

Umweltforschungsplan  
des Bundesministeriums für Umwelt,  
Naturschutz und Reaktorsicherheit

Förderkennzeichen (UFOPLAN) 200 88 213

**Bestimmung von Ammoniak-Einträgen aus der Luft  
und deren Wirkungen auf Waldökosysteme**

**(ANSWER-Projekt)**

von

K. Mohr  
H. Meesenburg, B. Horváth, K.J. Meiwas,  
S. Schaaf, U. Dämmgen

Landwirtschaftskammer Weser-Ems, Oldenburg  
Niedersächsische Forstliche Versuchsanstalt, Göttingen  
Bundesforschungsanstalt für Landwirtschaft, Institut für Agrarökologie,  
Braunschweig

**Schlussbericht**

IM AUFTRAG DES UMWELTBUNDESAMTES

Oldenburg, Göttingen und Braunschweig, März 2005

Adressen der beteiligten Institutionen:

Landwirtschaftskammer Weser-Ems  
Mars-la-Tour-Str. 9-13  
26121 Oldenburg

Niedersächsische Forstliche Versuchsanstalt  
Grätzelstr. 2  
37079 Göttingen

Bundesforschungsanstalt für Landwirtschaft  
Institut für Agrarökologie  
Bundesallee 50  
38116 Braunschweig

## Summary

The growth of most European trees has been limited by nitrogen levels until a few decades ago. Since then atmospheric nitrogen deposition originating from anthropogenic sources (mostly agriculture, traffic, and industry) led to a modified ecological situation in forests and other ecosystems. In spite of being a deficient nutrient, nitrogen pollutes forest ecosystems in many regions. Because of several interactions and their ecological responses the dose-response relationship is very complex. Nevertheless, the nitrogen deposition rate increasingly determines ecosystem behaviour.

The objective of the ANSWER (Atmospheric Nitrogen DepoSition in the Weser-Ems Region) project was to assess the amount of N deposition and to describe specific ecological effects. Due to the high density of stock breeding in the Weser-Ems region, reduced nitrogen species ( $\text{NH}_x$ ) were focused on.

To estimate the amount of nitrogen input, measurements of throughfall deposition in combination with canopy-budget models as well as micrometeorological methods were carried out in a representative pine forest (Augustendorf).

Throughfall measurements of N deposition in adjacent forest stands with different tree composition and structure (pine, Norway spruce, Douglas fir, oak) and in comparable pine forests at greater distances from Augustendorf (Sandkrug, Holdorf) showed the effects caused by different ammonia concentrations and stand properties, and allowed an assessment of the spatial representativeness of the Augustendorf results. Long term measurements in Augustendorf, Holdorf and Sandkrug allowed an assessment of the temporal representativity of the 2-year measurement campaign.

Measurements of ammonia concentrations in the air over 22 months showed a typical situation of intensively agriculturally managed regions. The concentrations of ammonia measured above the canopy and in clearings averaged between  $8.8 \mu\text{g m}^{-3}$  (Augustendorf) and  $5.8 \mu\text{g m}^{-3}$  (Sandkrug).

The deposition of different nitrogen species derived by micrometeorological methods (PLATIN) in the pine forest Augustendorf added up to  $57 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ .  $13 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  were deposited as bulk deposition, and  $44 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  were deposited dry from gases and aerosol particles. Bulk deposition was composed of  $7.1 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  as  $\text{NH}_4\text{-N}$ ,  $4.4 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  as  $\text{NO}_3\text{-N}$ , and  $1.5 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  as  $\text{N}_{\text{org}}$ . Dry deposition consisted of  $16.2 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$   $\text{NH}_3\text{-N}$ ,  $14.1 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$   $\text{NH}_4\text{-N}$ ,  $8.2 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$   $\text{NO}_3\text{-N}$ ,  $2.9 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$   $\text{HNO}_3\text{-N}$ ,  $1.5 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$   $\text{NO}_2\text{-N}$  und  $0.8 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$   $\text{HNO}_2\text{-N}$ .

The N fluxes in throughfall measured simultaneously in Augustendorf were clearly lower ( $30 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ ). The difference of  $27 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  compared with the micrometeorological procedure could not be explained by canopy budget models (Ulrich, Draaijers and Erisman).

Despite measurement inaccuracies of about 20 % of all performed methods, the differences can only be explained with directly non-measurable canopy uptake of considerable amounts of nitrogen, fluxes of coarse particulates (filter residue) and gaseous N deposition to the forest floor.

N fluxes measured over 2 years (2002-2003) in throughfall of pine stands with a comparable structure amounted to  $30$ ,  $21$ , and  $23 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  at the survey sites Augustendorf, Sandkrug and Holdorf.

N throughfall in adjacent forest stands in Augustendorf (pine, Norway spruce, Douglas fir, oak) fell between  $14$  and  $31 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  predominantly below this level. 60% - 75% of inorganic nitrogen compounds were deposited as  $\text{NH}_4\text{-N}$ , 25% - 40% resulted from  $\text{NO}_3\text{-N}$  fluxes.

Structural parameters correlated with the amount of N throughfall fluxes. Close correlations were found with the volume of biomass and stand height, which can be used to regionalise N throughfall fluxes with forest inventory data.

The estimated amount of N deposition and the spatial pattern can be regarded as representative for many forests in the agriculturally intensively managed Weser-Ems region. The N deposition at the permanent plots Holdorf and Sandkrug showed a slight decrease, due to a decrease of  $\text{NH}_x$  and S deposition, but not at Augustendorf.

High N input rates intensify the N saturation associated with enhanced soil acidification and other effects on forest ecosystems with high nitrogen loads, such as in the Weser-Ems region. Further effects include elevated nitrogen concentrations in the tissue of leaves and needles, which contribute to low concentrations of other nutrients and a general disharmonic nutrient supply. Other adverse effects like enhanced nitrogen losses via seepage water differed very strongly in the investigated pine stands with comparable structure and long-term high N deposition.

Still, more information about dose-response relationships of enhanced N depositions, which could not be derived during this project, is required.

To reduce recent nitrogen loads of the forests and to keep their vitality and ecological function, more activities to reduce emissions of nitrogen are necessary, especially in the agricultural sector.

## Zusammenfassung

Für die meisten Baumarten mitteleuropäischer Wälder war Stickstoff (N) der wachstumsbegrenzende Nährstoff. In den zurückliegenden Jahrzehnten haben jedoch atmosphärische N-Einträge, die in Deutschland überwiegend anthropogenen Quellen entstammen (insb. Landwirtschaft, Straßenverkehr und Industrie), zu einer veränderten ökologischen Situation geführt. N ist hier kaum noch Mangelnährstoff, sondern stellt mittlerweile regional ein Gefährdungspotential für die Vitalität des Baumbestandes und die Funktion des Ökosystems insgesamt dar. Die Dosis-Wirkung-Beziehung ist aufgrund der multifaktoriellen Beziehung zwischen dem N-Eintrag und den ökologischen Reaktionen bei Wäldern komplex. Dabei kommt der Höhe des N-Eintrags eine ausschlaggebende Rolle zu.

Ziel des ANSWER-Projektes (*Atmospheric Nitrogen Deposition in the Weser-Ems Region*) war es, die Höhe der N-Einträge in einer durch relativ hohe N-Emissionen geprägten Region zu ermitteln und spezifische Wirkungen zu beschreiben. Bedingt durch die hohe Tierhaltungsdichte in der Region Weser-Ems galt dabei den reduzierten N-Spezies eine besondere Aufmerksamkeit. In einem repräsentativen Kiefernwaldökosystem (Augustendorf) wurde die N-Deposition mit mikrometeorologischen Verfahren und mit der Kronentraufemethode in Kombination mit Kronenraumbilanzierungen bestimmt, um den Rahmen zu beschreiben, in dem die N-Deposition liegt. Das mikrometeorologische Verfahren erlaubt u.a. eine weitgehende Differenzierung der deponierten N-Spezies. Die Übertragbarkeit der Ergebnisse auf andere Waldökosysteme in der Region Weser-Ems wurde überprüft, indem Kronentraufemessungen in strukturell vergleichbaren Kiefernbeständen an 30 - 50 km entfernt gelegenen Standorten (Holdorf, Sandkrug) sowie in strukturell unterschiedlichen Waldbeständen der Baumarten Kiefer, Fichte/Douglasie (Augustendorf) und Eiche (Herrenholz) unter jeweils vergleichbaren Immissionsbedingungen durchgeführt wurden.

