammoniak bidrager med næsten 60% af den samlede tørdeposition af kvælstof. Ammonium bidrager yderligere med knapt 20%. Samlet for Limfjorden stammer ca. 80% af tørdepositionen af kvælstof fra landbrugsemissioner (ammoniak+ammonium). For de åbne

farvande, Nord-søen og Kattegat, udgør dette bidrag henholdsvis ca. 37% og ca. 68%.

Bidrag fra danske kilder

Resultaterne viser, at størstedelen af bidraget til tørdeposition af kvælstofforbindelser fra danske kilder stammer fra afsætning af ammoniak. Kvælstofoxiderne skal først omdannes til salpetersyre, før de tørdeponeres til vandoverflader. Bidrag fra danske kvælstofoxider er derfor for størstepartens vedkommende transporteret ud af det danske område, før det afsættes. Partikulært bundet ammonium og nitrat afsættes kun langsomt ved tørdeposition, og bidraget fra danske kilder til danske havoverflader er derfor minimalt.

5.4 Våddeposition af kvælstof

I dette afsnit præsenteres beregnede våddepositioner af kvælstofforbindelser for hele receptornettet for beregningsåret 1999. Efterfølgende præsenteres våddepositionen fordelt på bidrag fra de forskellige kvælstofforbindelser.

Fordeling af våddeposition af kvælstof i 1998

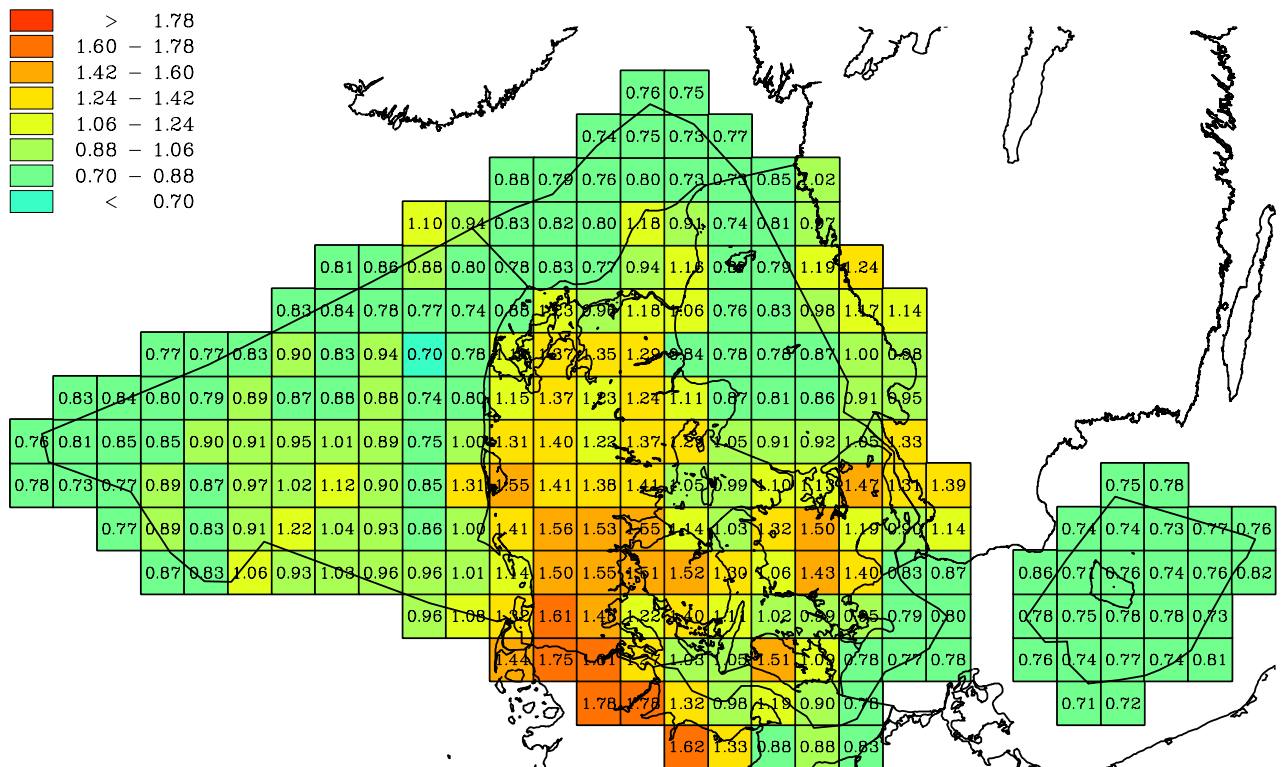
Figur 5.15 viser den samlede våddeposition af kvælstofforbindelser til hele receptornettet for 1999, angivet i ton N/km². Den observerede variation fra gitterfelt til gitterfelt afspejler for en stor del forskellene i nedbørsmængderne. Dette ses ved at sammenholde Figur 5.15 med nedbørsmængderne vist i Figur 5.16. Der er ikke her lavet en separat figur for våddeposition til land, idet våddepositionsprocessen ikke afhænger af overfladetyper (ud over den påvirkning overfladen har på selve nedbørsmængden). Derfor gælder våddepositionen for gitterfelter med såvel land som havoverflader for begge overfladetyper.

Sammenligning med resultaterne for 1998

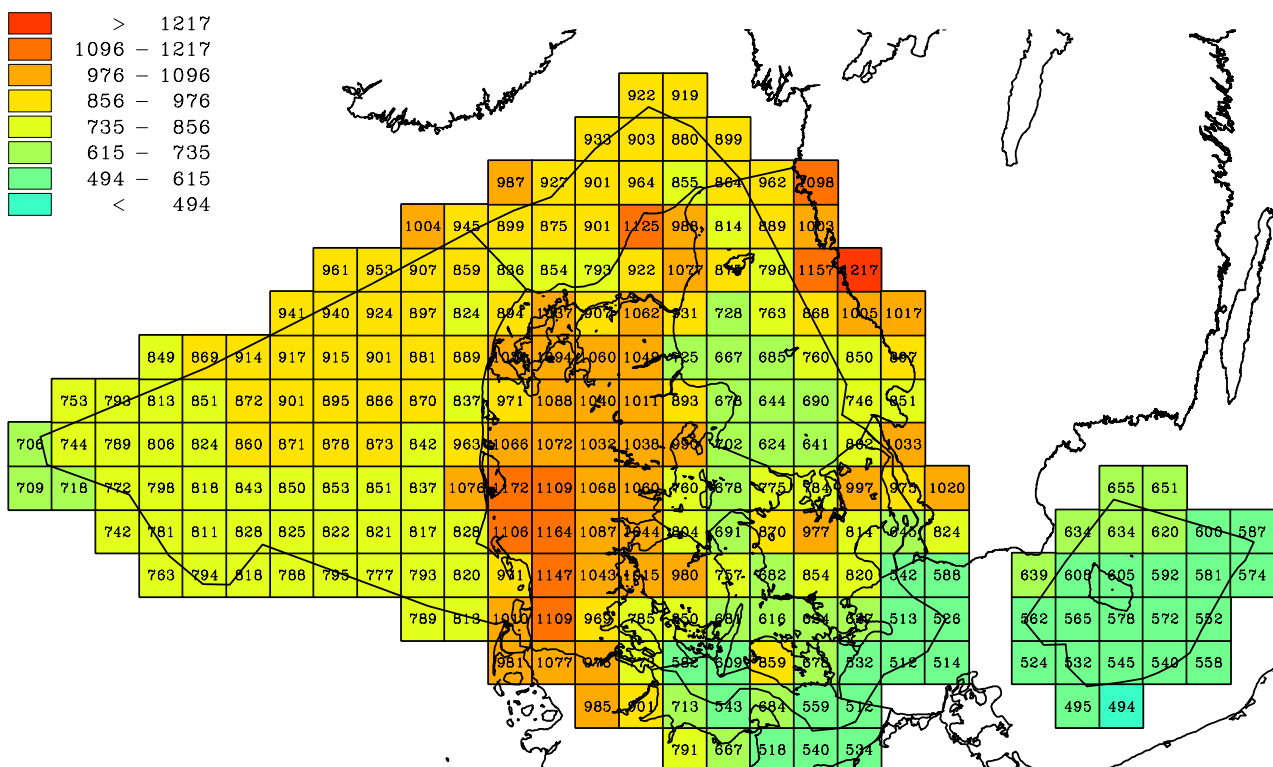
Sammenlignet med resultaterne for 1998, er de beregnede våddepositioner af kvælstof til landoverflader i 1999 ca. dobbelt så høje. Ændringerne skyldes primært forskelle mellem de to år i nedbørsmængder og deres fordeling, men det skal også bemærkes at datagrundlaget her er væsentligt forskelligt (se beskrivelsen af beregningsproceduren).

Komponentfordeling

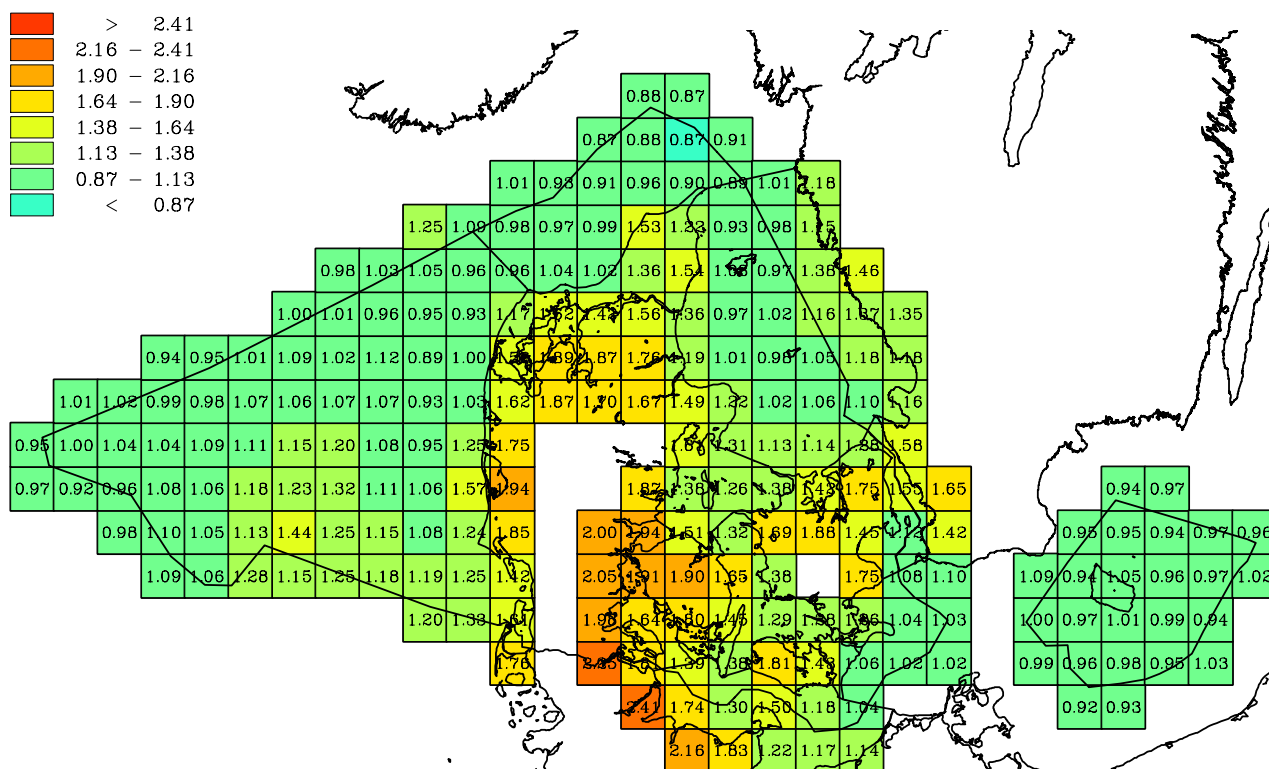
Udvaskning er den primære fjernelsesmekanisme for partikler i atmosfæren. På grund af den hurtige udvaskning under nedbørsepisoder bidrager partikulært bundet materiale væsentligt til våddepositionen af kvælstof. For våddepositionen er det generelle billede således, at partikelbundet kvælstof i form af nitrat og ammonium udgør det primære bidrag. I snit for alle de danske farvande viser beregningerne, at bidraget er 36% for ammonium og 36% for nitrat, eller samlet ca. 72% af våddepositionen af kvælstof. Denne fordeling er stort set den samme for alle farvandene, selv om det relative bidrag fra partikulært bundet kvælstof er lidt mindre for de kystnære farvande.



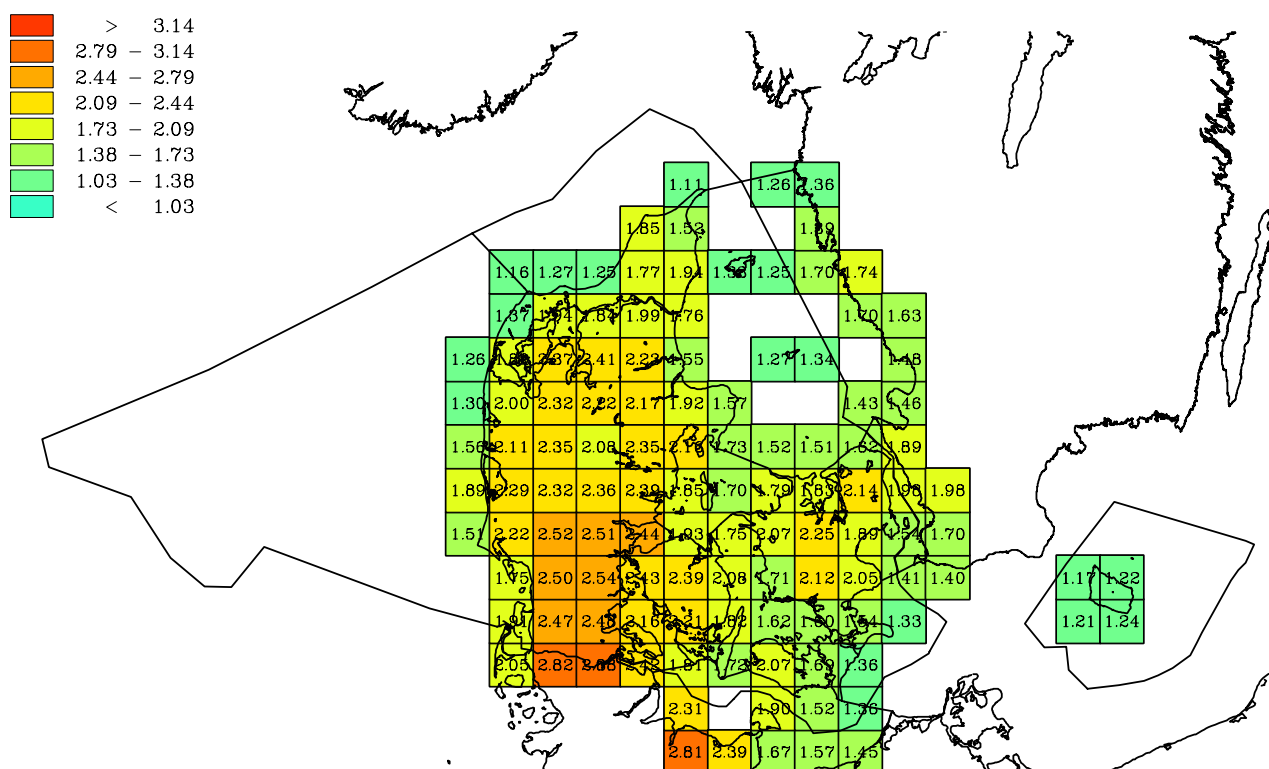
Figur 5.15 Den totale våddeposition (ton N/km²) af kvælstofforbindelser til de danske land- og havområder beregnet for 1999.



Figur 5.16 Årsnedbør (mm) til receptornettet i 1999. Nedbørsmængder fra Eta-modellen under DMU's THOR system.