Längerfristige Untersuchungen an den Standorten Augustendorf, Holdorf und Sandkrug erlauben zudem eine Einordnung der knapp 2-jährigen Untersuchungen in interanuelle Variationen und zeitliche Trends.

Die Messungen der Ammoniakkonzentrationen in der Luft spiegeln die von der Tierhaltung geprägte Immissionssituation deutlich wider. Im Mittel einer 22-monatigen Messperiode (2002/2003) betrugen die über den Waldbeständen und in Lichtungen gemessenen  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen  $8,8 \mu\text{g m}^{-3}$  (Augustendorf),  $8,6 \mu\text{g m}^{-3}$  (in Holdorf) und  $5,8 \mu\text{g m}^{-3}$  (Sandkrug).

Die mit mikrometeorologischen Verfahren ermittelte N-Deposition am Standort Augustendorf lag im 2-Jahresmittel (2002/2003) bei  $57 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ . Davon entfielen  $13 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  N auf die Bulk-Deposition und  $44 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  N auf die trockene Deposition aus Gasen und Schwebstäuben.  $7,1 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  wurden als  $\text{NH}_4$ ,  $4,4 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  als  $\text{NO}_3$  und  $1,5 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  als  $\text{N}_{\text{org}}$  Als Bulk-Deposition abgeschieden. Die trockene N-Deposition setzte sich aus  $16,2 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$   $\text{NH}_3\text{-N}$ ,  $14,1 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$   $\text{NH}_4\text{-N}$ ,  $8,2 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$   $\text{NO}_3\text{-N}$ ,  $2,9 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$   $\text{HNO}_3\text{-N}$ ,  $1,5 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$   $\text{NO}_2\text{-N}$  und  $0,8 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$   $\text{HNO}_2\text{-N}$  zusammen.

Die gleichzeitig über Kronentraufemessungen festgestellten N-Einträge am Standort Augustendorf lagen mit  $30 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  deutlich niedriger. Die Differenz von  $27 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  gegenüber dem mikrometeorologischen Verfahren konnte auch unter Einbeziehung der Kroneraumbilanzierungsansätze von Ulrich oder Draaijers und Erisman (1995) nicht erklärt werden. Auch unter Berücksichtigung möglicher Messungenauigkeiten von ca. 20 % bei allen eingesetzten Verfahren lässt sich eine Differenz in dieser Größenordnung nur durch hohe, direkt nicht messbare Aufnahmeraten im Kronenraum und partikular auf den Boden deponierter N-Frachten erklären.

Die in der Kronentraufe gemessenen N-Eintragsraten lagen in Augustendorf im 2-Jahresmittel bei  $30 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ . In den bestandsstrukturell vergleichbaren Kiefernbeständen Holdorf und Sandkrug wurden im gleichen Zeitraum  $21 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  und  $23 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  über Kronentraufe deponiert. Auch die N-Einträge in andere Bestandstypen (Fichte/Douglasie, Eiche) und Altersklassen lagen infolge bestandsspezifischer Unterschiede mit Werten zwischen 14 und  $31 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  überwiegend darunter.

Etwa 60 – 75 % des über den Bestandesniederschlag deponierten anorganischen N setzte sich aus reduzierten N-Spezies ( $\text{NH}_x$ ) zusammen, 25 - 40 % wurden über oxidierte N-Verbindungen ( $\text{NO}_y$ ) in den Boden eingetragen.

Es ergaben sich z.T. enge Beziehungen zwischen bestandesstrukturellen Parametern und dem Stoffeintrag. Diese waren insbesondere eng für die Beziehungen zwischen N-Eintrag und Biomassevolumen sowie Bestandeshöhe. Sie eignen sich damit für eine Regionalisierung auf Basis von Forsteinrichtungsdaten.

Die ermittelten N-Einträge sowie ihre lokalen und regionalen Unterschiede können für viele Waldstandorte der landwirtschaftlich intensiv genutzten Weser-Ems Region als repräsentativ betrachtet werden. In den letzten 10 Jahren war an den Dauermessstellen Holdorf und Sandkrug ein mehr oder minder deutlicher Rückgang der N-Einträge zu verzeichnen, der u.a. auf einer abneh-

menden Deposition reduzierter N-Spezies und Schwefel beruht.

Die hohen N-Einträge verstärken die N-Sättigung der Waldökosysteme. Aufgrund des hohen Anteils an reduziertem N an der N-Deposition wird die N-Sättigung von einer verstärkten Bodenversauerung begleitet. Die Waldbestände reagieren auf die hohen N-Einträge mit hohen N-Gehalten in den Blättern und Nadeln, die im Zusammenspiel mit eher geringen Gehalten anderer Nährstoffe eine unausgeglichene Nährstoffversorgung bewirken.

Mit den hohen N-Einträgen tendieren die Wälder zu erhöhten  $\text{NO}_3^-$ -Austrägen mit dem Sickerwasser. Allerdings gibt es diesbezüglich ein weites Reaktionsspektrum. Von den drei untersuchten Standorten mit gleich alten und gleich strukturierten Kiefernbeständen und mit langjährig etwa gleich hohen N-Einträgen in den Boden war sowohl eine Tendenz zu zunehmenden wie auch abnehmenden  $\text{NO}_3^-$ -Austrägen auf unterschiedlichem Niveau zu beobachten. Die Wirkungen bedürfen somit weiterer detaillierter Betrachtungen, die im Rahmen dieses Vorhabens nicht möglich waren. Auch vor dem Hintergrund der gefundenen Diskrepanz der mittels verschiedener Verfahren ermittelten N-Depositionen werden weitere experimentelle Untersuchungen zur Klärung der offenen Fragen für notwendig gehalten.

Zur Minderung gegenwärtig erhöhter N-Einträge und zur langfristigen Sicherung der Vitalität und Funktion der Waldstandorte sind weitere Anstrengungen zur Emissionsminderung auch im landwirtschaftlichen Bereich erforderlich.