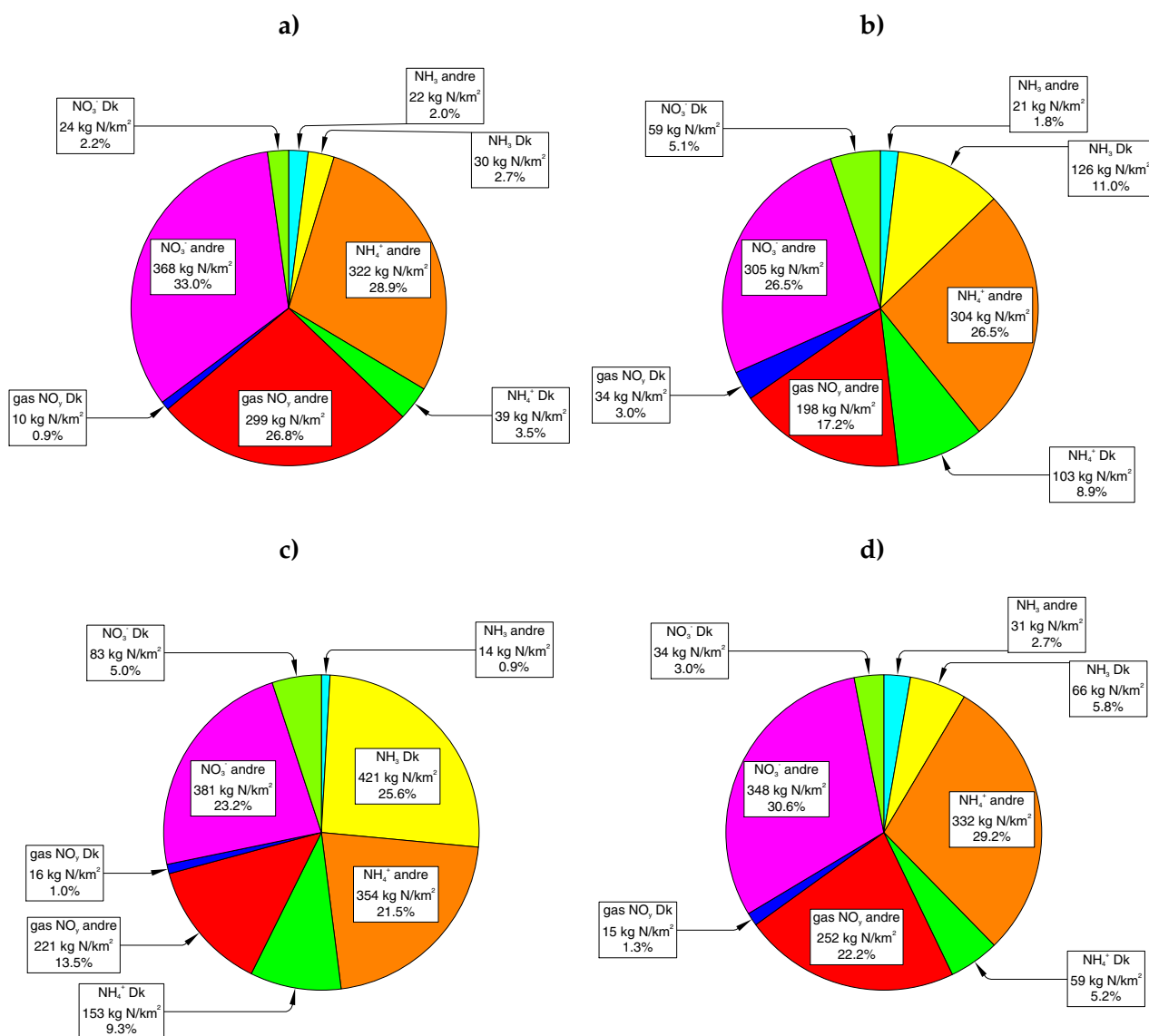
Figur 5.17 Den totale deposition (tør+våd) af kvælstofforbindelser til havområder beregnet for 1999. Depositionen i ton N/km² gælder kun for havområder.



Figur 5.18 Den totale deposition (tør+våd) af kvælstofforbindelser til landområder beregnet for 1999. Depositionen i ton N/km² gælder kun for landområder.

5.5 Totaldeposition af kvælstof

I dette afsnit præsenteres de beregnede totale depositioner af kvælstof til hele receptornettet for 1999. Efterfølgende præsenteres den samlede våd-, tør- og totaldeposition til hovedfarvandene samt fjorde, vige og bugte i 1999. Overfladearealerne for de enkelte farvandsområder stammer fra GIS-baserede data fra GEUS.



Figur 5.19 Samlet kvælstofdeposition beregnet til a) Nordsøen, b) Kattegat, c) Limfjorden og d) de samlede danske farvande i 1999. Depositionen er fordelt på bidrag fra danske og udenlandske kilder samt komponenterne ammoniak, partikulært ammonium, gasfase NO_x (kvælstofoxider (NO_x) og deres reaktionsprodukter) samt partikulært nitrat.

Fordeling af totaldepositionen af kvælstof i 1999

Figur 5.17 (til hav) og 5.18 (til land) viser den samlede kvælstofdeposition for hele receptornettet for 1999, mens Tabel 5.1 viser tør-, våd- og totaldeposition fordelt på de forskellige hovedfarvandsområder (en tabel for samtlige farvande er givet i Bilag 2). Sammenholdes Figur 5.17 med de tilsvarende figurer for tør- og våddeposition, ses det, at våddepositionen udgør ca. 75% af kvælstofdepositionen til havområderne. Derfor udvises de syd-nord

gradienter, som kan observeres i tørdepositionerne. Generelt varierer den totale kvælstofdeposition til havområder i 1999 mellem 0,9 og 2,4 ton N/km². Størst deposition til vandoverflader ses for fjorde og kystnære områder, og dette skyldes højere tørdeposition som følge af den kortere afstand til lokale ammoniakilder. Depositionen til landoverflader er generelt større (depositionen ligger mellem 2,0 og 2,5 Ton N/km²) end til hav, bl.a. fordi depositions hastigheden som følge af de meteorologiske forhold er størst over land. Dette skyldes større tørdeposition af ammoniak og et yderligere bidrag fra tørdeposition af kvælstofdioxid. Generelt for 1999 er de samlede depositioner 20 - 25% højere end de beregnede depositioner for 1998. Forskellen skyldes forskelle i vejrforholdene de to år samt muligvis højere nedbørsfrekvens i Eta-modellens meteorologiske data end i EMEP's nedbørsfelter for 1998.

Komponentfordeling

For gennemsnittet over alle danske farvande viser beregningerne, at bidraget fra landbrugssektoren (i form af ammonium og ammoniak) udgør 43%, og at bidraget fra diverse forbrændingsprocesser (i form af kvælstofoxider) udgør ca. 57% af den samlede kvælstofdeposition, se Figur 5.19. Igen er bidraget fra landbruget større for de kystnære farvande, som fx Limfjorden, hvor ammonium og ammoniak bidrager med 55%, primært pga. depositionen af ammoniak.

Tabel 5.1 Tør, våd og total atmosfærisk kvælstofdeposition til de danske hovedfarvandsområder (samt svenske del af Kattegat og Øresund). ID angiver de officielle farvandsnumre.

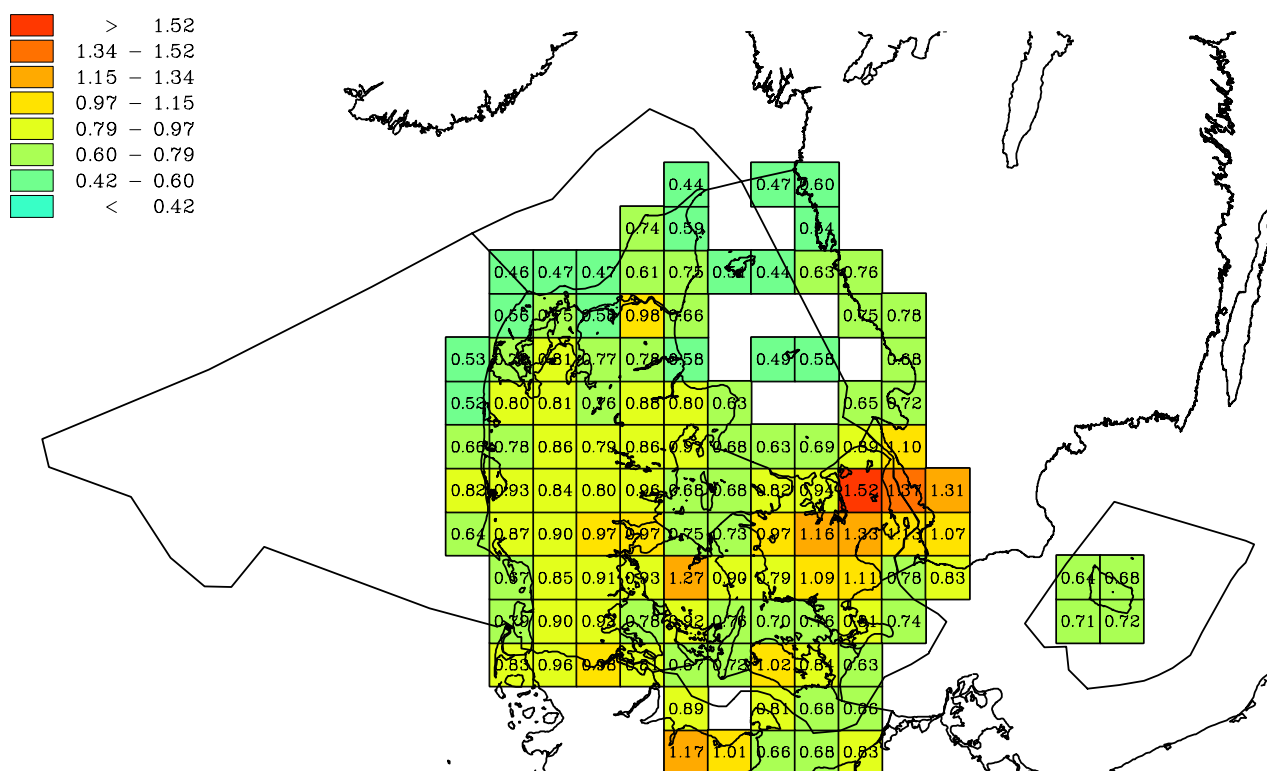
ID	Navn	Tørdepo- sition kton N	Våddepo- sition kton N	Totalde- position kton N	Totaldepo- sition/areal kg N/km ²	Areal km ²
1	Nordsøen - samlet dansk del	10,0	44,4	54,4	1114	48888
2	Skagerrak - samlet dansk del	1,8	8,1	9,9	973	10150
3	Kattegat - samlet dansk del	4,1	15,2	19,4	1150	16841
3	Kattegat, svenske del	1,3	6,6	7,9	1168	6742
4	Nordlige Bælthav	1,2	4,3	5,6	1414	3931
5	Lillebælt	1,0	3,1	4,1	1775	2321
6	Storebælt	1,4	5,0	6,5	1419	4557
7	Øresund - samlet dansk del	0,3	1,5	1,9	1349	1379
79	Øresund - svenske del	0,2	1,0	1,3	1309	959
8	Sydlig Bælthav - samlet dansk del	0,8	2,5	3,3	1321	2473
9	Østersøen - samlet dansk del	3,4	11,5	14,9	1001	14831
10	Alle danske farvande ¹	24,1	95,7	119,8	1137	105372

¹kun danske farvande, dvs. svenske dele af Kattegat og Øresund er ikke indregnet.

5.6 Beregnet svovldeposition

I dette afsnit præsenteres de beregnede totale depositioner af svovl til danske landområder for 1999. Figurer af de beregnede luftkoncentrationer blev præsenteret i kapitel 5.3. Svovl udsendes primært som svovldioxid og omdannes relativt langsomt - ca. 2 til 3% i timen. De danske kilder i byområderne slår tydeligt igennem i

luftkoncentrationerne, men der er ligeledes en tydelig nord-syd gradient. Sulfat er derimod stærkt domineret af langtransport.



Figur 5.20 Den totale deposition (tør+våd) af svovlforbindelser til landområder beregnet for 1999. Depositionen i ton S/km² gælder kun for landområder.

Resultater for 1999

Depositionen af svovl ligger på mellem 0,5 og 1,5 ton S/km², med de største depositioner over de større byer København, Århus, Odense og Aalborg. Især København og Odense slår igennem med depositioner over 1,2 ton S/km². De højere depositioner ved de største byer er et resultat af tørdeposition af svovldioxid tæt ved kildeområderne. Der ses endvidere en tydelig nord-syd gradient som er et resultat af de tilsvarende gradienter i luftkoncentrationerne.

5.7 Udvikling i kvælstofdeposition 1989 til 1999

Den seneste justering af beregningsproceduren fører til ændrede resultater ikke blot for 1999, men for alle beregningsårene. Tabel 5.2 viser nye beregninger af den totale atmosfæriske deposition af kvælstof for alle beregningsårene 1989 til 1999. For 1998 og 1999 viser resultaterne betydeligt højere depositioner end for de foregående år. Dette hænger især sammen med store nedbørsmængder disse to år. Resultaterne for 1999 er endvidere højere end for 1998, hvilket må tilskrives forskelle i vejrforholdene. Konklusionen i Frohn et al. (1998) var, at modellen underestimerede depositionen med ca. 20%. Noget andet gør sig gældende for 1999, hvor middeldepositionen anses for at være i bedre overensstemmelse med måledata, men for nogle stationer er specielt en overestimering af nedbørsmængderne med til at give en overestimering af våddepositionen. Se i øvrigt sammenligningerne mellem måledata og beregninger vist i afsnit 5.1.

Tabel 5.2 Den beregnede totale kvælstofdeposition til hovedfarvandene i perioden 1989 til 1998. Enhed er ktonN.

Navn	1989	1990	1991	1992	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999
Nordsøen - samlet dansk del	41,7	43,8	38,5	36,9	31,4	37,9	31,8	42,3	39,6	45,5	54,4
Skagerrak - samlet dansk del	8,2	11,1	9,4	9,2	6,8	9,2	7,8	7,9	9,2	9,0	9,9
Kattegat - samlet dansk del	15,2	16,6	13,4	15,7	14,7	19,2	13,9	11,8	16,8	17,4	19,4
Kattegat - svenske del	5,4	7,9	7,1	7,6	5,3	5,7	5,2	4,5	6,3	5,6	7,9
Nordlige Bælthav	4,1	4,6	3,8	3,8	3,7	3,9	3,7	3,3	4,7	5,0	5,6
Lillebælt	2,7	3,1	2,8	2,5	2,2	1,9	2,3	2,4	2,8	3,0	4,1
Storebælt	4,8	5,8	5,4	4,7	4,1	3,8	4,3	4,2	5,4	5,7	6,5
Øresund - samlet dansk del	1,2	1,2	1,4	1,2	1,3	1,4	1,2	1,0	1,3	1,4	1,9
Øresund - svenske del	0,8	0,8	0,9	0,8	0,9	0,9	0,8	0,7	0,9	0,9	1,3
Sydlig Bælthav - samlet dansk del	2,5	2,9	2,7	2,3	2,1	1,8	2,5	2,0	2,6	2,7	3,3
Østersøen - samlet dansk del	13,3	16,0	15,1	14,2	11,1	11,1	12,1	10,7	13,6	14,7	14,9
Alle danske farvande	93,4	105,1	92,5	90,4	77,4	90,2	79,4	85,4	96,0	104,5	119,8

5.8 Kilder til kvælstofdeposition

Betydning af danske kilder

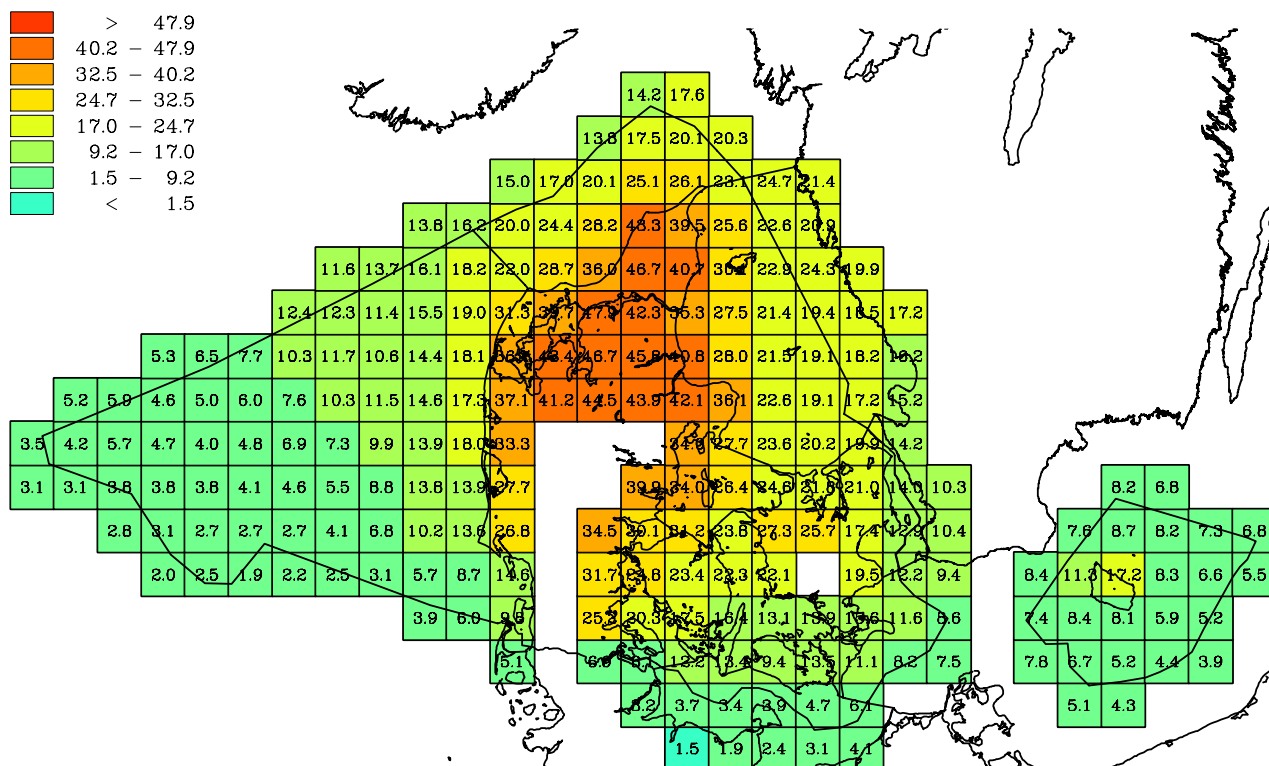
I forbindelse med et af delprojekterne under DMU's IMIS-program (Integrerede Miljøinformationssystemer) er der foretaget en vurdering af danske kilders bidrag til atmosfærisk kvælstofdeposition til danske marine farvande i 1995 (Hertel, Frohn 1997). I forbindelse med overvågningsprogrammet er der gennemført tilsvarende beregninger for hele perioden 1989 til 1998. Bidraget fra danske kilder er bestemt ved at sammenholde beregninger gennemført med og uden danske kildebidrag. Det relative bidrag fra danske kilder er beregnet ved:

$$R_{dk} = \frac{dep - dep_{udk}}{dep} \cdot 100\%$$

hvor R_{dk} er det relative bidrag fra danske kilder (i procent), og dep og dep_{udk} er depositionen beregnet hhv. med og uden bidrag fra danske kilder.

År til år variation

Resultaterne viser, at bidraget fra danske kilder kun varierede minimalt fra år til år i perioden 1989 til 1999. Det største bidrag fra danske kilder til kvælstofdepositionen er fundet for fjorde, vige og bugte som ligger tæt ved de danske emissionsområder. Siden den fremherskende vindretning i Danmark er fra vest og nordvest, er bidraget fra danske kilder betydeligt mindre for den danske del af Nordsøen end for farvandene øst for Jylland. Fra den jyske kyst (20 til 25%) og ud til den vestligste del af det danske Nordsøområde (2 til 3%) ses en betydelig gradient i bidraget fra danske kilder, se Figur 5.21, som viser resultaterne for 1999.



Figur 5.21 Det relative bidrag fra danske kilder til den samlede kvælstofdeposition til danske havoverflader i 1999.

Salpetersyre stiger

Koncentrationen og dermed også depositionen af salpetersyre stiger når de danske kilder sættes til nul (figuren er ikke vist her). Dette resultat kan betragtes som lidt af et kuriosum, men det illustrerer imidlertid ganske godt kompleksiteten af atmosfærens kvælstofkemi. Årsagen er, at luftens salpetersyre fjernes hurtigt, når luftmassen passerer ind over de danske landbrugsområder med høje ammoniak-emissioner. De danske udslip af kvælstofoxider (NO_x summen af NO og NO_2) bidrager meget lidt til kvælstofdepositionen til hav, fordi omdannelsen af NO_2 til salpetersyre (ved reaktion med OH radikal) kun forløber med ca. 5% i timen. Det betyder, at hovedparten af kvælstofoxiderne udsendt fra danske kilder allerede har passeret de danske farvande, før denne omdannelse har fundet sted.

Kattegat

I forbindelse med det danske havforskningsprogram Hav90, blev bidraget fra danske kilder til kvælstofdepositionen til Kattegat estimeret til ca. 20% for 1990 (Asman et al. 1994; 1995). Beregningerne præsenteret i Hertel og Frohn (1997) giver et noget højere bidrag på ca. 30%, hvilket ikke er væsentligt forandret med de nye beregninger (ca. 28%, se Tabel 5.3). I alle 3 tilfælde er resultaterne fremkommet ved beregninger med ACDEP, men med forskellige versioner af modellen. Forskellen i kvælstofdepositionen skyldes primært beskrivelsen af tørdepositionen af partikler, som siden Hav90 er blevet lettere modificeret (se beskrivelsen i Ellermann et al. 1996) samt i ændringen af beregningsproceduren. Beregningerne viser ingen klar tendens i udviklingen i bidraget fra de danske kilder.

Tabel 5.3 Det relative bidrag fra danske atmosfæriske kilder til tør, våd og total atmosfærisk kvælstof-deposition for de danske hovedfarvande i 1999.

ID	Navn	Andel fra danske kilder (%)		
		Tørdeposition	Våddeposition	Totaldeposition
1	Nordsøen samlet dansk del	15,2	7,9	9,2
2	Skagerrak - samlet dansk del	33,1	23,3	25,1
3	Kattegat - samlet dansk del	48,1	22,5	28,0
4	Nordlige Bælthav	53,7	23,0	29,7
5	Lillebælt	44,1	12,8	20,4
6	Storebælt	41,7	10,3	17,3
7	Øresund - samlet dansk del	31,4	11,7	15,3
8	Sydlig Bælthav - samlet dansk del	19,0	3,5	7,1
9	Østersøen - samlet dansk del	18,5	5,9	8,8
10	Alle danske farvande	27,7	12,2	15,3

5.9 Fremtidige tiltag i forhold til ACDEP

Der arbejdes løbende på at forbedre modelberegningerne inden for Det Danske Baggrundsovervågningsprogram. Inden for den nærmeste fremtid planlægges en række konkrete tiltag, som gerne skulle føre til bedre beregningsresultater.

Højere opløsning i emissioner

En ny emissionsopgørelse på 16,67 km x 16,67 km for hele EMEP området er venligst stillet til rådighed af Uwe Swartz fra Universitetet i Stuttgart. Denne opgørelse, som ligeledes har en meget høj tidslig opløsning, vil blive implementeret i forbindelse med næste års beregninger, hvilket burde føre til yderligere forbedringer i resultaterne. I de nuværende beregninger er emissioner fra skibsfart ikke medtaget, men disse vil naturligvis blive inkluderet ved samme revision. EMEP's beregninger viser at skibsfart bidrager ganske væsentligt med hhv. 15 og 20% af depositionen af svovl og kvælstof i Europa.

Præsentation på DMU's hjemmeside

En hjemmeside på internet for de præsenterede ACDEP-beregninger er etableret, men vil blive forbedret i de kommende måneder. Tabeller og figurer fra overvågningsrapporten for atmosfæren kan ses og "down loades" herfra.

Løbende beregninger under THOR systemet

På længere sigt vil ACDEP blive indbygget direkte i DMU's THOR system og data vil herefter løbende blive lagt ud på DMU's hjemmeside. Prognosesystemet bliver kørt fire gange i døgnet og resultaterne præsenteres på DMU's hjemmeside. Implementeringen af ACDEP i THOR systemet vurderes at ligge klar ultimo 2000 eller primo 2001. Beregningerne vil formentlig blive gennemført med en tidslig opløsning på en time i stedet for de nuværende beregninger for hver sjette time.

Fordeling af partikelstørrelser

I ACDEP-modellen skelnes ikke mellem forskellige størrelser af partikler, hvilket har betydning for beskrivelsen af overgangene mellem forbindelser i gasfase og partikelfase, og ikke mindst for depositionen af partikulært bundet materiale. Til eksempel kan nitrat og ammonium i en given luftmasse være til stede i forskellige størrelser af partikler, og dermed afsættes med forskellig hastighed. En række aktiviteter er imidlertid iværksat for i fremtiden at udvide modellen med disse ting (se bl.a. Vignati 1998). Modellen er endvidere klargjort til at kunne beregne depositionshastigheder for forskellige partikelstørrelser.

Udslip fra lave kilder

Med den tredje modelændring, hvor kemi og vertikal transport rent matematisk blev løst samlet, er det blevet muligt at beskrive lokale udslip bedre. I modellen antages det, at udslip fra lave kilder med det samme spredes op til 80 m. I en testversion af modellen blev dette ændret til 20 m, men en nærmere analyse af betydningen af denne ændring var tidsmæssigt ikke mulig. Dette arbejde vil blive fortsat i perioden frem til næste rapportering.

[Tom side]

6 Konklusion

Dette kapitel sammenfatter de vigtigste konklusioner fra dette års rapportering af atmosfæredelen af NOVA 2003 og opsummerer hovedresultaterne vedrørende måling og beregning af koncentrationer af atmosfæriske kvælstof-, fosfor- og svovlforbindelser og deposition af disse til danske hav- og landområder for 1999.

Igen i 1999 blev koncentrationer og depositioner bestemt på basis af en kombination af målinger og modelberegninger for derved at udnytte fordelene ved metoderne bedst muligt. Konklusioner vedrørende:

- aktuelle koncentrationsniveauer ved målestationerne,
- depositionen ved målestationerne,
- sæsonvariationer og
- udviklingstendenser for koncentrationer og depositioner

er således hovedsageligt baseret på målingerne, som også er anvendt til vurdering af resultaterne fra modelberegningerne. Beregninger og konklusioner vedrørende:

- depositioner til de enkelte farvands- og landområder,
- kildefordeling og
- det danske bidrag

baseres på modelberegningerne, som netop anvendes for at kunne ekstrapolere resultaterne fra de enkelte målestationer ud til større geografiske områder og for at kunne vurdere bidraget fra forskellige kilder.

Kvælstofdeposition til farvande

For 1999 viser modelberegningerne, at den samlede kvælstofdeposition til de danske farvande, fjorde, vige og bugte varierer fra 0,9 til 1,9 ton N/km² med et gennemsnit på omkring 1,1 ton N/km² (se Figur 5.17). Dette giver en samlet kvælstofdeposition til de danske farvandsområder på 120 ktons N. En mere detaljeret opgørelse af deposition opdelt på de forskellige danske farvandsområder, fjorde, vige og bugte er givet i Tabel 5.1 og i Bilag 2. Depositionen er størst til fjorde og kystnære områder. Tidligere var den beregnede deposition til den nordlige del af Nordsøen og den nordvestlige del af Skagerrak også meget høj, men ændringer i de nedbørsdata, som anvendes til modelberegningerne, har imidlertid reduceret depositionen i den nordlige del af Nordsøen og Skagerrak. Dette vurderes at give et bedre billede af den egentlige deposition. Endvidere ses en gradient i kvælstofdepositionen med højest deposition i syd og lavest i nord. Kvælstofdepositionen til de danske farvande fordeles med 80 % tilført som våddeposition og 20 % som tørdeposition. Andelen af våddeposition er lidt højere i forhold til tidligere år og dette er forårsaget af mere nedbør i 1999.

Kvælstofdeposition til landområder

Kvælstofdepositionen til landområderne ligger mellem 1,1 og 2,8 ton N/km², med højest deposition i den sydvestlige del af landet og med lavest deposition i den nordlige del og på Bornholm. For landet som

helhed beregnes en kvælstofdeposition på 90 ktons N. Variationen i depositionen skyldes fordelingen af nedbørsmængde, forskelle i afstand til områder med høje emissioner i den nordlige del af det europæiske kontinent og intensitet af husdyrbrug og dermed ammoniakemissionen på mere lokal skala. Depositionen er generelt højere til land end til vand, hvilket primært skyldes deposition af ammoniak fra lokale landbrug og større deposition af kvælstofdioxid til landoverflader end til vandoverflader.

Landområder + farvande

Den samlede deposition af kvælstof til danske landområder og farvande i 1999 bliver sammenlagt 210 ktons N, hvilket betyder at depositionen er af samme størrelse som emissionen. For 1998 er den samlede emission af kvælstof estimeret til 160 ktons N (Vestreng og Stören 2000).

Fosfordeposition og udviklingstendenser

Det estimeres at den uorganiske fosfordeposition til de Indre Danske Farvande (areal 31.500 km²) er på ca. 255 tons P i 1999. Estimatet angiver en øvre grænse og er fremkommet ud fra en vurdering af, at der ikke er sket ændringer i fosfordepositionen fra atmosfæren i forhold til de sidste år. Denne vurdering støttes af målingerne af luftens indhold af partikulært bundet fosfor og af målinger udført af Fyns Amt.

Svovldeposition

For svovlforbindelserne er der for 1999 kun præsenteret beregninger af den samlede deposition til landområder. Disse beregninger viser at svovldepositionen varierer mellem 0,4 og 1,5 tons S/km² med de højeste depositioner omkring de større byer og i de områder, hvor det regner meget.

Udviklingstendenser for tørdeposition af kvælstof og svovl

Den årlige tørdeposition af kvælstof- og svovlforbindelser følger i store træk koncentrationsniveauerne således at lavt koncentrationsniveau giver lav tørdeposition og vice versa. Derfor vurderes udviklingstendenserne i tørdepositionen på basis af udviklingen i de målte koncentrationsniveauer. Målingerne for 1999 viser at koncentrationsniveauerne for kvælstofforbindelserne var lidt højere end i 1998, mens der for svovlforbindelserne måles samme koncentrationsniveau i 1999 som i 1998. Målingerne for 1999 giver ingen ændringer i det generelle billede af udviklingstendenserne for perioden 1989-1999:

- Generelt set er der ikke sket nogen signifikant ændring i årsmiddelkoncentrationen af ammoniak på målestationerne. Om dette gælder for Danmark som helhed er vanskeligt at vurdere, fordi der er store forskelle mellem målestationerne. Ved Ulborg og Keldsnor måles en lille stigning i årsmiddelværdierne og ved Tange, Anholt og Frederiksborg måles fald i koncentrationen, men det er kun ved Tange, at faldet er signifikant.
- For årsmiddelkoncentrationen af partikulært bundet ammonium måles et signifikant fald. Faldet ligger for alle målestationer på 32-38 % for perioden 1989-1999.
- For årsmiddelkoncentrationen af sum-nitrat observeres et signifikant fald på fem ud af de seks målestationer. Faldet ligger på 13-26 % for perioden 1989-1999.

- For svovlforbindelserne måles et stort signifikant fald i årsmiddelværdierne på alle målestationer. I perioden 1989-1999 måles fald på ca. 70-90 % for svovldioxid og 46-63 % for partikulært bundet sulfat.

Da ændringerne i koncentrationerne af partikulært bundet ammonium, sum-nitrat og svovlforbindelserne er meget ens på målestationerne gælder de målte reduktioner formentligt for landet som helhed.

En stor del af svovldioxid og den partikulært bundne kvælstof og svovl langtransporteres til Danmark fra den nordlige del af det europæiske kontinent. Faldet i koncentrationerne og dermed tørdepositionen af disse forbindelser følger stort set udviklingen i EMEP's opgørelser for emissionen af kvælstof og svovl i den nordlige del af det europæiske kontinent. Da lokale danske kilder også påvirker koncentrationsniveauerne har reduktionen i emissionen af svovl og kvælstof i Danmark også betydning. Udviklingen for kvælstofdioxid er endnu ikke vurderet statistisk grundet datamaterialets begrænsede omfang.

Udviklingstendens for våddeposition

I 1999 er der på alle stationerne målt en våddeposition på niveau med eller lidt højere end i 1998 (varierer lidt fra målestation til målestation). Dette er også forventet, da nedbørsmængden viser tilsvarende forskel mellem de to år. For hele perioden 1989-1999 måles meget forskellig våddeposition fra år til år, hvilket skyldes de store forskelle i den årlige nedbør. For ammonium og nitrat observeres en tendens til et svagt fald i våddepositions-mængden, men faldet er ikke signifikant. For sulfat måles til gengæld et stort signifikant fald på 33-51 % i perioden fra 1989-1999. Årsagen til det store fald er, som for koncentrationsniveauerne af svovlforbindelser, det store fald i svovlemissionerne i Danmark og resten af Europa.

Samlet deposition

Da våddepositionen af kvælstofforbindelserne udgør størstedelen af den samlede deposition vurderes, at der i perioden 1989-1999 har været et lille fald i depositionerne til de danske land- og vandområder. Denne vurdering skal tages med forbehold for, at faldet formentligt ikke er statistisk signifikant, og at variationerne fra år til år kan være større end det samlede fald gennem hele perioden. For svovlforbindelserne måles store og signifikante fald i både våd- og tørdepositionen. Den samlede deposition af svovlforbindelserne er derfor i den forløbne periode reduceret til omkring halvdelen af niveauet i 1989.

Sæsonvariation af koncentrationer

For hovedparten af de målte forbindelser ses en sæsonvariation, som primært er bestemt af sæsonvariationer i emissioner, fysisk og kemisk omdannelse og transport i atmosfæren. Det generelle billede af sæsonvariationerne kan sammenfattes til følgende:

- Ammoniakkoncentrationen er lavest om vinteren, højest forår og efterår og med lidt lavere koncentrationer om sommeren i forhold til koncentrationen forår og efterår. Årsagen hertil er primært sæsonvariation i den lokale landbrugspraksis, idet ammoniak i atmosfæren primært stammer fra landbruget, hvor navnlig ud-

bringning af husdyrgødning spiller en stor rolle. Sæsonvariation i de meteorologiske forhold er dog også en vigtig faktor.