## Inhaltsverzeichnis

<b>INHALTSVERZEICHNIS</b>	<b>6</b>
<b>1 DIE STICKSTOFF-BELASTUNG VON WALDÖKOSYSTEMEN – WIRKUNGEN, WIRKUNGSPFADE, OFFENE FRAGEN, GESAMTKONZEPT</b>	<b>10</b>
1.1 Stickstoff-Einträge und kritische Belastungen von Ökosystemen	10
1.2 Die Beeinträchtigung von Wäldern in Nordwestdeutschland durch Stickstoff-Depositionen	11
1.3 Die Bestimmung wirksamer Dosen – Diskrepanzen zwischen Bestandesniederschlägen, mikrometeorologischen Messungen und Modellergebnissen	12
1.4 Das Gesamtkonzept des ANSWER-Experiments	12
1.4.1 Ziele .....	12
1.4.2 Methoden .....	13
1.4.3 Orte .....	13
1.5 Literatur	14
<b>2 DIE BESTIMMUNG VON FLÜSSEN REAKTIVER STICKSTOFF-SPEZIES IN HOCH MIT STICKSTOFF BELASTETEN WALD-ÖKOSYSTEMEN – METHODISCHE GRUNDLAGEN, RANDBEDINGUNGEN UND KONZEPT DER MESSUNGEN UND MODELLIERUNGEN IM ANSWER-PROJEKT</b>	<b>16</b>
2.1 Ermittlung von wirksamen Flüssen reaktiver Stickstoff-Spezies in ein Kiefernwald-Ökotop	16
2.2 Bestimmung vertikaler Flüsse zwischen der Atmosphäre und einem Kiefern-Ökosystem – Konzepte, Modelle und Messungen	16
2.2.1 Dosis-Wirkung-Beziehungen .....	16
2.2.2 Stickstoff-Flüsse und –bilanzen in Wäldern .....	17
2.2.3 Relevante Spezies (Versauerung und Eutrophierung) .....	18
2.3 Randbedingungen der Messungen	19
2.4 Einfluss der Bestandesstruktur	20
2.5 Literatur	21
<b>3 DIE UNTERSUCHUNGSSTANDORTE IM ANSWER-PROJEKT</b>	<b>24</b>
3.1 Das Untersuchungsgebiet	24
3.1.1 Lage des Untersuchungsgebiets und der Untersuchungsstandorte - Übersicht.....	24
3.1.2 Das Klima im Untersuchungsgebiet .....	24
3.1.3 Wälder und Böden im Untersuchungsgebiet .....	25
3.2 Beschreibung der einzelnen Untersuchungsstandorte	25
3.2.1 Untersuchungsstandort Augustendorf.....	25
3.2.2 Untersuchungsstandort Herrenholz.....	26
3.2.3 Untersuchungsstandort Holdorf.....	26
3.2.4 Untersuchungsstandort Sandkrug .....	27
3.3 Literatur	27
<b>4 METHODEN ZUR BESTIMMUNG VON STOFFFLÜSSEN UND –KONZENTRATIONEN IM ANSWER-PROJEKT</b>	<b>30</b>
4.1 Messungen meteorologischer Größen	30
4.2 Konzentrationsmessungen in der Atmosphäre mit Denuder-Filter-Sammlern	31
4.2.1 Das Denuder-Filter-System KAPS, Aufbau und Wirkungsweise.....	31
4.2.2 Vorbereitung der Sammler, Exposition, Aufarbeitung und Analysenverfahren .....	32
4.2.3 Datenverfügbarkeit .....	33
4.2.4 Datenqualität.....	34
4.2.5 Schließung von Datenlücken .....	34
4.2.6 Zusammensetzung der Schwebstäube .....	38
4.3 Passiv-Sammler	39
4.3.1 Passiv-Sammler Bauart IVL .....	39
4.3.2 Passiv-Sammler der Bauart Blätter/Neftel.....	42

4.4	NH <sub>x</sub> -Messungen mit Waschflaschen	44
4.5	Depositionsmessungen mit Surrogatflächen	45
4.5.1	Bulk-Depositionen im Freiland .....	45
4.5.2	Kronentraufemessungen .....	46
4.5.3	Draaijers-Faktor (DF) .....	48
4.6	Sickerwasser	49
4.7	Charakterisierung der Bestände	49
4.7.1	Bestandesstrukturparameter .....	49
4.7.2	Hemisphärische Kronenfotos .....	49
4.7.3	Ernährung der Bestände .....	50
4.8	Datenerfassung	50
4.9	Literatur	50
<b>5</b>	<b>MODELLIERUNG DER STOFFFLÜSSE IN WALDBESTÄNDEN IM ANSWER-PROJEKT</b>	<b>53</b>
5.1	Die Bestimmung der Flüsse reaktiver Stickstoff-Spezies in Augustendorf mit Widerstandsmodellen	53
5.1.1	Die Bestimmung der trockenen Deposition von Gasen mit Hilfe von PLATIN .....	54
5.1.2	Berechnung des aerodynamischen Widerstands .....	55
5.1.3	Die Berechnung der latenten Wärme .....	56
5.1.4	Widerstand der quasi-laminaren Grenzschicht .....	56
5.1.5	Bestandeswiderstand .....	56
5.1.6	Stomatärer Kompensationspunkt für Ammoniak .....	58
5.1.7	Bestandes-Kompensationspunkt für Ammoniak .....	58
5.2	Vertikale Flüsse von Schwebstaub-Partikeln	58
5.3	Mikrometeorologische Bestimmung von Bestandeshöhe, Verschiebungshöhe und Rauhigkeitslänge	58
5.4	Berechnung der trockenen Deposition von Stickstoffdioxid	59
5.5	Schließung von Datenlücken bei meteorologischen Parametern zur Flussbestimmung	59
5.4.1	Lufttemperaturen .....	59
5.4.2	Windgeschwindigkeiten .....	59
5.4.3	Relative Luftfeuchte .....	60
5.4.4	Globalstrahlung und Nettostrahlung .....	60
5.4.5	Datenlücken durch Messausfälle .....	60
5.5	Modellierung des Bodenwasserhaushalts mit dem Wasserhaushaltsmodell SIMPEL	61
5.6	Kronenraumbilanzmodelle	61
5.6.1	Das Kronenraumbilanzmodell nach Ulrich .....	61
5.6.2	Das Draaijers-Modell .....	62
5.7	Literatur	63
<b>6</b>	<b>WITTERUNG, SPURENGAS- UND SCHWEBSTAUB-INHALTSSTOFF-KONZENTRATIONEN IN DER UMGEBUNGSLUFT UND IN DEN BESTÄNDEN DES ANSWER-PROJEKTS</b>	<b>65</b>
6.1	Witterung im Weser-Ems-Gebiet	65
6.2	Konzentrationen von Ammoniak-, Stickstoffdioxid-, Schwefeldioxid- und Ozon-Konzentrationen in Augustendorf und Herrenholz	66
6.3	Messungen der NH <sub>3</sub> -Konzentrationen mit Passivsammeln in der Umgebungsluft an den Messstellen Augustendorf, Holdorf und Sandkrug	67
6.4	Untersuchungen zur Repräsentativität der Konzentrationsmessungen über der Freifläche im Hinblick auf die Verhältnisse über und im Bestand	69
6.4.1	Regionaler Vergleich .....	70
6.4.2	Überregionaler Vergleich .....	74
6.4.3	Messungen an Schwebstaub-Inhaltsstoffen am Standort Bösel .....	75
6.5	Literatur	75
<b>7</b>	<b>STOFF- UND ENERGIEFLÜSSE DER IM ANSWER-PROJEKT UNTERSUCHTEN WALDBESTÄNDE</b>	<b>77</b>
7.1	Energiebilanz am Standort Augustendorf	77

7.2	Stoffkonzentrationen und -Flüsse aus der Gasphase am Standort Augustendorf	78
7.2.1	Ammoniak.....	78
7.2.2	Salpetersäure.....	79
7.2.3	Schwefeldioxid .....	79
7.3	Konzentrationen und Flüsse von Schwebstaub-Inhaltsstoffen	80
7.3.1	Ammonium.....	80
7.3.2	Nitrat.....	80
7.3.3	Sulfat.....	80
7.3.4	Chlorid.....	81
7.3.5	Natrium.....	81
7.4	Trockene Deposition	81
7.4.1	Depositionsgeschwindigkeiten .....	82
7.4.2	Fehlerschätzung für die trockene Deposition von Gasen und Schwebstäuben.....	82
7.5	Sedimentierende Deposition in Kiefern-, Fichten-/Douglasien- und Eichenbeständen	83
7.5.1	Stickstoff-Einträge an den Messstandorten Augustendorf und Herrenholz.....	83
7.5.2	Mittelfristige Trends der Stickstoff-Flüsse in der Kronentraufe am Standort Augustendorf.....	91
7.5.3	Stoff-Flüsse in der Kronentraufe und mittelfristige Trends am Standort Holdorf.....	92
7.5.4	Stoff-Flüsse in der Kronentraufe und mittelfristige Trends am Standort Sandkrug .....	94
7.6	Stickstoff-Austräge aus dem System	96
7.6.1	Stickstoff-Austräge am Standort Augustendorf.....	96
7.6.2	Stickstoff-Austräge am Standort Holdorf.....	96
7.6.3	Stickstoff-Austräge am Standort Sandkrug .....	97
7.7	Vergleich der Elementflüsse und Ökosystembilanzen der Standorte Augustendorf, Sandkrug und Holdorf	97
7.7.1	Stoffflüsse in der Kronentraufe.....	97
7.7.2	Stoffbilanzen.....	99
7.8	Literatur	102
<b>8</b>	<b>STICKSTOFF-EINTRÄGE UND -BILANZEN IN DEN WÄLDERN DES ANSWER-PROJEKTES – EINE SYNTHESE</b>	<b>105</b>
8.1	Depositionen in Wälder im Weser-Ems Gebiet	105
8.2	Zur Vergleichbarkeit von mikrometeorologischen Stoffflussmessungen und Einträgen mit der Kronentraufe	105
8.3	Elementeinträge am Standort Augustendorf	107
8.3.1	Natrium- und Chlorid-Deposition.....	107
8.3.2	Schwefel-Deposition .....	109
8.3.3	Stickstoff-Deposition.....	109
8.4	Übertragbarkeit der ermittelten Stickstoff-Einträge und -Bilanzen	112
8.4.1	Zeitliche Repräsentativität .....	112
8.4.2	Räumliche Repräsentativität auf lokaler Ebene .....	112
8.4.3	Räumliche Repräsentativität auf regionaler Ebene .....	113
8.5	Effekte erhöhter Stickstoff-Einträge auf Waldökosysteme und benachbarte Ökosysteme	114
8.6	Literatur	116
<b>9</b>	<b>UNMITTELBARE FOLGEWIRKUNGEN DES ANSWER-PROJEKTS IM BEREICH DER AMMONIAK-MESSUNGEN</b>	<b>119</b>





# 1 Die Stickstoff-Belastung von Waldökosystemen – Wirkungen, Wirkungspfade, offene Fragen, Gesamtkonzept

K. Mohr<sup>1</sup>, H. Meesenburg<sup>2</sup>, U. Dämmgen<sup>3</sup>

## 1.1 Stickstoff-Einträge und kritische Belastungen von Ökosystemen

Mit dem Einfluss des Menschen auf die Stoffkreisläufe seiner Umwelt trägt er indirekt zu einer Veränderung der Natur bei. Während die Auswirkungen von Luftverunreinigungen heute bereits die Grenzen der Biosphäre mehr und mehr überschritten, traten sie anfangs noch lokal begrenzt und zumeist deutlich sichtbar in Erscheinung (Gorham 1958). Sie ließen sich dadurch relativ einfach mit ihren Ursachen und Verursachern in Verbindung bringen. Technische Maßnahmen zur Reduktion der Schadstoffquellen führten zu einer deutlichen Verbesserung der Umwelt, so dass Belastungssituationen, wie sie aus Ballungsgebieten bis in die 70er Jahre in Westdeutschland oder bis in die 90er Jahre in Ostdeutschland bekannt waren, zur Vergangenheit zählen.

Auch in emittentenfernen Regionen hat sich die Luftqualität insgesamt, insbesondere aber durch die Reduktion von Schwefeldioxid-, Staub- und Schwermetall-Emissionen erheblich verbessert, wenngleich die "Politik der hohen Schornsteine" zunächst zu einer Angleichung der Belastungen und zu einer Erhöhung insbesondere durch versauernd wirkende Schwefel-Spezies nach sich zog. In den ballungsraumfernen Waldregionen vollzog sich zunehmend eine Entwicklung, die vielerorts nicht mit den messbaren Erfolgen der Emissionsminde rung im Einklang stand: Unter dem Begriff „Neuartige Waldschäden“ ist eine Vielzahl von Schadssymptomen zusammengefasst, denen gemeinsam ist, dass sie keinen räumlichen Bezug zu Schadstoffquellen aufweisen und dass ihre Ursachen komplex und bis heute nicht eindeutig bekannt sind (Ulrich 1991). In der Waldökosystemforschung der beiden letzten Jahrzehnte mehrten sich die Anzeichen für eine bedeutende Rolle hoher Stickstoff-Einträge (N-Einträge) in diesem Ursachenkomplex (erste Hinweise bei Ellenberg 1977, dann mit zunehmender Sicherheit z.B. Nihlgard 1985, Grennfelt und Hultberg 1986, Kenk und Fischer 1988, Skeffington und Wilson 1988, Aber et al. 1989, Ellenberg 1989,

Hofmann et al. 1990, Aber et al. 1993, Bobbink et al. 1998, Rennenberg und Gessler 1999). Ursache hierfür ist eine grundsätzliche Veränderung der Emissionsmuster und der Atmosphärenchemie von reaktiven N-Spezies, die aus menschlichen Aktivitäten resultieren. Hauptquellen der ökotoxikologisch relevanten N-Spezies sind Verbrennungsprozesse von Industrie, Straßenverkehr und Hausbrand, bei denen oxidierte Verbindungen ( $\text{NO}_x$ ) entstehen, sowie landwirtschaftliche Produktionsverfahren, die durch Tierhaltung und Düngung zur Freisetzung von Ammoniak ( $\text{NH}_3$ ) führen. Reduzierte ( $\text{NH}_x$ ) und oxidierte ( $\text{NO}_y$ ) N-Spezies sind in Deutschland mit jeweils ca. 500 Gg  $\text{a}^{-1}$  zu etwa gleichen Teilen an der Emission eutrophierender N-Verbindungen in die Atmosphäre beteiligt (2002: 459 Gg  $\text{a}^{-1}$   $\text{NO}_x$ -N, 508 Gg  $\text{a}^{-1}$   $\text{NH}_3$ -N; Umweltbundesamt 2004).

Die ökologischen Wirkungen oxidiertener und reduzierter N-Spezies sind vielfältig, zum Teil sehr unterschiedlich oder auch nicht voneinander zu unterscheiden (Krupa 2003). Während nur oxidierte N-Verbindungen zur Bildung von troposphärischem Ozon beitragen, verfügen sowohl NO und deren Reaktionsprodukte ( $\text{NO}_y$ ) als auch  $\text{NH}_x$  ( $\text{NH}_3$  und  $\text{NH}_4$ ) als natürlicher Nährstoff über eine hohe pflanzen- und ökophysiologische Wirksamkeit. Negative Wirkungen sind dosisabhängig, von zahlreichen Standortgegebenheiten abhängig und von Pflanzenart zu Pflanzenart unterschiedlich zu bewerten. Letztlich ist ein *ökosystemarer Bezug* von entscheidender Bedeutung, mit dem festgestellt werden kann, ob eine positiv zu beurteilende düngende Wirkung oder eine Stresssituation vorliegt, die zu wahrnehmbaren Veränderungen bishin zu irreversiblen Schädigungen der Pflanze oder des Ökosystems führen kann. Solche ökosystemaren Zusammenhänge messen sich an der Fähigkeit des Gesamtsystems, Stoff-Einträge zu verarbeiten. Wichtige Stoffeinträge sind hierbei die Einträge versauernd wirkender Stoffe und düngend wirkender Stoffe, aber auch unmittelbar giftige Stoffe wie z.B. Schwermetalle. Wichtige Maßzahlen beschreiben die Sättigung eines Systems etwa mit Stickstoff oder die kritische Belastung (Critical Load). Critical Loads sind dabei jene Stoffeinträge, deren Unterschreitung nach dem derzeitigen Stand des Wissens keine vom Menschen als nachteilig bewerteten Veränderungen erwartet lässt.

Nach dem Konzept der „Critical Loads“ (Nagel und Gregor 1999) sind zahlreiche natürliche Lebensräume in Deutschland als empfindlich gegenüber höherem atmogenen N-Angebot einzustufen. Der Wald zählt zusammen mit Hochmooren, Magerrasen, Heiden und oligotrophen Stillgewässern

<sup>1</sup> Landwirtschaftskammer Weser-Ems, Mars-la-Tour-Str. 9-13, 26121 Oldenburg. k.mohr@lwk-we.de

<sup>2</sup> Niedersächsische Forstliche Versuchsanstalt, Grätzelstr. 2, 37079 Göttingen

<sup>3</sup> Bundesforschungsanstalt für Landwirtschaft, Institut für Agrarökologie, Bundesallee 50, 38116, Braunschweig

zu den besonders N-empfindlichen Ökosystemen. Waldökosysteme sind von Natur aus an N-Mangel adaptiert; N ist für den Baumbestand der limitierende Wachstumsfaktor. Dementsprechend bewirken erhöhte N-Einträge zunächst eine Wachstumssteigerung, denen bei langanhaltend hohen N-Einträgen unerwünschte Wirkungen gegenüberstehen.