- Koncentrationen af partikulært bundet ammonium har maksimum i det tidlige forår og et lokalt maksimum i oktober. Årsagen hertil er samspillet mellem sæsonvariation i udslip af ammoniak, dannelse af ammoniumholdige partikler samt transportprocesserne, som er ansvarlige for langtransport af ammonium fra den nordlige del af det europæiske kontinent til Danmark.
- For kvælstofdioxid måles højest koncentration i vinterhalvåret. Kvælstofoxider emitteres i forbindelse med forbrændingsprocesser og emissionerne er størst i vinterhalvåret pga. opvarmning. Spredningsforhold er dog også en vigtig faktor.
- For sum-nitrat (hovedsageligt partikulært bundet nitrat) ses fuldstændig samme billede som for partikulært bundet ammonium. Her er det blot sæsonvariation af emission af kvælstofoxider i kombination med oxidation til salpetersyre/nitrat, der har betydning. Transportprocesserne har ligeledes en vigtig rolle ved forklaring af den observerede sæsonvariation i Danmark.
- For svovldioxid observeres, som gennemsnit for perioden 1989-1999, en meget klar sæsonvariation med højest koncentration om vinteren. Svovldioxid stammer primært fra emissioner i forbindelse med forbrænding af svovlholdigt brændstof og lige som for kvælstofdioxid er emissionen derfor højest i vinterhalvåret. Sæsonvariationen ses tydeligt i gennemsnittet for perioden 1989-1999. For 1999 måles imidlertid ingen udpræget sæsonvariation, hvilket kan skyldes de meteorologiske forhold og/eller en ændring i sæsonvariationen af emissionerne.
- For partikulært sulfat observeres ingen udpræget sæsonvariation, hvilket ellers kunne have været forventet ud fra sammenligning til de partikulært bundne kvælstofforbindelser. Årsagen er formentlig, at sulfat udover de menneskeskabte udslip ligeledes har andre kilder (havsalt og algenedbrydning), som har fået relativt mere betydning efter de store reduktioner i emissionen af menneskeskabt svovldioxid. Endvidere er der også betydelige forskelle i de kemiske processer, som fører til dannelse af de partikulært bundne forbindelser.

Sæsonvariation af våddeposition

For nitrat og sulfat ses ingen tydelig sæsonvariation, men der er dog tendens til at våddepositionen følger sæsonvariationen af nedbøren, der for perioden 1989-1999 var størst efterår og vinter og lavest forår og sommer. Den gennemsnitlige sæsonvariation af både nedbørsmængde og våddeposition af nitrat og sulfat er dog lille set i forhold til forskellene fra år til år, ligesom der er store geografiske forskelle. For ammonium ses en mere tydelig sæsonvariation med højest våddeposition i sommerhalvåret. Årsag hertil er, at ammoniak let optages i vanddråber i atmosfæren, og at ammoniakkoncentrationen er høj i sommerhalvåret. Denne effekt spiller tydeligvis en lige så vigtig rolle, som variationerne i selve nedbørsmængden. Sæsonvariation for våddeposition af ammonium kan være vigtig i forbindelse med algeopblomstringer, da det netop er i sommerhalvåret, at den atmosfæri-

ske deposition relativt betyder mest i forhold til andre tilførsler til de danske farvande.

Kilder til kvælstofdeposition

Den atmosfæriske deposition af kvælstof til danske farvande stammer i 1999 stort set ligeligt fra landbrug (ca. 40 %) og forbrændingsprocesser (ca. 60 %). For områder tæt på landbrug ses dog et lidt højere bidrag fra landbruget. Således bidrager landbrugskilder med godt 60 % af depositionen til Limfjorden og godt 50 % af depositionen til Kattegat, mens diverse forbrændingsprocesser er kilde til resten. Af den samlede deposition til farvande bidrager danske kilder med 28 % til Kattegat og 9 % til Nordsøen. Derimod udgør det danske bidrag mere end 40 % for nogle fjorde, vige og bugte. Det høje danske bidrag i disse områder skyldes helt overvejende deposition af lokalt emitteret ammoniak. I gennemsnit udgør det danske bidrag omkring 15 % af den atmosfæriske kvælstoftilførsel til de danske farvande. For depositionen til landområderne vil de lokale danske kilder slå endnu stærkere igennem.

Kilder til svovldioxid- og sulfatdeposition

Kilder til deposition af svovl i Danmark er primært diverse forbrændingsprocesser. Dog kommer en mindre del af sulfat fra havsalt og nedbrydning af alger. Den danske del af kilderne til depositionen af svovl er ikke blevet præsenteret i forbindelse med dette års rapportering.

Usikkerhed på beregningerne

Usikkerheden på beregning af deposition af kvælstof til de danske farvande er meget svær at bestemme. På nuværende tidspunkt skønnes usikkerheden, lige som i tidligere rapporter, at ligge på 30-40 % for de åbne farvande og 40-60 % for kystnære farvande. For depositionerne til land er usikkerheden skønnet til at være op til en faktor 2 på den årlige depositionen. Det vurderes at revisionen af modellen og de nye meteorologiske data har givet en forbedring af resultaterne af modelberegningerne. Data fra et år er imidlertid ikke nok til at vurdere om de bedre resultater var tilfældigheder for 1999. Effekten af ændringerne af modellen vil derfor blive kvantificeret når der foreligger en længere tidsserie med den reviderede model og nye meteorologiske data. Endvidere skal det nævnes at emissioner fra skibe endnu ikke er inkluderet i beregningerne. Dette forventes gjort snarligt og dette forventes at give anledning til en mindre forøgelse af depositionerne.

[Tom side]

Referencer

- Andersen, H.V., Hilbert, G. 1993: Measurements of $\text{NH}_3/\text{NH}_4^+$ and $\text{HNO}_3/\text{NO}_3^-$ by denuder and filterpack. National Environmental Research Institute. NERI Technical Report No. 73, 67 pp.
- Asman, W.A., Hertel, O., Berkowicz, R., Christensen, J., Runge, E.H., Sørensen, L.L., Granby, K., Nielsen, H., Jensen, B., Gryning, S.E., Sempreviva, A.M., Larsen, S.E., Hummelshøj, P., Jensen, N.O., Allerup, P., Jørgensen, J., Madsen, H., Overgaard, S., Vejeb, F. 1995: Atmospheric Nitrogen input to the Kattegat Strait. *Ophelia*, 42: 5 - 28.
- Asman, W.A.H., Berkowicz, R., Christensen, J., Hertel, O., Runge, E. 1994: Atmosfærisk tilførsel af kvælstofforbindelser til Kattegat. København: Miljøstyrelsen. Havforskning fra Miljøstyrelsen, nr. 37, 115s.
- Asman, W.A.H., Jensen, P.K. 1994: Processer for våddedposition. Miljøstyrelsen, København. 110 s. - Havforskning fra Miljøstyrelsen, nr. 26.
- Asman, W.A.H., Runge, E.R., Kilde, N.A. 1993: Emission af NH_3 , NO_x , SO_2 og NMVOC til atmosfæren i Danmark. København: Miljøstyrelsen. Havforskning fra Miljøstyrelsen, nr. 19, 108 s.
- Bendixen, I., Krüger, A. 2000: Atmosfærisk nedfald 1999. VAND-MILJØovervågning - Odense: Fyns Amt. 36s.
- Brandt, J., Christensen, J.H., Frohn, L.M., Berkowicz, R., Palmgren, F. 2000: The DMU-ATMI THOR air pollutionforecast system - System description. National Environmental Research Institute, Roskilde, Denmark. 60 pp. - NERI Technical report No. 321.
- Cappelen, J. 2000a: Det danske vejr 1999 med tillæg af Tórshavn på Færøerne og Nuuk i Grønland. *Vejret* 83: 1-15.
- Cappelen, J. 2000b: The climate of Denmark - Key Climatic Figures, 1990-99. Danish Meteorological Institute, Copenhagen, Denmark, 47 pp. - Technical report (Online) 00-08.
- Chen, L., Arimoto, R., Duce, R.A. 1985: The sources and forms of phosphorus in marine aerosol particles and rain from northern New Zealand. *Atmospheric Environment* 19: 779 - 787.
- Cole, J.J., Caraco, N.F., Likens, G.E. 1990: Short-range atmospheric transport: A significant source of phosphorus to an oligotrophic lake. *Limnol. Oceanogr.* 35: 1230 - 1237.
- Daaijers, G. 1993: The variability of atmospheric deposition to forests. - Utrecht, Holland: Faculty of Geographical Sciences, University of Utrecht.
- Ellermann, T., Hertel, O., Kemp, K., Manscher, O., and Skov, H., 1997. Vandmiljøplanens Overvågningsprogram 1996, Atmosfærisk

deposition af kvælstof. Danmarks Miljøundersøgelser. Roskilde. 88s. - Faglig rapport nr. 212.

Ellermann, T., Hertel, O., Skov, H., Manscher, O.H. 1996: Atmosfærisk deposition af kvælstof. Målemetoder og modelberegninger. Danmarks Miljøundersøgelser. Faglig rapport fra DMU, nr. 174, 57s.

Frohn, L., Skov, H., and Hertel, O. 1998. Atmosfærisk deposition af kvælstof. Vandmiljøplanens Overvågningsprogram 1997. Roskilde : Danmarks Miljøundersøgelser. 97s. - Faglig Rapport nr. 255.

Gery, M.W., Whitten, G.Z., Killus, J.P. 1989: Development and testing of the CBM-IV for urban and regional computer modelling. Research Triangle Park, North Carolina: US. EPA - EPA-600/3-88-012.

Gibson, C.E., Wu, Y., Pinkerton, D. 1995: Substance budgets of an upland catchment: the significance of atmospheric phosphorus inputs. *Freshwater Biology* 33: 385 - 392.

Graham, W.F., Duce, R.A. 1982: The atmospheric transport of phosphorus to Western North Atlantic. *Atmospheric Environment* 16: 1089 - 1097.

Grundahl, L, Grønbech, J. 1990: Atmosfærisk nedfald af næringssalte i Danmark. København : Miljøstyrelsen. 60s. - NPO-forskning fra Miljøstyrelsen, Nr. A6.

Hertel O., Frohn L. 1997: Nitrogen deposition to Danish waters 1989 to 1995 - estimation of contribution from Danish sources. National Environmental Research Institute. NERI Technical Report No. 215.

Hertel, O. 1995: Transformation and deposition of Sulphur and Nitrogen Compounds in the Marine Boundary Layer. Dr. Scient Thesis. National Environmental Research Institute. 215 pp.

Hertel, O., Christensen, J., and Hov, Ø., 1994: Modelling the end products of the chemical decomposition of DMS in the marine boundary layer. *Atmospheric Environment*, 28A, 13, 2431-2450.

Hertel, O., Christensen, J., Runge, E.H., Asman, W.A.H., Berkowicz, R., Hovmand, M.F., Hov, Ø. 1995: Development and Testing of a new Variable Scale Air Pollution Model - ACDEP. *Atmospheric Environment* 29: 1267 - 1290.

Hovmand, M., Kemp, K. 2000: Tungmetal deposition i Danmark, 1999. Roskilde : Danmarks Miljøundersøgelser. - Faglig rapport fra DMU, nr. 331.

Hovmand, M.F., Grundahl, L., Runge, E., Kemp, K., Aistrup, W.A. 1993: Atmosfærisk deposition af kvælstof og fosfor. Vandmiljøplanens Overvågningsprogram 1992. Danmarks Miljøundersøgelser. Faglig rapport fra DMU, nr. 91, 96s..

Kemp, K., Palmgren, F. 2000: The Danish Air Quality Monitoring Programme. Annual Report for 1999. National Environmental Re-

search Institute, Roskilde, Denmark. - NERI Technical Report, Under preparation.

Kerminen, V.-M., Pakkanen, T.A., Hillamo, R.E. 1997: Interaction between inorganic trace gases and supermicrometer particles at a coastal site. *Atmospheric Environment* 31: 2753 - 2765.

KNMI/RIVM. 1990: Netherlands Precipitation Chemistry Network. Monitoring results 1988. - De Bilt, Holland: National Institute of Public Health and Environmental Protection, Bilthoven and Royal Netherlands Meteorological Institute.

Mylona, S. 1996: Emissions; the collation and nature of the emission data. In.: Barrett, K., Berge, E. (eds.): *Transboundary Air Pollution in Europe. Part 1: Estimated dispersion of acidifying agents and of near surface ozone*. Oslo: Meteorological Synthesizing Centre-West, Norwegian Meteorological Institute - EMEP/MSC-W Report 1/96: 23 - 56.

Pareja, B.L., Artola, C.G., Vera, F.L. 1994: Contribution of nitrogen and phosphorus by precipitation in the drainage basin of the Santillana Reservoir (Madrid). *Environmental Geology* 23: 99 - 104.

Scharling, M., 1998. Klimagrid Danmark, Nedbør 10*10 km, Metodebeskrivelse. Danish Meteorological Institute, Ministry of Transport, Copenhagen. 16 pp. - Technical Report 98-17.

Skov, H., Egeløv, A.H., Granby, K., and Nielsen, T. 1997. The Relation of ozone with other Photochemical Products. *Atmospheric Environment* 5: 685 - 691.

Skov, H., Ellermann, T., Hertel, O., Manscher, O. H., Frohn, L.M. 1996: Vandmiljøplanens Overvågningsprogram, 1995, Atmosfærisk deposition af kvælstof. Hovedrapport og Bilagsrapport, Danmarks Miljøundersøgelser. Faglig rapport nr. 173, 85s

Skov, H., Hertel, O., Ellermann, T., Skjøth, C.A., Heidam, N.Z. 1999: Atmosfærisk deposition af kvælstof 1998. NOVA 2003. Danmarks Miljøundersøgelser, Roskilde. 102 s. - Faglig rapport fra DMU, nr. 289.

Sorteberg, A., Hov, Ø., Solberg, S., Tørseth, K., Areskoug, H., Ferm, M., Granby, K., Lättala, H., Persson, K., and Simpson, D., 1998: Gaseous and Particulate Oxidized and Reduced Nitrogen Species in the Atmospheric Boundary Layer in Scandinavia in Spring. *J. Atm. Chem.*, 30, 241-271.

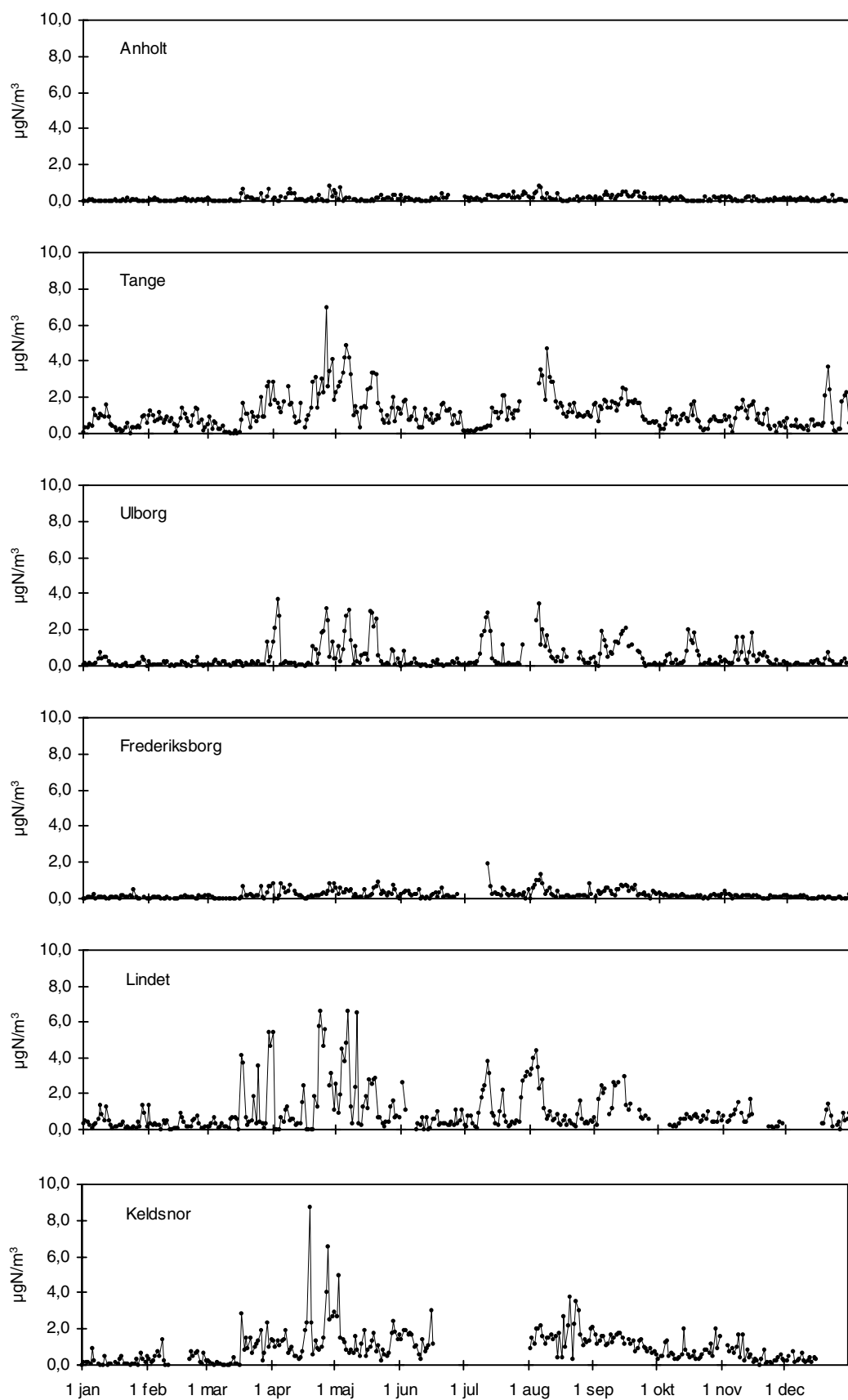
Vestreng, V., Støren, E. 2000: Analysis of UNECE/EMEP Emission Data, MSC-W Status Report 2000. Chemical Co-ordination Centre of EMEP, Norwegian Institute for Air Research, Kjeller, Norway. 62 pp. - EMEP/MSC-W Note 1/00.