Die unter dem Begriff „Stickstoff-Sättigung“ (Ågren und Bosatta 1988, Kölling 2001) zusammengefassten Phänomene resultieren letztlich aus dem kontinuierlichen Prozess der N-Anreicherung im Ökosystem und damit verbundenen Änderungen von ökosystemaren Prozessraten (Aber et al. 1989, Aber et al. 1998, Aber 2002).

Wesentlicher Faktor ist die lange Lebensdauer von Baumbeständen, in dem sich ein halbgeschlossener Stoffhaushalt einstellt (Ellenberg 1996), der, ohne externe Einträge ausschliessen zu können, Schad- und Nährstoffe langfristig sammelt, umbaut und gegebenenfalls wieder freisetzt.

Die negativen Auswirkungen überhöhter N-Einträge können in mannigfacher Weise auftreten. Ihre Reaktionszeit ist in Waldökosystemen aufgrund der natürlichen Puffermechanismen wie z.B. Pflanzenwachstum, N-Akkumulation und Mineralverwitterung im Boden mitunter sehr lang. Sie treten oft moderat und nicht ohne weiteres unterscheidbar von Effekten anderer Einflussfaktoren in Erscheinung. Sie lassen sich wie folgt zusammenfassen (vgl. Mohr 1994, Ortloff und Schlaepfer 1996, Schmieden 1997, Skiba et al. 1998, Boxman et al. 1998, Wallenda und Kottke 1998, Meiwas et al. 1999, Oura et al. 2001, Gehrmann et al. 2001, Butterbach-Bahl et al. 2002, Borken und Matzner 2004):

- Durch die zunächst wachstumsstimulierende Wirkung erhöhter N-Einträge treten Verluste wichtiger Nährelemente (Ca, K, Mg, P) mit der Holznutzung auf. Die bereits durch andere Faktoren (natürliche Silikat- und Basenarmut der Böden, Ozon-Belastung, Bodenversauerung) hervorgerufenen Mängelscheinungen können sich verschärfen und letztlich zu physiologischen Störungen führen.
- Erhöhte N-Gehalte der Baumgewebe führen vermutlich zu einer verminderten Frost- und Trockenheitsresistenz und zu einer erhöhten Gefahr durch Schaderregerbefall.
- Erhöhte N-Depositionen haben nachteilige Folgen auf die Mykorrhizierung der Bestände.
- Die höheren Konzentrationen von  $\text{NH}_4^+$  in der Bodenlösung wirken sich hemmend auf die Aufnahme anderer Nährstoff-Kationen (Ca, K, Mg) aus.
- Überschüssiges Nitrat ( $\text{NO}_3^-$ ) kann das Grundwasser belasten und darüber hinaus als „Kationen-Schlepper“ zu einer verstärkten Auswaschung basischer Nährstoff-Kationen führen

- Sowohl die oxidierten ( $\text{NO}_x$ ) als auch die reduzierten ( $\text{NH}_x$ ) N-Spezies können zu einer Bodenversauerung führen. Ihre Säurewirksamkeit ist u.a. abhängig von weiteren Reaktionen im Ökosystem, z.B. von der Höhe des Nitrat-N-Austrags.
- Je nach Basen-Ausstattung der Böden führt das erhöhte N-Angebot zu einer mehr oder minder raschen Sukzession der Pflanzenbestände zu nährstofftoleranten, floristisch einheitlicheren Pflanzen- und letztlich auch Tiergemeinschaften. In Gebieten mit geringen Niederschlägen kann die höhere Biomasseproduktion zu einer Veränderung des Gebietswasserhaushaltes und zu verringelter Grundwasserneubildung führen.
- Ist ihre N-Aufnahmekapazität erschöpft, so fungieren Waldökosysteme als Quelle verschiedener gelöster ( $\text{NO}_3^-$ ) und gasförmiger (u.a.  $\text{NO}$ ,  $\text{N}_2\text{O}$ ) N-Verbindungen, wodurch sich ihre ursprüngliche Funktion als „Schadstoff-Filter“ ins Gegenteil verkehrt.
- N ist ein regulierender Faktor für die Methan-Oxidation in Böden. Erhöhte N-Einträge sind deshalb indirekt klimawirksam (Bodelier und Laanbroek 2004).

## 1.2 Die Beeinträchtigung von Wäldern in Nordwestdeutschland durch Stickstoff-Depositionen

Die durch N-Depositionen verursachten Umweltbelastungen sind regional sehr unterschiedlich. Auf mehr als 90 % der Fläche Deutschlands sind die Critical Loads für Eutrophierung mehr oder minder deutlich überschritten (Gauger et al. 2002).

Wälder in Nordwestdeutschland sind von erhöhten N-Einträgen besonders betroffen, weil

- sie in der Regel auf schwach gepufferten, silikatarmen Böden stocken,
- ihre Baumartenzusammensetzung überwiegend N-empfindlichere Nadelhölzer aufweist,
- die Region großräumig landwirtschaftlich genutzt wird und aufgrund der hohen Viehdichte relativ hohen  $\text{NH}_3$ -Emissionen und N-Depositionen unterliegt und
- sie aufgrund ihrer starken Fragmentierung und damit verbundenen Randeffekten sowie der verhältnismäßig hohen Windgeschwindigkeiten in diesem Raum günstige Abscheidungsbedingungen für Luftinhaltstoffe bieten.

Die Grundwasservorkommen in dieser Region werden zu einem hohen Anteil für die Trinkwassergewinnung genutzt, wobei bevorzugt Waldgebiete für die Grundwassergewinnung herangezogen werden, da landwirtschaftlich genutzte Flächen in der Regel deutlich höhere N-Austräge mit dem Sickerwasser aufweisen.

Die sich aus dieser besonderen Situation ergebenden Umweltwirkungen wurden bisher nur zum

Teil im Zusammenhang mit Stoffflussmessungen im Rahmen von Monitoringprogrammen (Meesenburg et al. 1997, Meesenburg et al. 2002) und Fallstudien (z.B. Mohr 2000) erfasst. Grundlegende Informationen, speziell über die Deposition (Höhe der Gesamtdepositionen, räumliche Verteilung) der reduzierten und oxidierten N-Spezies ( $\text{NH}_x$ ,  $\text{NO}_y$ ) fehlten bislang aus dieser Region und sollen mit der vorliegenden Studie aufgegriffen werden.

### 1.3 Die Bestimmung wirksamer Dosen – Diskrepanzen zwischen Bestandesniederschlägen, mikrometeorologischen Messungen und Modellergebnissen

Das Gesamtverständnis der Stickstoff-Dynamik dieser Wälder sowie das der Dynamik reaktiver N-Spezies in der Atmosphäre bleibt unbefriedigend. Messungen von atmosphärischen Konzentrationen werden – mit Ausnahme von Stickstoffmonooxid ( $\text{NO}$ ) und Stickstoffdioxid ( $\text{NO}_2$ ) – praktisch nicht durchgeführt. Deren örtliche Repräsentativität ist für die Erörterung von Dosis-Wirkung-Beziehungen in vielen Fällen zweifelhaft. Ihre Bedeutung für den N-Haushalt der Wälder ist vermutlich jedoch gering.

Konzentrationen in der Atmosphäre lassen sich berechnen, sofern Emissionen, Transmissionsprozesse (chemische Reaktionen, horizontale und vertikale Transportvorgänge) und die Senkenprozesse (Inkorporation in Partikel, insbesondere Niederschläge und Deposition) bekannt sind. Die Emissionen von Stickstoffoxiden und von  $\text{NH}_3$  werden zwar in Inventaren erfasst; deren Qualität ist jedoch nicht befriedigend, wie aus dem Vergleich modellierter und gemessener Konzentrationen und Flüsse hervorgeht (Fagerli 2004).

Die chemischen Reaktionen der genannten Spezies mit anderen Luftbestandteilen sind im Prinzip bekannt, lassen sich aber ohne Kenntnis der Konzentrationen und Emissionen nur in generalisierenden Modellen abbilden. Dies gilt auch für die Transportvorgänge in der Atmosphäre einschließlich der Depositionen.

Die Kenntnis der Deposition ist wesentliche Voraussetzung für die Formulierung von Ursache-Wirkung-Beziehungen in der Ökotoxikologie von Ökosystemen (Dämmgen et al. 1993, 1997). Depositionen sind definitionsgemäß Flüsse in das Ökosystem als Ganzes (Norm VDI 2450). Wirksam sind diejenigen Teilflüsse, die am jeweiligen Wirkort unangemessen hoch oder niedrig sind. Wirkorte in diesen Systemen sind insbesondere der Kronenraum und die Rhizosphäre als Orte der Photosynthese bzw. der Nährstoff- und Wasseraufnahme.

Es ist in Deutschland üblich, den sog. Bestandesniederschlag als Maß für die Belastung eines Waldökosystems durch luftgetragene Stoffe ein-

schließlich der Niederschläge zu erfassen. Bestandesniederschläge sind jedoch lediglich diejenigen Teilflüsse, die über die (Bestandes-)Atmosphäre in den Boden gelangen. Mit Hilfe von Kronenraumbilanzmodellen (Ulrich 1994, Draaijers und Erisman 1995) versucht man, auf die Gesamteinträge in den Bestand als Dosis für Dosis-Wirkung-Beziehungen zu schließen. In der Vergangenheit hat sich gezeigt, dass die Ergebnisse von Modellrechnungen zur Deposition in Wäldern und von Bestandesniederschlags-Messungen für Stickstoff-Spezies nicht oder nur sehr schlecht übereinstimmten (Lamersdorf et al. 1998, Gauger et al. 2002, Fowler et al. 2003) (vgl. Abbildungen 1.1 und 1.2).

Prinzipiell erfassen diese Methoden unterschiedliche Flüsse (Dämmgen et al. 1997). Es sollte daher auch geklärt werden, ob und inwieweit unterschiedliche Stoffflussmessungen in einem intensiv untersuchten Waldbestand mit unterschiedlichen Depositionsmodellen in Einklang gebracht werden können.

### 1.4 Das Gesamtkonzept des ANSWER-Experiments

#### 1.4.1 Ziele

Wesentliches Ziel des ANSWER-Experiments (*Atmospheric Nitrogen DepoSition in the Weser-Ems Region*) ist die Erstellung einer aufgeschlüsselten N-Bilanz für ein Waldökosystem. Besonderes Gewicht soll dabei der Erfassung möglicher Prozesse im Kronenraum sein, die zu Unterschieden zwischen der beobachteten Gesamt-Deposition und dem Bestandesniederschlag führen: Die Aufnahme und Metabolisierung von N-Spezies im Kronenraum ist zwar in vielen Fällen nachgewiesen (z.B. Brumme et al. 1992, Eilers et al. 1992, Lovett und Lindberg, 1993, Pérez-Soba und van der Eerden 1993, Pérez-Soba et al. 1994, Garten et al. 1998), aber unzureichend quantifiziert.

Die Fehler der Messungen und Modellierungen sollen quantifiziert und dokumentiert werden.

Zahlreiche Untersuchungen haben einen maßgeblichen Einfluss von Bestandseigenschaften auf die Depositionshöhe ergeben (Meesenburg et al. 1995, Ringe et al. 2001, Rothe et al. 2002). Daher soll ermittelt werden, welche bestandesstrukturellen Eigenschaften den Depositionsprozess steuern. Dies ist insbesondere vor dem Hintergrund einer zunehmenden Bedeutung von flächendifferenzierten Informationen zu Stoffeinträgen in Wälder erforderlich, um das Ausmaß der Gefährdung durch hohen N-Eintrag genauer abschätzen sowie daran geknüpfte Entscheidungen zum Flächenmanagement bezüglich forstlicher Maßnahmen oder zur Grundwasserbewirtschaftung treffen zu können.

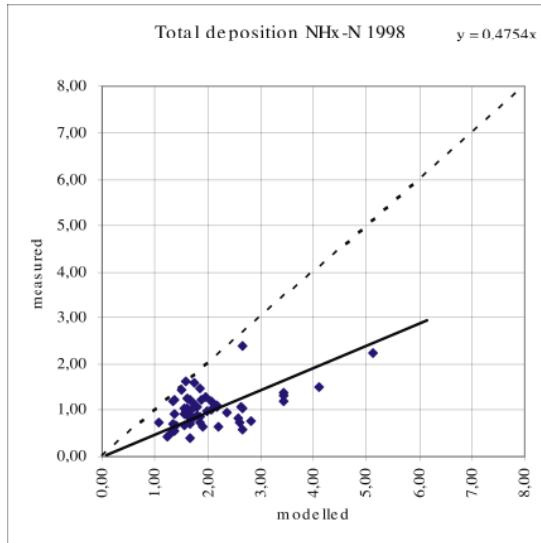


Abbildung 1.1  
Vergleich von modellierten Depositionsdaten und Be-  
standesniederschlagsmessungen, NH<sub>x</sub>-N-Depositionen  
(Datensätze aus Gauger et al. 2002, Privatmitteilung  
Gauger)

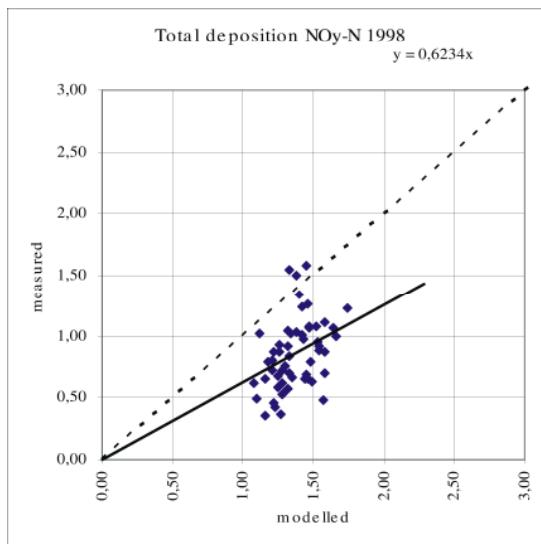


Abbildung 1.2  
Vergleich von modellierten Depositionsdaten und Be-  
standesniederschlagsmessungen, NO<sub>3</sub>-N-Depositionen  
(Datensätze aus Gauger et al. 2002, Privatmitteilung  
Gauger)

#### 1.4.2 Methoden

Das in diesem Bericht beschriebenen Forschungsvor-  
haben ANSWER hat eine raum- und standortbezo-  
gene Ermittlung atmogener N-Flüsse in Wäldern  
Nordwestdeutschlands und deren ökologische Aus-  
wirkungen zum Ziel. Dabei sollen die üblichen  
Verfahren zur Erfassung der atmosphärischen Bela-  
stung – Bestandesniederschlags-Messungen und  
mikrometeorologische Messungen – nebeneinander

eingesetzt werden, um beide gemeinsam zur Lösung  
des Bilanzproblems zu nutzen.

Eine hinsichtlich der Bearbeitungsintensität  
abgestufte Vorgehensweise soll erlauben, an einem  
Ort Flüsse mit bekannter Genauigkeit zu bestimmen  
und die dort gewonnenen Ergebnisse mit Hilfe  
weiterer Messungen an anderen Orten auf die dortige  
Situation zu übertragen und damit gebietstypische  
Aussagen zu erhalten.

Basis der Dosis-Wirkungs-Ermittlung sind Stoff-  
flussmessungen, hilfsweise auch Konzentrationsmes-  
sungen. Sie werden an allen Standorten mit gleicher  
oder vergleichbarer Methodik, jedoch nicht in glei-  
chem Umfang durchgeführt.