Vignati, E. 1998: Modelling gas phase - particle phase interaction. In Hertel, O., Zlatev, Z., Larsen, S., Mikkelsen, T. (Eds.) *proceeding of the SNF workshop on modelling physical and chemical processes of the atmosphere*, Svalholm, Risø, Feb. 1998.

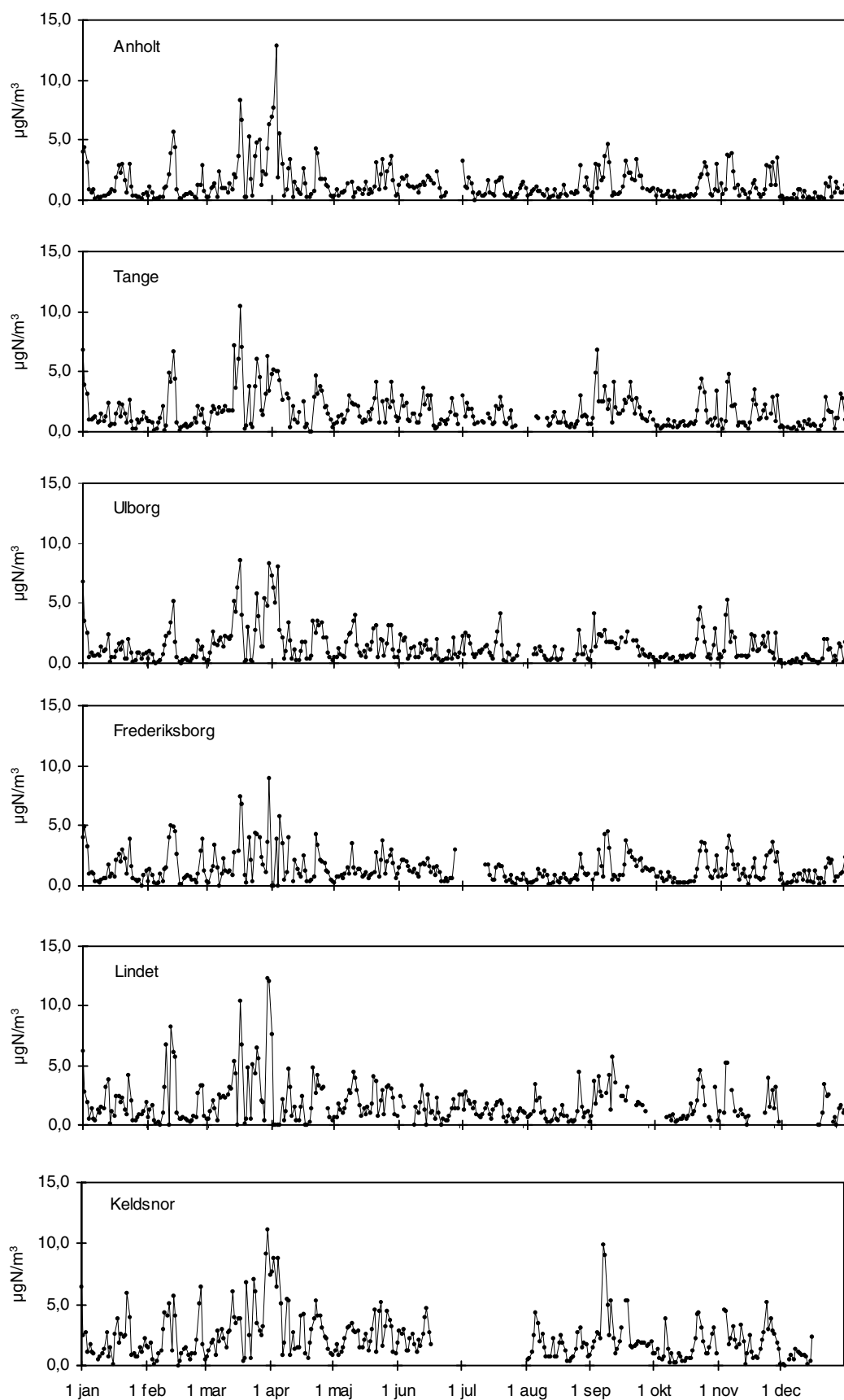
Vignati, E., Hertel, O. 1996: Modelling Atmospheric Nitrogen Deposition to Sea. A newly initiated study of the influence of aerosols and heterogeneous chemistry. In: Hummelshøj, P. (eds.): Proceedings of the NOSA/NORSAC symposium 1996, Roskilde - Risø National Laboratory - Risø-R-934(EN): 140 - 142.

Bilag 1

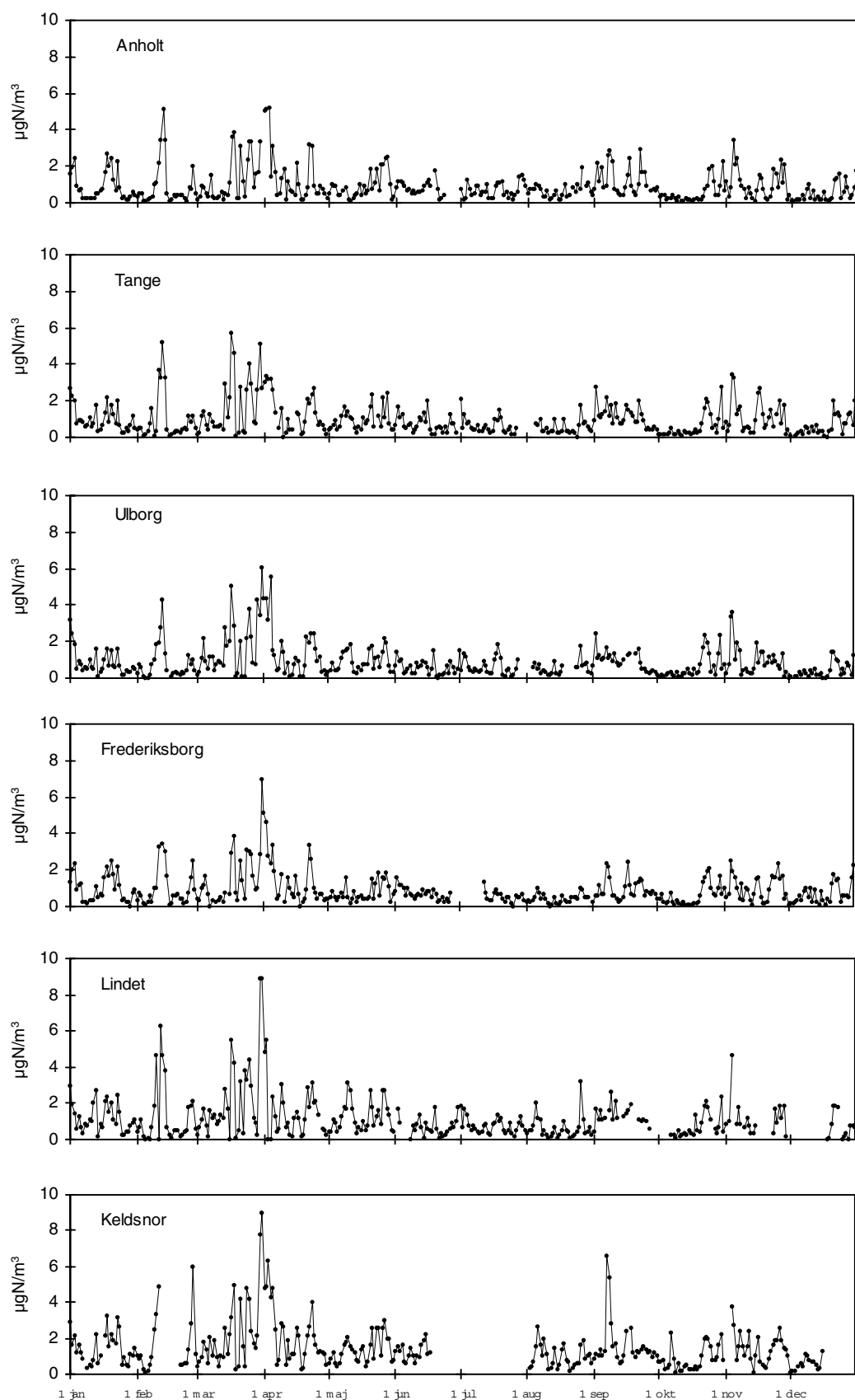
Udvalgte resultater fra målinger på målestationerne.



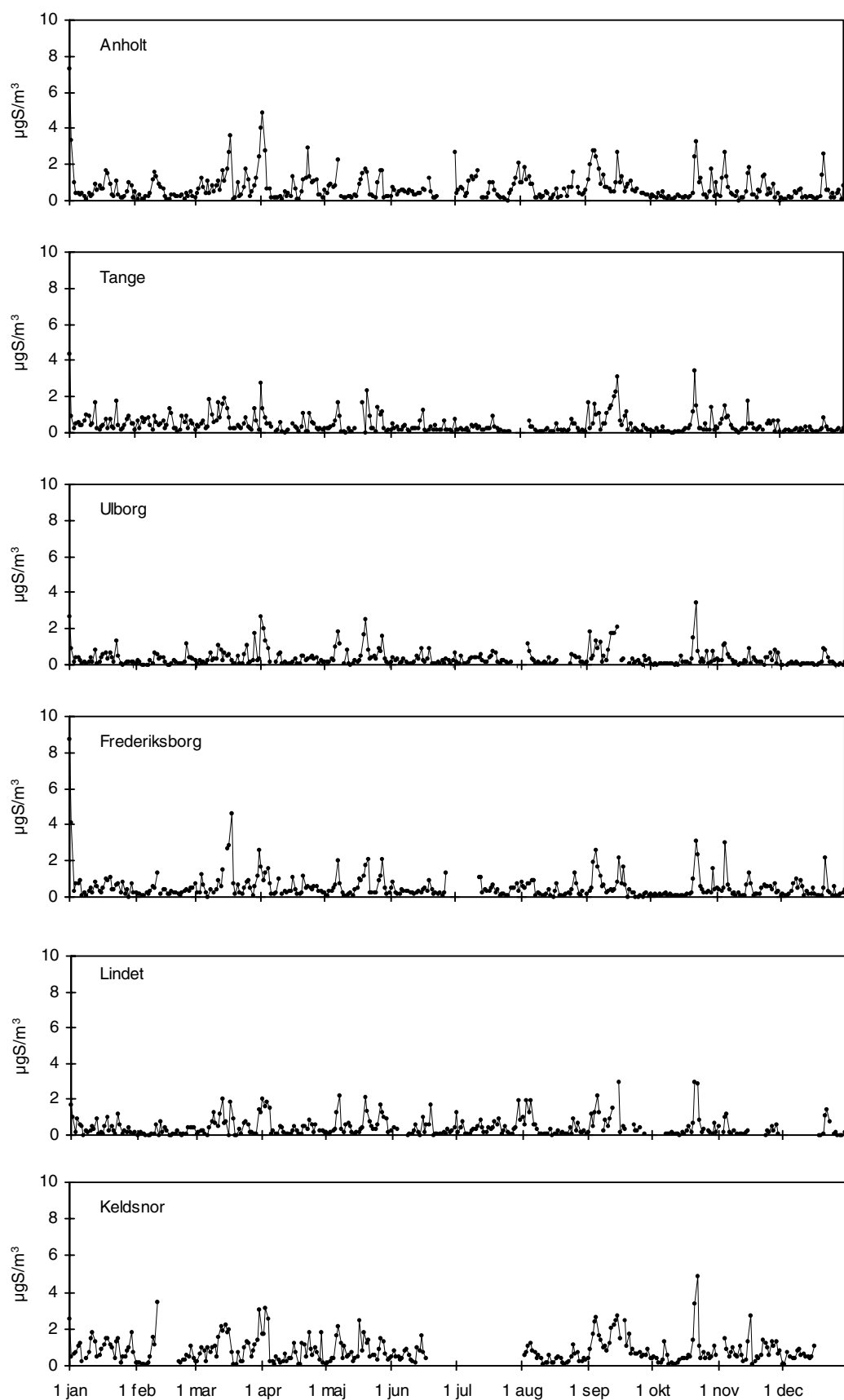
Figur 1 Døgnmiddelkoncentrationer af ammoniak på de seks hovedstationer i 1999.



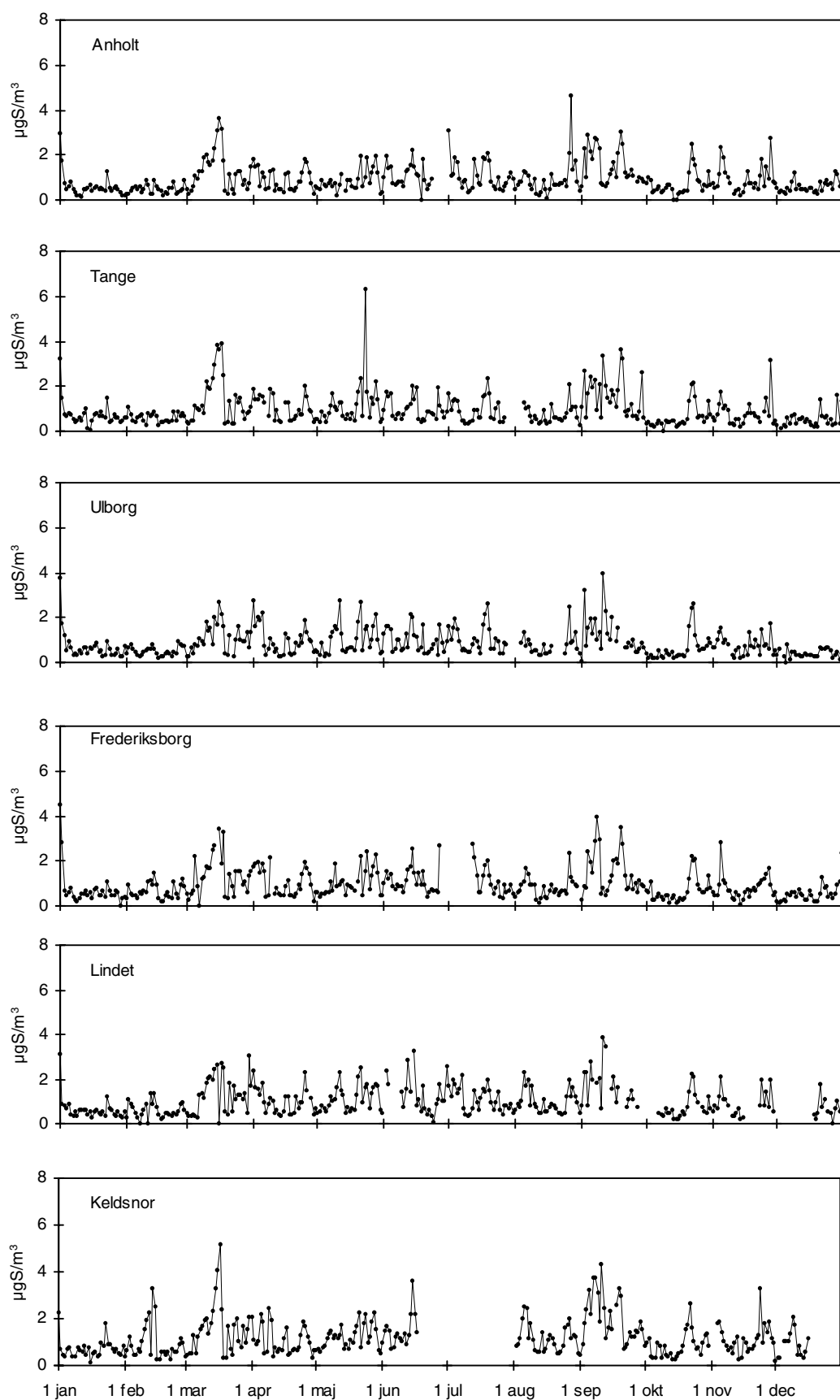
Figur 2 Døgnmiddelværdier af partikulært bundet ammonium på de seks hovedstationer i 1999.