Weitere Untersuchungen an den Ökosystem-  
Kompartimenten Baumbestand, Bodenvegetation,  
Boden, Bodenwasser erfolgen, um Wechselbezie-  
hungen zwischen den bestehenden Stoffflüssen und  
anderen ökologischen Merkmalen und Prozessen  
herauszustellen.

#### 1.4.3 Orte

Da die wenigen entsprechenden deutschen Messun-  
gen in mit Stickstoff eher geringer belasteten Wäl-  
dern durchgeführt werden, lag es nahe, solche Mes-  
sungen an einem wahrscheinlich hoch belasteten  
Standort zu unternehmen.

Für die Untersuchungen besonders geeignet  
erschienen drei Kiefernökosysteme in Nordost-  
Niedersachsen (Augustendorf, Sandkrug und Hold-  
dorf), in denen bereits seit mehreren Jahren Stoff-  
flüsse und Konzentrationen in der Luft gemessen  
werden. Hierdurch reduzierten sich Aufwand und  
Kosten für Geräteinstallationen. Darauf hinaus  
ermöglichen sie Aussagen zur zeitlichen Repräsen-  
tativität der im Projektzeitraum ermittelten Mes-  
sungen. Diese Messstandorte wurden für das Projekt  
erheblich aufgerüstet. Für Untersuchungen der  
bestandsspezifischen Wirkungen wurde der laub-  
waldreiche Standort Herrenholz neu hinzugezogen.

Die Auswahl der Kiefernwälder hat mehrere  
Gründe. Zum einen handelt es sich mit einem Anteil von  
44 % an der Waldfläche des niedersächsischen  
Tieflands um den aus ökonomischer und land-  
schaftsökologischer Sicht bedeutendsten Waldtyp.  
Bewirtschaftete Kiefernwälder, insbesondere die  
schwach gepufferter Sandböden, verfügen über eine  
eng begrenzte Toleranz gegenüber N-Einträgen.  
Ihre Critical Loads liegen nach Nagel und Gregor  
(1999) in einem Bereich zwischen 7 und 15 kg ha<sup>-1</sup>  
a<sup>-1</sup> N. Darauf hinaus stocken die forstwirtschaft-  
lich genutzten Kiefernwälder in diesen Regionen  
auf relativ einheitlichen Standorten, so dass ange-  
nommen werden kann, dass die Varianz von Schad-  
stoff-Depositionen und deren Auswirkungen weit-  
gehend immissions- sowie bestandesstrukturbedingt

und weniger auf wechselnde Standortverhältnisse zurückzuführen ist.

## 1.5 Literatur

- Aber JD (2002) Nitrogen saturation in temperate forest ecosystems: current theory, remaining questions and recent advances. *Plant Soil* 247, 179-188.
- Aber JD, Magill A, Boone R, Mellilo JM, Steudler P, Bowden R (1993) Plant and soil responses to chronic nitrogen additions at the Harvard forest, Massachusetts. *Ecol Appl* 3, 156-166.
- Aber JD, McDowell W, Nadelhoffer K.J, Magill A, Berntson G, Kamakea M, McNulty S, Currie W, Rustad L, Fernandez I (1998) Nitrogen saturation in temperate forest ecosystems: Hypotheses revisited. *BioScience* 48, 921-934.
- Aber JD, Nadelhoffer KJ, Steudler P, Melillo JM (1989) Nitrogen saturation in northern forest ecosystems: Hypotheses and implications. *BioScience* 39, 378-386.
- Ågren GI, Bosatta E (1988) Nitrogen Saturation of Terrestrial ecosystems. *Environ Pollut* 54, 185-197.
- Bobbink R, Hornung M, Roelofs JGM (1998) The effects of air-borne nitrogen pollutants on species diversity in natural and semi-natural European vegetation. *J Ecology* 86, 717-738.
- Bodelier PLE, Laanbroek HJ (2004) Nitrogen as a regulatory factor of methane oxidation in soils and sediments. *FEMS Microbiol Ecol* 47, 265-277.
- Borken W, Matzner E (2004) Nitrate leaching in forest soils: an analysis of long-term monitoring sites in Germany. *J Plant Nutr Soil Sci* 167, 277-283.
- Boxman AW, Blanck K, Brandrud TE, Emmett BA, Gundersen P, Hogervorst RF, Kjønaas OJ, Persson H, Timmermann V (1998) Vegetation and soil biota response to experimentally-changed nitrogen inputs in coniferous forest ecosystems of the NITREX project. *Forest Ecol Management* 101, 65-79.
- Brumme R, Leimcke U, Matzner E (1992) Interception and uptake of  $\text{NH}_4$  and  $\text{NO}_3$  from wet deposition by above-ground parts of young beech (*Fagus silvatica L.*) trees. *Plant Soil* 142, 273-279.
- Butterbach-Bahl K, Breuer L, Gasche R, Willibald G, Papen H (2002) Exchange of trace gases between soils and the atmosphere in Scots pine forest ecosystems in the northeastern German lowlands. 1. Fluxes of  $\text{N}_2\text{O}$ ,  $\text{NO}/\text{NO}_2$  and  $\text{CH}_4$  at forest sites with different N deposition. *Forest Ecol Management* 167, 123-134.
- Dämmgen U (Hrsg.) (2004) Nationaler Inventarbericht 2004 – Berichterstattung unter der Klimarahmenkonvention der Vereinten Nationen – Teilbericht für die Quellgruppe Landwirtschaft. *Landbauforsch Völkenrode* SH 260.
- Dämmgen U, Grünhage L, Haenel H-D, Jäger H-J (1993) Climate and Stress in Ecotoxicology – A Coherent System of Definitions and Terms. *Angew Bot* 67, 157-162.
- Dämmgen U, Grünhage L, Jäger H-J (1997) Description, assessment and meaning of vertical flux densities of matter within ecotopes: A systematic consideration. *Environ Pollut* 96, 249-260.
- Draaijers GPJ, Erisman JW (1995) A canopy budget model to assess atmospheric deposition from through-fall measurements. *Water Air Soil Pollut* 85, 2253-2258.
- Ellenberg H (1977) Stickstoff als Standortsfaktor, insbesondere für mitteleuropäische Pflanzengesellschaften. *Oecologia Plantarum* 12, 1-22.
- Ellenberg H (1989) Eutrophierung – das gravierendste Problem im Naturschutz? Zur Einführung. *NNA-Berichte* 2/1, 4-13.
- Eilers G, Brumme R, Matzner E (1992) Above-ground N-uptake from wet deposition by Norway spruce (*Picea abies* Karst.) *Forest Ecol Managem* 51, 239-249.
- Fagerli H (2004) Air concentrations and depositions of acidifying and eutrophying components, status 2002. Transboundary acidification, eutrophication and ground level ozone in Europe. Status report 1/2004. EMEP Report 1/2004. Kjeller, Norwegian Meteorological Institute. S. 77-107.
- Fowler D, Erisman JW, Sutton M, Nemitz E, Pilegaard K, Gallagher M, Tuovinen J-P, Duyzer J, Grünhage L, Dämmgen U, Cieslik S (2003) Deposition fluxes of air pollutants to terrestrial surfaces in Europe. In: Midgley P, Reuther M (Hrsg.) *Towards cleaner air for Europe - Science, Tools and Applications. Part 1: Results from the EUROTRAC-2 Synthesis and Integration Project*. Margraf, Weikersheim. S. 41-71.
- Garten CT, Schwab AB, Shirshac TL (1998) Foliar retention of  $^{15}\text{N}$  tracers: implications for net canopy exchange in low- and high-elevation forest ecosystems. *Forest Ecol Managem* 103, 211-216.
- Gauger Th, Anshelm F, Schuster H, Erisman JW, Vermeulen AT, Draaijers PG, Bleeker A, Nagel HD (2002) Mapping of ecosystem specific long-term trends in deposition loads and concentrations of air pollutants in Germany and their comparison with critical loads and critical levels. Part 1: Deposition loads 1990-1999. Final Report Project 299 42 210, Umweltbundesamt. Institut für Navigation der Universität Stuttgart.
- Gehrman J, Andreae H, Fischer U, Lux W, Spranger T (2001): Luftqualität und atmosphärische Stoffeinträge an Level II - Dauerbeobachtungsflächen in Deutschland. BMVEL. Berlin. 94 S.
- Gorham E (1958) The influence and importance of daily weather conditions in the supply of chloride, sulphate, and other ions to fresh water from atmospheric precipitation. *Phil Trans R Soc London B* 241, 147-178.
- Grennfelt P, Hultberg H (1986) Effects of nitrogen deposition on the acidification of terrestrial and aquatic ecosystems. *Water Air Soil Pollut* 30, 946-963
- Hofmann G, Heinsdorf D, Krauß K-H (1990) Wirkung atmogener Stickstoffeinträge auf Produktivität und Stabilität von Kiefern-Forstökosystemen. *Beiträge Forstwirtschaft* 24, 59-73.
- Kenk G, Fischer H (1988) Evidence from Nitrogen Fertilization in the Forests of Germany. *Environ Pollut* 54, 199-218.
- Krupa SV (2003) Effects of atmospheric ammonia ( $\text{NH}_3$ ) on terrestrial vegetation: a review. *Environ Pollut* 124, 179-221.
- Kölling Ch (2001) Stickstoffsättigung von Waldökosystemen. *Allg Forst Jagd Z* 10, 513-517.