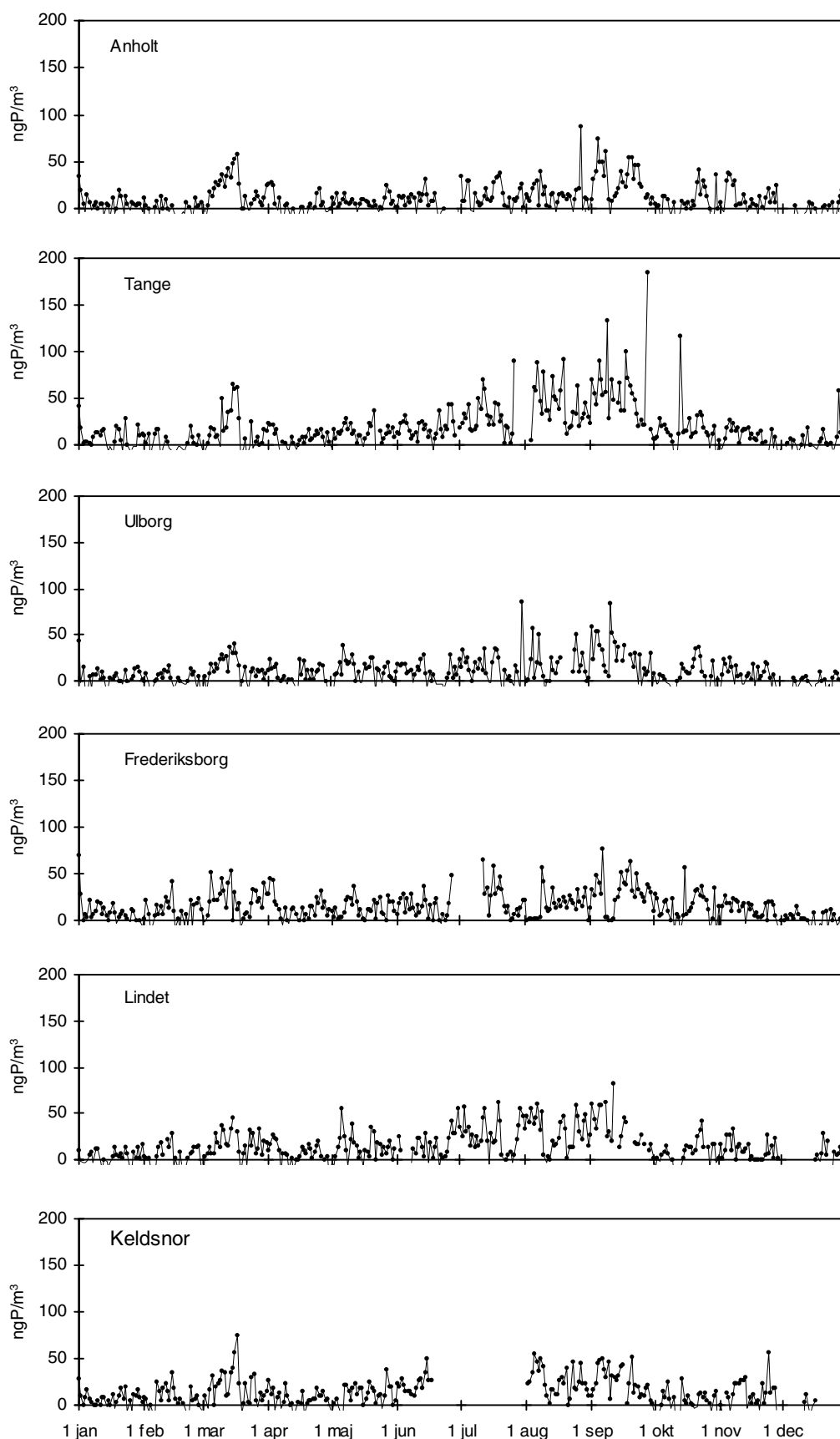
Figur 3 Døgnmiddelværdier af sum-nitrat (partikulært bundet nitrat og salpetersyre) på de seks hovedstationer i 1999.



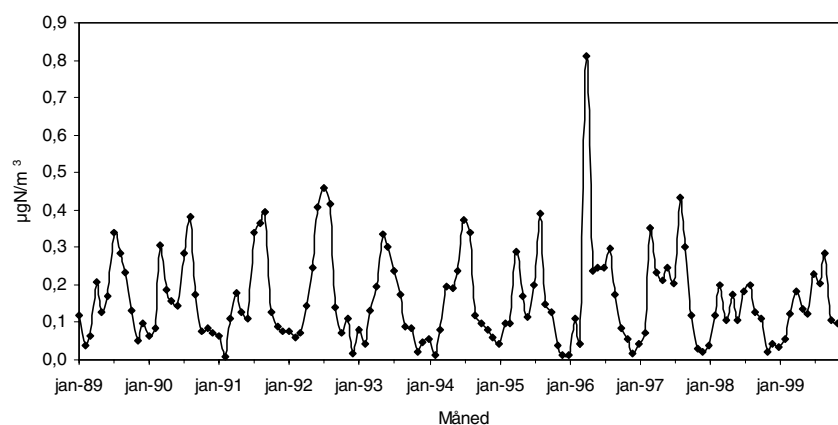
Figur 4 Døgnmiddelkoncentrationer af svovldioxid på de seks hovedstationer i 1999.



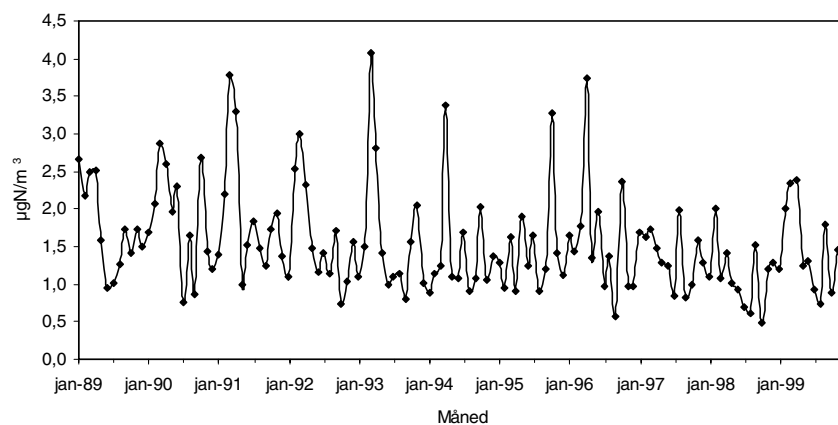
Figur 5 Døgnmiddelværdier af partikulært bundet sulfat på de seks hovedstationer i 1999.



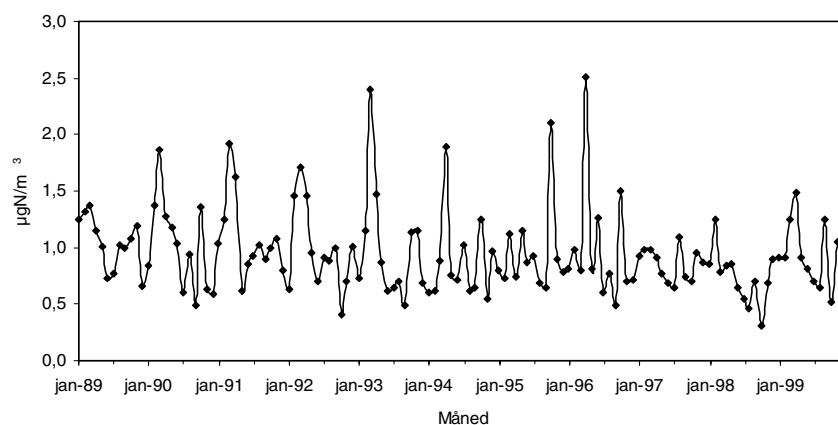
Figur 6 Døgnmiddelværdier af partikulært bundet fosfor på de seks hovedstationer i 1999. Bemærk at størstedelen af målingerne ligger under detektionsgrænsen på 20-50 ngP/m³.



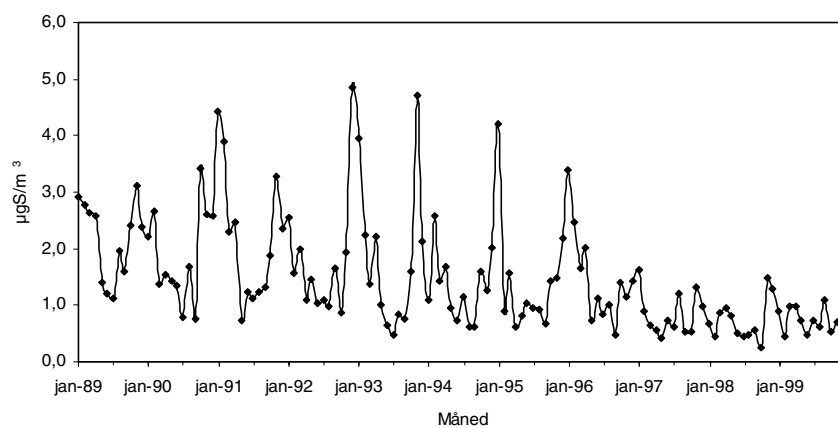
Figur 7 Månedsmiddelkoncentration af ammoniak på Anholt i perioden 1989 til 1999.



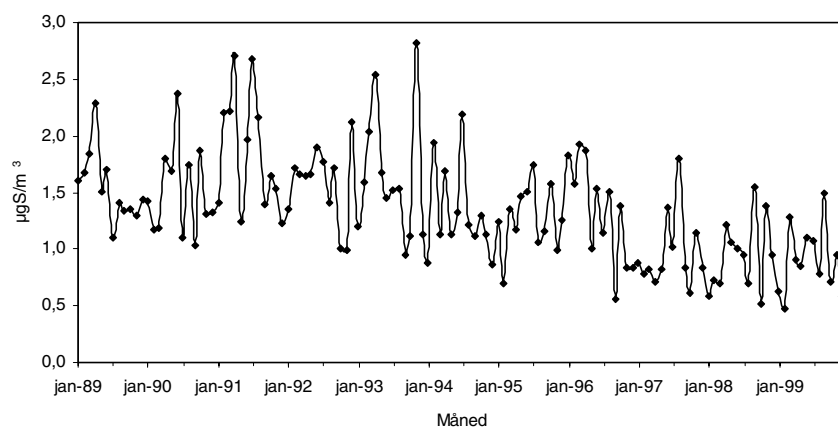
Figur 8 Månedsmiddelværdier af koncentrationen af partikulært ammonium på Anholt fra 1989 til 1999.



Figur 9 Månedsmiddelkoncentration af sum-nitrat på Anholt i perioden 1989 til 1999.



Figur 10 Månedsmiddelkoncentration af svovldioxid på Anholt fra 1989 til 1999.



Figur 11 Månedsmiddelværdier af partikulært bundet sulfat på Anholt fra 1989 til 1999.

[Tom side]

Bilag 2

Beregnete kvælstofdepositioner til de danske farvande

Dette bilag indeholder tabeller for beregnede årlige tør-, våd- og totaldepositioner til de danske farvande for 1999. Hver tabel dækker et hovedfarvand, hvor den samlede deposition til hovedfarvandet er givet øverst i tabellen

ID	Navn	Tørdepo- sition kton N	Våddepo- sition kton N	Totalde- position kton N	Totaldepo- sition/areal kg N/km ²	Areal km ²
10	Alle farvande	24.137	95.667	119.803	1137	105371.7

ID	Navn	Tørdepo- sition kton N	Våddepo- sition kton N	Totalde- position kton N	Totaldepo- sition/areal kg N/km ²	Areal km ²
1	Nordsøen - samlet dansk del	10.041	44.402	54.443	1113.6	48887.9
1	Nordsøen	8.853	39.665	48.518	1094.5	44328.1
110	Hanstholm-Thyborøn, åbne del	0.3	1.122	1.422	996.1	1428
111	Hanstholm-Thyborøn, kyst	0.053	0.161	0.214	1241.7	172
121	Thyborøn-Nissum Fjord, kyst	0.028	0.097	0.125	1030.8	121.6
124	Nissum Fjord	0.023	0.066	0.089	1306.3	68.2
125	Nissum Fjord-Vedersø, kyst	0.008	0.031	0.04	1116.4	35.7
131	Vedersø-Ringkøbing Fjord, kyst	0.022	0.091	0.113	1283.3	88
132	Ringkøbing Fjord	0.106	0.411	0.517	1777.9	290.5
133	Ringkøbing Fjord-Nymindesø, kyst	0.015	0.078	0.094	1570.8	59.7
141	Nymindesø-Blåvand, kyst	0.025	0.107	0.131	1301.1	100.7
150	Blåvand-Landegrænse, åbne del	0.321	1.359	1.68	1361.2	1234.5
151	Blåvand-Skallingen, kyst	0.014	0.057	0.071	1348.7	52.5
152	Fanø Nordsø, kyst	0.01	0.039	0.049	1417.3	34.3
153	Rømø Nordsø, kyst	0.008	0.039	0.047	1605.4	29.5
161	Grådyb tidevandsområde	0.045	0.165	0.21	1588.8	132.4
162	Knudedyb tidevandsområde	0.046	0.186	0.232	1417.3	163.7
163	Juvre Dyb tidevandsområde	0.036	0.156	0.193	1505.4	128.1
165	Lister Dyb tidevandsområde	0.126	0.572	0.698	1661.1	420.2

ID	Navn	Tørdepo- sition kton N	Våddepo- sition kton N	Totalde- position kton N	Totaldepo- sition/areal kg N/km ²	Areal km ²
2	Skagerrak - samlet dansk del	1.772	8.1	9.872	972.6	10150.2
2	Skagerrak - øvrige farvand	0.816	4.299	5.115	929.9	5500.9
210	Skagerrak Tannis Bugt, åbne del	0.249	1.117	1.366	931.6	1466.6
211	Tannis Bugt	0.035	0.122	0.157	1175.4	133.6
220	Skagerrak Jammerbugten, åbne del	0.332	1.311	1.644	1070.8	1534.9
221	Jammerbugten	0.167	0.547	0.714	1099.8	649.1
230	Skagerrak Vigsø Bugt, åbne del	0.16	0.654	0.814	1006.5	808.9
231	Vigsø Bugt	0.013	0.049	0.062	1095.8	56.2

ID	Navn	Tørdepo- sition kton N	Våddepo- sition kton N	Totalde- position kton N	Totaldepo- sition/areal kg N/km ²	Areal km ²
3	<i>Kattegat - samlet dansk del</i>	4.146	15.218	19.364	1149.8	16841.4
3	Kattegat, svenske del	1.252	6.622	7.874	1168	6741.6
300	Kattegat åbne del excl. øer	1.723	7.145	8.868	1024.3	8657.2
301	Læsø	0.154	0.634	0.787	1043.1	754.9
302	Anholt	0.037	0.155	0.192	1000.4	191.9
310	Hesselø Bugt øst, åbne del	0.199	0.85	1.049	1178.8	889.8
311	Gilleleje-Hundested kyst	0.018	0.08	0.098	1248	78.8
321	Isefjord Yderbredning	0.071	0.285	0.356	1419.2	251.2
322	Roskilde Fjord	0.036	0.161	0.197	1584.7	124.2
324	Isefjord Inderbredning	0.021	0.082	0.103	1664.5	61.7
330	Hesselø Bugt vest, åbne del	0.151	0.613	0.764	1165.5	655.6
331	Nyrup Bugt-Sjællands Odde	0.026	0.104	0.13	1394.9	93.2
341	Hjelm Dyb	0.073	0.257	0.33	1286.5	256.2
342	Ålebugt Fornæs, Gjerrild Bugt	0.112	0.286	0.398	1206.1	330.1
350	Hevring Bugt, ydre del	0.128	0.351	0.479	1111.2	431.2
351	Djursland Nordstrand	0.005	0.012	0.017	1222.6	14.3
352	Hevring Bugt, indre del	0.043	0.119	0.162	1387.6	116.8
353	Randers Fjord	0.01	0.028	0.039	1375.5	28.3
354	Kyst Randers Fjord-Mariager Fjord	0.005	0.011	0.016	1187.5	13.5
360	Ålborg Bugt syd, åbne del	0.184	0.552	0.737	1187.4	620.4
361	Mariager Fjord	0.019	0.05	0.069	1502.4	45.7
362	Ålborg Bugt syd, indre del	0.051	0.163	0.214	1303.7	164.4
371	Langerak	0.011	0.037	0.048	1480.7	32.6
372	Nibe-Gjøl Bredning	0.059	0.143	0.201	1469.8	136.9
373	Løgstør Bredning	0.173	0.504	0.677	1616.2	418.9
374	Limfjord midt-syd	0.127	0.332	0.458	1860.7	246.4
375	Limfjord syd for Mors	0.119	0.322	0.441	1746	252.6
376	Limfjord nordvest for Mors	0.074	0.228	0.302	1556.7	193.9
377	Nissum Bredning	0.093	0.277	0.37	1561.9	237.2
380	Ålborg Bugt nord, åbne del	0.144	0.5	0.644	1275.5	504.9
381	Ålborg Bugt nord, indre del	0.047	0.157	0.204	1427.2	143.2
390	Ålbæk Bugt, åbne del	0.148	0.515	0.663	1092.5	606.9
391	Sæby kystområde	0.026	0.078	0.104	1442.7	72.2
392	Ålbæk Bugt, indre del	0.059	0.186	0.245	1131.2	216.4

ID	Navn	Tørdepo- sition kton N	Våddepo- sition kton N	Totalde- position kton N	Totaldepo- sition/areal kg N/km ²	Areal km ²
4	<i>Nordlige Bælthav</i>	1.217	4.34	5.557	1413.5	3931.3
401	Nordlige Bælthav, åbne del øst	0.326	1.242	1.568	1288.6	1216.8
402	Nordlige Bælthav, åbne del vest	0.297	0.934	1.231	1442.6	853.3
411	Sejrø Bugten nord	0.095	0.377	0.472	1377.6	342.4
412	Sejrø Bugten syd	0.114	0.443	0.557	1335.2	417.2
420	Farvandet nord for Fyn, åbne del	0.031	0.095	0.127	1511.5	83.7
421	Fælles Strand	0	0.001	0.002	1323.8	1.4
422	Farvandet nord for Gabet	0.029	0.09	0.119	1464.3	81.5
423	Odense Fjord	0.024	0.083	0.107	1658.3	64.4
425	Kystområde, farvandet nord for Fyn	0.005	0.017	0.022	1511.4	14.5
426	Nærrå Strand	0.002	0.007	0.009	1511.4	6.2
427	Æbelø Øst	0.006	0.019	0.025	1511.4	16.6
430	Området ud for Horsens Fjord, åbne del	0.082	0.275	0.356	1511.2	235.9
431	Sandbjerg Vig	0.009	0.035	0.044	1935.6	22.9
432	Asvig	0.008	0.026	0.034	1877.8	18.1
433	Horsens Fjord	0.036	0.112	0.149	1790.5	83.1
434	Saksild Bugt	0.023	0.072	0.095	1387	68.5
436	Norsminde Fjord	0.001	0.002	0.002	1381.1	1.8
440	Århus Bugt, åbne del	0.039	0.155	0.195	1611.2	120.8
441	Kalø Vig	0.028	0.109	0.136	1611.1	84.7
442	Skødshoved Flak	0.007	0.029	0.037	1611.2	22.9
443	Begtrup Vig	0.005	0.021	0.027	1611.2	16.6
444	Slettehage Rende	0.005	0.02	0.025	1611.2	15.7
445	Århus Bugt, sydlige del	0.005	0.02	0.026	1610	15.9
446	Århus Bugt, nordlige del	0.014	0.054	0.068	1611.2	42
451	Ebeltoft Vig	0.025	0.099	0.124	1467.7	84.3

ID	Navn	Tørdepo- sition kton N	Våddepo- sition kton N	Totalde- position kton N	Totaldepo- sition/areal kg N/km ²	Areal km ²
5	Lillebælt	1.007	3.113	4.12	1774.8	2321.3
510	Nordlige Lillebælt, åbne del	0.066	0.263	0.329	1927.2	170.6
511	Æbelø vest	0.021	0.071	0.092	1692.9	54.3
512	Båring Vig	0.018	0.073	0.092	1935.6	47.4
513	Vejle Fjord	0.043	0.168	0.21	1939.9	108.3
520	Lillebælt, Snævringen hovedløb	0.025	0.097	0.122	1930.2	63.3
524	Gamborg Fjord	0.004	0.015	0.019	1908.2	10.1
526	Kolding Fjord	0.007	0.023	0.029	2009.9	14.6
530	Lillebælt Bredning, åbne del nord	0.028	0.105	0.133	1911.3	69.7
531	Fønsskov sydvestkyst	0.001	0.004	0.005	1908.2	2.9
532	Føns Vig	0.003	0.01	0.013	1908.2	6.8
533	Tybrind Vig	0.004	0.015	0.019	1908.2	10.1
534	Hejlsminde Bugt	0.002	0.006	0.008	2045.7	3.9
535	Mosvig	0.005	0.018	0.023	2006.4	11.5
536	Unavngivet	0.002	0.006	0.008	1908.2	4
54	Lillebælt Bredningen syd	0.001	0.004	0.005	1908.2	2.7
540	Lillebælt Bredning syd, åbne del	0.058	0.219	0.277	1908.2	145.3
541	Bredning syd-Fynssiden, Lillebælt	0.009	0.033	0.042	1908.2	22
543	Årøsund	0.002	0.007	0.009	1908.2	4.7
544	Haderslev Fjord	0.002	0.008	0.011	1990.4	5.3
545	Ørby Strand	0.001	0.006	0.007	1908.2	3.7
546	Avnø Vig	0	0	0	1955.5	0.2
547	Sandersvig	0.002	0.007	0.009	1909.9	4.7
550	Mellemste Lillebælt øst, åbne del	0.103	0.3	0.403	1669.3	241.3
551	Åkrog Bugt	0.011	0.033	0.045	1665.9	26.8
552	Als nordøstkyst	0.007	0.019	0.025	1645	15.5
553	Flovt Strand	0.004	0.012	0.016	1717.6	9.1
560	Sydlig Lillebælt, åbne del	0.194	0.56	0.753	1577.2	477.5
561	Helnæs sydkyst	0.003	0.008	0.01	1645	6.2
562	Helnæs Bugt	0.027	0.083	0.11	1695.2	65.2
563	Lyø Krog	0.009	0.032	0.041	1788	23.1
564	Lyø sydkyst	0.004	0.016	0.02	1795.5	11.1
565	Ærø sydvestkyst	0.016	0.045	0.061	1424.8	42.7
566	Als Østkyst	0.025	0.066	0.091	1698.3	53.7
570	Flensborg Fjord, åbne del	0.062	0.146	0.208	1813.1	114.6
571	Inderfjorden, Flensborg Fjord	0.022	0.055	0.076	2246.2	34.1
572	Mellemfjorden, Flensborg Fjord	0.039	0.095	0.134	1939.7	69
573	Sønderborg Bugt	0.032	0.076	0.109	1813.1	60
574	Als Sydkyst	0.009	0.022	0.032	1813.1	17.4
575	Geltlinger Bugt	0.011	0.027	0.038	1813.1	21.1

Tabel fortsættes

ID	Navn	Tørdepo- sition kton N	Våddepo- sition kton N	Totalde- position kton N	Totaldepo- sition/areal kg N/km ²	Areal km ²
5	Lillebælt	1.007	3.113	4.12	1774.8	2321.3
<i>Fortsat</i>						
580	Mellemste Lillebælt, åbne del vest	0.06	0.175	0.235	1821.7	129.1
581	Als Nordkyst	0.007	0.019	0.025	1649.8	15.3
582	Åbenrå Fjord	0.017	0.049	0.066	1983.3	33
583	Låddenhøj	0.002	0.006	0.008	1983.3	4.2
584	Genner Bugt	0.003	0.008	0.01	1983.3	5.1
585	Diernæs Bugt	0.004	0.013	0.017	1983.3	8.7
586	Sandvig	0.003	0.01	0.013	1960.5	6.7
587	Halk Strand	0.003	0.009	0.012	1679.3	6.9
591	Als Fjord	0.016	0.045	0.061	1686.1	36
592	Augustenborg Fjord	0.007	0.019	0.027	1687.6	15.8
593	Als Sund	0.003	0.007	0.01	1730.6	5.9

ID	Navn	Tørdepo- sition kton N	Våddepo- sition kton N	Totalde- position kton N	Totaldepo- sition/areal kg N/km ²	Areal km ²
6	<i>Storebælt</i>	1.445	5.022	6.467	1419.2	4556.6
610	Storebælt øst, åbne del	0.271	0.959	1.231	1452.7	847.1
611	Kalundborg Fjord	0.017	0.06	0.077	1346.5	56.8
612	Jammerland Bugt	0.036	0.127	0.163	1522.9	107.2
613	Musholm Bugt	0.039	0.132	0.171	1450.3	118.1
614	Agersø Sund nord	0.015	0.05	0.065	1379	47.1
620	Storstrømmen-Smålandsfarvandet	0.192	0.699	0.891	1301.9	684.8
621	Agersø Sund syd	0.019	0.07	0.089	1322.6	67.4
622	Karrebæksminde Bugt	0.083	0.292	0.374	1293.3	289.3
623	Smålandsfarvandet, østlige del	0.038	0.132	0.17	1275.9	133.6
625	Guldborg Sund	0.028	0.089	0.117	1418.1	82.3
626	Smålandsfarvandet, Lolland	0.049	0.19	0.238	1514.4	157.3
631	Storstrømmen	0.018	0.06	0.078	1275.8	61.1
632	Ulvsund	0.014	0.044	0.058	1249	46.4
633	Grønsund	0.011	0.031	0.042	1081.5	39
640	Langelandsbælt, åbne del	0.154	0.513	0.667	1377.3	484
642	Langelandsbælt, Lolland	0.035	0.13	0.165	1497.3	110
643	Langelandsbælt, Langeland	0.034	0.109	0.143	1418.5	100.6
644	Langeland nordvestkyst	0.002	0.006	0.008	1454.6	5.5
651	Ringsgård Bassin	0.03	0.106	0.135	1795.5	75.4
652	Svendborg Sund	0.006	0.022	0.028	1590.2	17.8
653	Det Centrale Øhav	0.09	0.29	0.38	1509.8	251.6
654	Ærø Bassin	0.051	0.166	0.217	1612.6	134.6
660	Langelandssundet, åbne del	0.042	0.139	0.181	1461	123.9
661	Langeland vestkyst	0.012	0.038	0.049	1454.6	34
662	Vemmenæs	0.002	0.006	0.008	1454.6	5.4
663	Lunkebugten	0.004	0.012	0.016	1454.6	11
664	Thurø	0.003	0.01	0.013	1454.6	9.2
665	Fynskysten, Langelands-sundet	0.013	0.042	0.055	1465	37.5
670	Storebælt vest, åbne del	0.092	0.332	0.424	1507.3	281.4
671	Tårup Strand	0.003	0.013	0.016	1648.1	9.8
672	Nyborg Fjord	0.003	0.012	0.016	1648.1	9.6
674	Fynskysten, Storebælt	0.013	0.049	0.063	1648.1	38.1
675	Kertinge Nor/Kerteminde Fjord	0.011	0.04	0.051	1690.9	30.2
676	Hinsholm østkyst	0.015	0.052	0.067	1344.6	49.7

ID	Navn	Tørdepo- sition kton N	Våddepo- sition kton N	Totalde- position kton N	Totaldepo- sition/areal kg N/km ²	Areal km ²
7	<i>Øresund - samlet dansk del</i>	0.34	1.521	1.861	1349.3	1379.4
710	Sydlig Øresund, åbne del	0.225	1.031	1.256	1308.9	959.3
711	Sydlig Øresund-Stevns	0.079	0.299	0.378	1173.3	321.9
712	Køge Bugt	0.008	0.033	0.041	1668.7	24.5
713	Amager sydkyst	0.101	0.442	0.543	1454.8	373.2
720	Nordlig Øresund, åbne del	0.006	0.025	0.031	1118.9	28.1
721	Amager/Svanemølle Bugten	0.082	0.411	0.493	1377	358.3
722	Farvandet ved Tårnbæk	0.014	0.06	0.073	1186.4	61.9
723	Nivå Bugt	0.006	0.034	0.04	1545.1	25.7
724	Helsingør red	0.012	0.068	0.081	1550.9	51.9
730	Øresund-Tragten, åbne del	0.002	0.011	0.013	1580.9	8.1
731	Hellebæk kyst	0.018	0.083	0.101	1315.2	77
732	Hornbæk Bugt	0.005	0.026	0.031	1509.9	20.2
733	Gilleleje grunde	0.004	0.019	0.023	1281.1	18
79	Øresund svenske del	0.002	0.011	0.013	1281.1	10.5

ID	Navn	Tørdepo- sition kton N	Våddepo- sition kton N	Totalde- position kton N	Totaldepo- sition/areal kg N/km ²	Areal km ²
8	<i>Sydlig Bælthav - samlet dansk del</i>	0.766	2.502	3.268	1321.3	2473.1
810	Sydlig Bælthav vest, åbne del	0.276	0.829	1.106	1415.8	781
811	Vejsnæs Bugt	0.037	0.111	0.148	1385.1	106.9
82	Sydlig Bælthav Øst	0.351	1.192	1.543	1258.6	1226.1
821	Farvandet syd for Lolland	0.024	0.109	0.133	1711.9	77.6
822	Lambo farvand	0.078	0.26	0.338	1200.1	281.4

ID	Navn	Tørdepo- sition kton N	Våddepo- sition kton N	Totalde- position kton N	Totaldepo- sition/areal kg N/km ²	Areal km ²
9	Østersøen - samlet dansk del	3.403	11.45	14.853	1001.5	14830.6
90	Østersøen, åbne del	2.591	8.978	11.57	980	11805.4
910	Østersøen-Bornholm, åbne del	0.375	1.128	1.503	999.2	1504.3
911	Bornholm Rønne	0.005	0.016	0.021	953.3	21.6
912	Bornholm vest	0.006	0.019	0.025	943.6	26.4
913	Bornholm nord	0.021	0.057	0.077	1015.2	76.2
914	Bornholm øst	0.02	0.061	0.081	1027	78.5
915	Bornholm syd	0.011	0.039	0.05	999	50.2
92	Farvandet øst for Falster-Møn	0.109	0.306	0.416	1057.5	393.1
921	Farvandet øst for Falster	0.029	0.082	0.111	1056.4	104.7
922	Hjelm Bugt	0.028	0.085	0.113	1169.9	96.3
930	Fakse Bugt, åbne del	0.139	0.456	0.595	1298.8	458.1
931	Fakse Bugt-Møn	0.011	0.035	0.046	1172.1	39.1
932	Stege Bugt	0.015	0.046	0.06	1259.1	48
933	Bøgestrømmen	0.014	0.042	0.056	1259.1	44.6
935	Præstø Fjord	0.007	0.022	0.029	1259.1	22.8
936	Fakse Bugt-Stevns	0.021	0.08	0.101	1654	61.1

ID	Navn	Tørdepo- sition ton N	Våddepo- sition ton N	Totalde- position ton N	Totaldepo- sition/areal kg N/km ²	Areal km ²
	Ribe	2725078	4528319	7253443	2312.491	3136.636
	Ringkøbing	4134040	6440322	10574368	2164.311	4885.789
	Sønderjylland	3807770	5875988	9683769	2496.963	3878.219
	Viborg	3593487	5089157	8682617	2094.93	4144.586
	Vejle	2900940	4384060	7285057	2421.483	3008.51
	Nordjylland	4865034	6649702	11514691	1858.967	6194.135
	Århus	3938855	5411260	9350172	2042.624	4577.53
	Fyn	2900731	4760561	7661351	2167.152	3535.216
	Storstroem	2091647	4132105	6223696	1806.679	3444.827
	Vestsjælland	2135493	3859381	5994872	1990.45	3011.818
	Roskilde	638164.4	1214495	1852687	2052.489	902.6536
	Frederiksborg	877897	1756569	2634507	1924.671	1368.809
	København	361255.8	657344	1018619	1917.771	531.147
	Frederiksberg Kommune	5584.4	7834.6	13419.1	1554.479	8.632528
	København Kommune	58970.3	89294.3	148266.1	1648.196	89.95655
	Bornholm	271283.6	447168.4	718442.3	1210.171	593.6701

[Tom side]

English Summary

Atmospheric Deposition 1999

NERI, Technical Report No. 332. November 2000

Thomas Ellermann, Ole Hertel, Carsten Ambelas Skjøth

This report presents measurements and calculations from the atmospheric part of NOVA 2003 and covers results for 1999. It summarises the main results concerning concentrations and depositions of nitrogen, phosphorus and sulphur compounds related to eutrophication and acidification. Depositions of atmospheric compounds to both Danish marine waters and land surfaces are presented.

Measurements

In 1999 the monitoring program consisted of eight stations where wet deposition of ammonium, nitrate, phosphate (semi quantitatively) and sulphate were measured using bulk precipitation samplers. At six of the stations measurements of the atmospheric content of air polluting nitrogen, phosphorus, and sulphur compounds in gas and particulate phase using filter pack samplers were also carried out. Filters were analysed at the National Environmental Research Institute. In addition nitrogen dioxide was measured using nitrogen dioxide filter samplers and monitors.

Model calculations

The measurements in the monitoring programme were supplemented with model calculations of concentrations and depositions of nitrogen and sulphur compounds to Danish land surfaces, marine waters, fjords and bays using the ACDEP model (Atmospheric Chemistry and Deposition). The model is a so-called trajectory model which simulates the physical and chemical processes in the atmosphere and uses as input meteorological and emission data.

The advantage of using measurements in combination with model calculations is that the strengths of the two methods can be combined. Conclusions concerning:

- actual concentration levels at the monitoring stations,
- deposition at the monitoring stations,
- seasonal variations and
- long term trends in concentrations and depositions

are mainly evaluated using the direct measurements. These are furthermore used to validate the results of the model calculations. Calculations and conclusions concerning

- depositions to land surfaces and to the individual marine waters,
- contributions from different emission sources and
- the Danish contribution

are mainly based on the model calculations.

Nitrogen deposition to the marine waters

For 1999 the model calculations show that the total annual deposition of nitrogen varies between 0.9 and 1.9 tonnes N/km² with an average of about 1.1 tonnes N/km². This adds to a total nitrogen deposition of

120 ktonnes N to the Danish marine waters. A more detailed list of depositions to the different marine waters, fjords, and bays are given in Table 5.1 and in "Bilag 2". In accordance with previous years the depositions are highest to the fjords and the coastal areas. Previously the calculated deposition to the northern part of the North Sea and Skagerrak was also very high. However the new type of precipitation data used for the model calculations in this report has reduced the depositions to these areas and this is believed to give more realistic wet depositions to this area. Moreover, a gradient in the nitrogen depositions with highest depositions in south and lowest depositions in north is also observed. The nitrogen deposition to the marine waters are mainly due to wet deposition which accounts for about 80 % of the deposition, while the remaining 20 % are due to dry deposition. The larger contribution from wet deposition in 1999 compared to previous years is due to the high precipitation in 1999.

Nitrogen deposition to land surfaces

The nitrogen deposition to the land surfaces is between 1.1 and 2.8 tonnes N/km² with the highest depositions in the southern parts and with the lowest deposition in the northern part and at Bornholm. The total deposition to Danish land surface adds to 90 ktonnes N. The variations of the deposition are mainly due to the distribution of the precipitation and the distance to the high emission areas in the northern part of the European continent. The deposition is typically higher to land surfaces than to water surfaces. This is primarily due to dry deposition of ammonia from local agricultural activities and higher deposition of nitrogen dioxide to land surfaces than to water surfaces.

Land + water

The total deposition of nitrogen to Danish land surfaces and marine waters in 1999 was calculated to 210 ktonnes N. This shows that the total deposition is of the same magnitude as the total emission of nitrogen (NO_x and NH₃) which was estimated to about 160 ktonnes N (EMEP 2000).

Phosphorus deposition and long term trends

It is estimated that the deposition of inorganic phosphorus to the Inner Danish Waters (area 31.500 km²) is about 255 tonnes P in 1999. This is an upper limit which is based on the assumption that no significant change has occurred in the depositions over the last years. This assumption is based on measurements of the atmospheric content of particulate phosphorus and measurements carried out by Fynen County.

Deposition of sulphur

For sulphur dioxide and sulphate only calculations of the deposition of the total deposition to Danish land surfaces are presented. For 1999 these calculations show that the annual depositions vary between 0.4 and 1.5 tonnes S/km² with the highest depositions found for the major cities and in areas with high precipitation.

Long term trends for dry depositions of nitrogen and sulphur

The annual dry deposition of nitrogen and sulphur compounds is roughly proportional to the ambient concentration levels. The long term trends in the dry deposition are therefore estimated on the basis of the long term trends in the measured concentration levels. The measurements for 1999 show that the concentrations of the nitrogen compounds were higher than in 1998 and that the concentrations of the sulphur compounds were at the same levels as in 1998. The

measurements for 1999 do not change the general picture of the long term trends for the period 1989-1999:

- Overall there has not been observed significant changes in the concentrations of ammonia at the monitoring stations. There are large differences between the monitoring stations and it is therefore difficult to extrapolate from the monitoring stations to the whole Denmark. At Ulborg and Keldsnor a small increase is measured and at Tange, Anholt, and Frederiksborg a decrease is measured, however it is only at Tange that the change is significant.
- The concentration of particulate ammonium decreases significantly. For the period 1989-1999 the decreases measured for the monitoring stations are 32-38%.
- The concentration of sum-nitrate decreases significantly at five out of the six monitoring stations. The measured decreases are 13-26 % for the period 1989-1999.
- For the concentrations of the sulphur compounds the measurements show large significant decreases at all the monitoring stations. During the period 1989-1999 there are measured decreases of about 70-90 % and 46-63 % for sulphur dioxide and particulate sulphate, respectively.

The measured reductions in concentrations of particulate ammonium, sum-nitrate and sulphur compounds are for each compound of similar magnitude at all the monitoring stations. It is therefore believed that the reductions are general for the whole of Denmark.

The main part of the sulphur dioxide and the particulate bound nitrogen and sulphur is long range transported to Denmark from the northern part of the European continent. The decrease of the concentrations and thereby the dry depositions of these compounds follows on the whole the development in EMEP's inventory for emission of nitrogen and sulphur in Europe. The reduction of the Danish emission is also important since the local Danish emissions of sulphur and nitrogen contribute to the air pollution levels. However, the Danish reduction is of minor importance compared to the reductions in the emissions in the northern part of the European continent. The long term trends for nitrogen dioxide have not been evaluated due the limited number of measurements.

Long term trends for wet deposition

The wet depositions measured at all the monitoring stations were in 1999 at the same level or some what higher than for 1998 (varies from monitoring station to monitoring station). This is also expected since the amount of precipitation shows the same pattern. The annual wet deposition differs considerably from year to year during the period 1989-1999 due to the large changes of the annual precipitation. For ammonium and nitrate small decreases in the amount of wet deposition are observed, however the decreases are not significant. The measurements of the wet deposition of sulphate show at all the monitoring stations large significant reductions in the range of 33-51 % during the period 1989-1999. The reason for the large reduction in

the wet deposition of sulfate is, as for the concentration levels of the sulphur compounds, the large decrease in the emissions of sulphur from Denmark and the rest of Europe.

Total deposition

Since the wet deposition accounts for about 80 % of the total deposition of nitrogen and since the wet deposition has been slightly falling it is estimated there has been a small reduction in the depositions to Danish land surfaces and marine areas. This conclusion should be taken with reservations since the reductions are most likely statistically insignificant and since the inter annual variations can be larger than the total reductions during the entire period. For the depositions of sulphate there have been measured large reductions in both wet and dry deposition. Hence the total deposition of sulphur has also been reduced in the period 1989-1999 to about 50 % of the level in 1989.

Seasonal variations of concentrations

A seasonal variation is observed for the majority of the measured compounds. The reason is mainly seasonal variations in emissions, physical and chemical transformations and transport in the atmosphere. The general picture of the seasonal variations can be summarised as follows:

- The ammonia concentration is lowest in winter and highest in spring and autumn with some what lower concentration during summer compared to spring and autumn. The reason for this pattern is primarily the seasonal variations in the local agricultural practise, since ammonia primarily originates from agricultural activities, where especially manure contributes significantly. However, seasonal changes in meteorological conditions play also an important role in the seasonal variations of the ammonia concentration.
- The concentration of particulate ammonium is highest in early spring, lowest in summer and has a local maximum in October. The reason for this is the complex interplay between the seasonal variations in the emissions of ammonia, formation of ammonium containing particles and the transport processes, which long range transports particulate ammonium to Denmark from the northern part of the European continent.
- The measurements of nitrogen dioxide show the highest concentrations during the winter half-year. This can be explained primarily by the seasonal variations in the emission of nitrogen oxides. The sources of nitrogen oxides are combustion processes and the emissions are therefore highest during the winter season. The seasonal changes of the transport of the nitrogen oxides are also important.
- The seasonal pattern for the concentration of sum-nitrate (mainly particulate bound nitrate) is similar to the seasonal pattern for particulate ammonium. For sum-nitrate it is the seasonal variation of the emissions of nitrogen oxides which accounts for parts of the observed pattern. The seasonal variation in the formation of sum-nitrate and the transport processes are also important factors for the seasonal patterns observed in Denmark.

- On average for the period 1989-1999 there is a pronounced seasonal variation in the concentration of sulphur dioxide with the highest concentrations measured during the winter season. Sulphur dioxide originates primarily from combustion processes and as for the nitrogen oxides the highest emission occurs during the winter season. In 1999 the measurements deviate from the average pattern with no clear seasonal variation. This may indicate changes in the relative importance of the different source types as a consequence of the high reductions of the sulphur emissions during the period.
- For particulate sulphate no clear seasonal variations are observed in contradiction with expectations based on comparison with the other particulate compounds. The reason is most likely, that sulphate also have other sources (sea salt and degradation of algae) than man made sources, and that there are differences in the chemical processes which leads to formation of the particulate bound compounds.

Seasonal variations of wet deposition

Wet depositions are mainly determined by the amount of precipitation. The seasonal variations in the wet deposition follow therefore often the seasonal variation of the precipitation. For the period 1989-1999 the precipitation was largest during autumn and winter and lowest during spring and summer. However, the seasonal variations are small compared to the inter annual variations and the geographical variations. For nitrate and sulphate the seasonal variations follow the variations in the precipitation although the seasonal variations were small. For ammonium there was a clear seasonal variation with largest wet deposition during the summer half-year. The reason is that liquid atmospheric water droplets effectively scrub the gas phase ammonia and that the ammonia concentration is highest during summer. The seasonal variation in wet deposition of ammonium may be important in context of algae bloomings because it is during the summer half-year, that the atmospheric deposition of nutrients is most important relatively to nutrient supplies from other sources.

Sources to nitrogen depositions

In 1999 the atmospheric deposition of nitrogen to the Danish marine waters originates more or less equally from agricultural activities (about 40 %) and combustion processes (about 60 %) though the contributions from the different sources depend on the local situation. Examples are that agriculture contributes with 60 and 50 % to the annual nitrogen deposition to Limfjorden and Kattegat, respectively, with various combustion processes being sources to the remaining part. The contribution from Danish sources varies considerably with distance to the local Danish sources. The Danish contribution to the depositions to the Danish part of the North Sea is as low as 9 %, to Kattegat Danish sources contribute with 28 % and in coastal areas, fjords and bays the Danish contribution may be as high as 40 %. On average the Danish sources contribute with about 15 % of the total annual nitrogen deposition. The Danish contributions to the Danish land surface will be even higher due to the short distance to local Danish sources.

Sources to deposition of sulphur dioxide and sulphate

The major sources to deposition of sulphur in Denmark are various combustion processes while sulphate emissions from sea salt and degradation of algae are minor sources. The Danish contributions to deposition of sulphur have not been presented in this report.

Uncertainty in calculations

The uncertainty in the calculations of deposition of nitrogen to Danish land surfaces and marine waters is difficult to determine. At present it is estimated that the uncertainty, as in the previous reports, is 30-40 % for the open marine areas and 40-60 % for coastal areas. For the deposition to land surfaces the uncertainty may be as high as a factor 2 on the annual depositions. Moreover, it is believed that the revision of the model and the new type of meteorological input data has improved the results considerably. However, data from only one year is not sufficient to evaluate whether or not the improvement occurred by chance for 1999. The effect of the changes of the model will be quantified when longer time series are available. Finally it must be mentioned that emissions from ships have not been included in the model calculations so far. This will be corrected as soon as possible and will probably lead to a slight increase in the calculated depositions.

Danmarks Miljøundersøgelser

Danmarks Miljøundersøgelser - DMU - er en forskningsinstitution i Miljø- og Energiministeriet. DMU's opgaver omfatter forskning, overvågning og faglig rådgivning indenfor natur og miljø.

Henvendelser kan rettes til:

URL: <http://www.dmu.dk>

Danmarks Miljøundersøgelser
Frederiksborgvej 399
Postboks 358
4000 Roskilde
Tlf.: 46 30 12 00
Fax: 46 30 11 14

Direktion og Sekretariat
Forsknings- og Udviklingssektion
Afd. for Atmosfærisk Miljø
Afd. for Havmiljø
Afd. for Mikrobiel Økologi og Bioteknologi
Afd. for Miljøkemi
Afd. for Systemanalyse
Afd. for Arktisk Miljø

Danmarks Miljøundersøgelser
Vejløvej 25
Postboks 314
8600 Silkeborg
Tlf.: 89 20 14 00
Fax: 89 20 14 14

Overvågningssektionen
Afd. for Sø- og Fjordøkologi
Afd. for Terrestrisk Økologi
Afd. for Vandløbsøkologi

Danmarks Miljøundersøgelser
Grenåvej 12-14, Kalø
8410 Rønde
Tlf.: 89 20 17 00
Fax: 89 20 15 15

Afd. for Landskabsøkologi
Afd. for Kystzoneøkologi

Publikationer:

DMU udgiver faglige rapporter, tekniske anvisninger, temarapporter, samt årsberetninger. Et katalog over DMU's aktuelle forsknings- og udviklingsprojekter er tilgængeligt via World Wide Web.

I årsberetningen findes en oversigt over det pågældende års publikationer.

Faglige rapporter fra DMU/NERI Technical Reports

2000

- Nr. 307: Cadmium Toxicity to Ringed Seals (*Phoca hispida*). An Epidemiological Study of possible Cadmium Induced Nephropathy and Osteodystrophy in Ringed Seals from Qaanaaq in Northwest Greenland. By Sonne-Hansen, C., Dietz, R., Leifsson, P.S., Hyldstrup, L. & Riget, F.F. (in press)
- Nr. 308: Økonomiske og miljømæssige konsekvenser af markedsordningerne i EU's landbrugsreform. Agenda 2000. Af Andersen, J.M., Bruun et al. 63 s., 75,00 kr.
- Nr. 309: Benzene from Traffic. Fuel Content and Air Concentrations. By Palmgren, F., Hansen, A.B., Berkowicz, R. & Skov, H. 42 pp., 60,00 DKK.
- Nr. 310: Hovedtræk af Danmarks Miljøforskning 1999. Nøgleindtryk fra Danmarks Miljøundersøgelses jubileumskonference Dansk Miljøforskning. Af Secher, K. & Bjørnsen, P.K. 104 s., 100,00 kr.
- Nr. 311: Miljø- og naturmæssige konsekvenser af en ændret svineproduktion. Af Andersen, J.M., Asman, W.A.H., Hald, A.B., Münier, B. & Bruun, H.G. 104 s., 110,00 kr.
- Nr. 312: Effekt af døgnregulering af jagt på gæs. Af Madsen, J., Jørgensen, H.E. & Hansen, F. 64 s., 80,00 kr.
- Nr. 313: Tungmetalledfald i Danmark 1998. Af Hovmand, M. & Kemp, K. 26 s., 50,00 kr.
- Nr. 314: Virkemidler i pesticidpolitikken. Reduktion af pesticidanvendelsen på behandlede jordbrugsarealer. Af Hasler, B., Schou, J.S., Ørum, J.E. & Gårn Hansen, L. 71 s., 75,00 kr.
- Nr. 315: Ecological Effects of Allelopathic Plants – a Review. By Kruse, M., Strandberg, M. & Strandberg, B. 64 pp., 75,00 DKK.
- Nr. 316: Overvågning af trafikens bidrag til lokal luftforurening (TOV). Målinger og analyser udført af DMU. Af Hertel, O., Berkowicz, R., Palmgren, F., Kemp, K. & Egeløv, A. 28 s. (Findes kun i elektronisk udgave)
- Nr. 317: Overvågning af bæver *Castor fiber* efter reintroduktion på Klosterheden Statsskovdistrikt 1999. Red. Berthelsen, J.P. 37 s., 40,00 kr.
- Nr. 318: Order Theoretical Tools in Environmental Sciences. Proceedings of the Second Workshop October 21st, 1999 in Roskilde, Denmark. By Sørensen, P.B. et al. 170 pp., 150,00 DKK.
- Nr. 319: Forbrug af økologiske fødevarer. Del 2: Modellering af efterspørgsel. Af Wier, M. & Smed, S. 184 s., 150,00 kr.
- Nr. 320: Transportvaner og kollektiv trafikforsyning. ALTRANS. Af Christensen, L. 154 s., 110,00 kr.
- Nr. 321: The DMU-ATMI THOR Air Pollution Forecast System. System Description. By Brandt, J., Christensen, J.H., Frohn, L.M., Berkowicz, R., Kemp, K. & Palmgren, F. 60 pp., 80,00 DKK.
- Nr. 322: Bevaringsstatus for naturtyper og arter omfattet af EF-habitatdirektivet. Af Pihl, S., Søgaard, B., Ejrnæs, R., Aude, E., Nielsen, K.E., Dahl, K. & Laursen, J.S. 219 s., 120,00 kr.
- Nr. 323: Tests af metoder til marine vegetationsundersøgelser. Af Krause-Jensen, D., Laursen, J.S., Middelboe, A.L., Dahl, K., Hansen, J. Larsen, S.E. (in press)
- Nr. 324: Vingeindsamling fra jagtsæsonen 1999/2000 i Danmark. Wing Survey from the Hunting Season 1999/2000 in Denmark. Af Clausager, I. 50 s., 45,00 kr.
- Nr. 325: Safety-Factors in Pesticide Risk Assessment. Differences in Species Sensitivity and Acute-Chronic Relations. By Elmegaard, N. & Jagers op Akkerhuis, G.A.J.M. 57 pp., 50,00 DKK.
- Nr. 326: Integrering af landbrugsdata og pesticidmiljømodeller. Integrerede MiljøinformationsSystemer (IMIS). Af Schou, J.S., Andersen, J.M. & Sørensen, P.B. 61 s., 75,00 kr.
- Nr. 327: Konsekvenser af ny beregningsmetode for skorstenshøjder ved lugtemission. Af Løfstrøm, P. (Findes kun i elektronisk udgave)
- Nr. 328: Control of Pesticides 1999. Chemical Substances and Chemical Preparations. By Krongaard, T., Petersen, K.K. & Christoffersen, C. (in press)
- Nr. 329: Interkalibrering af metode til undersøgelser af bundvegetation i marine områder. Krause-Jensen, D., Laursen, J.S. & Larsen, S.E. (i trykken)
- Nr. 330: Digitale kort og administrative registre. Integration mellem administrative registre og miljø-/naturdata. Energi- og Miljøministeriets Areal informations System. Af Hansen, H.S. & Skovpetersen, H. (i trykken)
- Nr. 331: Tungmetalledfald i Danmark 1999. Af Hovmand, M.F. Kemp, K. (i trykken)

[Tom side]

Kvælstofdepositionen til danske havområder, fjorde, vige og bugte er for 1999 blevet bestemt til 120 ktons N. Tilsvarende er depositionen til landområderne bestemt til 90 ktons N. På målestationerne er koncentrationen af partikulært bundet ammonium og sumnitrat (partikulært bundet nitrat og salpetersyre) aftaget med henholdsvis 32-38% og 13-26 % i perioden 89-99. Derimod observeres igen tegn på ændringer i luftens koncentration af ammoniak. Depositionen af svovlforbindelser til danske landområder er for 1999 blevet bestemt mellem 0,4 og 1,5 tons S/km². Våddepositionen af kvælstof viser en aftagende tendens, mens der for svovl måles et signifikant fald. Koncentrationen af svovlforbindelser i atmosfæren er i perioden 89-99 faldet til under halvdelen. For fosfor vurderes at der ikke er sket betydelige ændringer i koncentrationer og depositioner.

Miljø- og Energiministeriet
Danmarks Miljøundersøgelser

ISBN 87-7772-574-3
ISSN (trykt) 0905-815x
ISSN (elektronisk) 1600-0048