- Lamersdorf N, Bartsch N, Blanck K, Bredemeier M, Deutschmann G, Dohrenbusch A, Ibrom A, Ludwig B, Meesenburg H, Schnitzler K-G (1998) Ergebnisse langjähriger Stoffflussuntersuchungen im Solling: Wissensstand, aktuelle Ergebnisse, offene Fragen und Forschungsbedarf. *EcoSys* 7, 27-41.
- Lovett GM, Lindberg SE (1993) Atmospheric deposition and canopy interactions of nitrogen in forests. *Can J Forest Res* 23, 1603-1616.
- Meesenburg H, Dammann I, Evers J, Schulze A, Rademacher P, Mindrup M, König N, Fortmann H, Eberl C, Meiwes KJ (2002) Forstliches Umweltmonitoring als Entscheidungshilfe für die Forstwirtschaft und Umweltpolitik. *Forst Holz* 57, 707-712.
- Meesenburg H, Meiwes KJ, Rademacher P (1995) Long-term trends in atmospheric deposition and seepage output in northwest German forest ecosystems. *Water Air Soil Pollut* 85, 611-616.
- Meesenburg H, Meiwes KJ, Schulze A, Rademacher P (1997) Bodendauerbeobachtungsflächen auf forstlich genutzten Flächen (BDF-F). In: Kleefisch B, Kues J (Hrsg.) *Das Bodendauerbeobachtungsprogramm von Niedersachsen: Methodik und Ergebnisse*, Arb H Böden 2/1997, 77-95.
- Meiwes KJ, Meesenburg H, Rademacher P 1999 Wirkung von Stickstoff auf Waldökosysteme. *Mitt. NNA* 10, 118-121.
- Mohr H (1994) Stickstoffeintrag als Ursache neuer Waldschäden. *Spektrum Wissenschaft* 1994/1, 48-53.
- Mohr K (2001) Stickstoffimmissionen in Nordwestdeutschland - Untersuchungen zu den ökologischen Auswirkungen auf Kiefernforsten und Möglichkeiten der Bioindikation. Dissertation Universität Oldenburg. <http://www.bis.uni.oldenburg.de>, 182 S.
- Nagel H D, Gregor, H D (1999) Ökologische Belastungsgrenzen Critical Loads & Levels: Ein internationales Konzept für die Luftreinhaltepolitik. Berlin, Springer, 259 S.
- Neuwirth G (1971) Bestandesstruktur, Stoffproduktion und Stoffbilanz eines 35jährigen Kiefernbestandes. *Archiv für Naturschutz- und Landschaftsforschung* 12, 100-120.
- Nihlgard B (1985) The ammonia hypothesis: an additional explanation to the forest decline in Europe. *Ambio* 14: 2-8.
- Norm VDI 2450, Bl. 1 (1977) Messen von Emission, Transmission und Immission luftverunreinigender Stoffe. Begriffe, Definitionen, Erläuterungen. Beuth, Berlin, 4 S.
- Orloff W, Schlaepfer R (1996) Stickstoff und Waldschäden: eine Literaturübersicht. *Allg Forst Jagd Z* 167, 184-201.
- Oura N, Shindo J, Fumoto T, Toda H, Kawashima H (2001) Effects of nitrogen deposition on nitrous oxide emissions from the forest floor. *Water Air Soil Pollut* 130, 673-678.
- Pérez-Soba M, Stulen I, van der Eerden LJM (1994) Effect of atmospehric ammonia on the nitrogen metabolism of Scots pine (*Pinus sylvestris*) needles. *Physiologia Plantarum* 90, 629-636.
- Pérez-Soba M, van der Eerden LJM (1993) Nitrogen uptake in needles of Scots pine (*Pinus sylvestris* L.) when exposed to gaseous ammonia and ammonium fertilizer in the soil. *Plant Soil* 153, 231-242.
- Rennenberg H, Gessler A (1999) Consequences of N deposition to forest ecosystems – recent results and future research needs. *Water Air Soil Pollut* 116, 47-64.
- Ringe H, Duijnesveld W H M, Böttcher J (2001) Stoffeinträge mit den Bestandesniederschlag in einem Kiefernreinbestand und einen Kiefern/Buchenmischbestand als Funktion der Bestandesstruktur. *Mitt Dt Bodenkundl Ges* 96, 649-650.
- Rothe A, Huber C, Kreutzer K, Weis W (2002) Deposition and soil leaching in stands of Norway spruce and European beech. Results from the Höglwald research in comparison with other European case studies. *Plant Soil* 240, 1-14.
- Schmieden U (1997) Forstpflanzenphysiologie. In: UBA (Hrsg.) *Auswertung der Waldschadensforschungsergebnisse (1982-1992) zur Aufklärung komplexer Ursache-Wirkungsbeziehungen mit Hilfe systemanalytischer Methoden*. UBA-Berichte 6/97. Berlin. S. 18-146.
- Skeffington RA, Wilson EJ (1988) Excess Nitrogen Deposition: Issues for Consideration. *Environ Pollut* 54, 159-184.
- Skiba U, Sheppard L, Pitcairn CER, Leith I, Crossley A, van Dijk S, Kennedy VH, Fowler D (1998) Soil nitrous oxide and nitric oxide emissions as indicators of elevated N deposition rates in seminatural ecosystems. *Environ Pollut* 102, 457-461.
- Ulrich B (1991) Folgerungen aus 10 Jahren Waldökosystem- und Waldschadensforschung. *Forst Holz* 46, 575-588.
- Ulrich B (1994) Nutrient and acid/base budget of central European forest ecosystems. In: Hüttermann A, Godbold DL (Hrsg.) *Effects of acid rain on forest processes*. New York, Wiley, S. 1-50.
- Umweltbundesamt (2004) Nationaler Inventarbericht 2004, Berichterstattung unter der Klimarahmenkonvention der Vereinten Nationen. Berlin, Umweltbundesamt. <http://www.umweltbundesamt.org/fpdf/1/2797.pdf>.
- Wallenda T, Kottke I (1998) Nitrogen deposition and ectomycorrhizas. *New Phytol* 139, 169-187.

## 2 Die Bestimmung von Flüssen reaktiver Stickstoff-Spezies in hoch mit Stickstoff belasteten Wald-Ökosystemen – methodische Grundlagen, Randbedingungen und Konzept der Messungen und Modellierungen im ANSWER-Projekt

U. Dämmgen<sup>1</sup>, K. Mohr<sup>2</sup>, H. Meesenburg<sup>3</sup>

### 2.1 Ermittlung von wirksamen Flüssen reaktiver Stickstoff-Spezies in ein Kiefernwald-Ökotop

Wälder stehen einerseits als halboffene Ökosysteme in enger stofflicher und energetischer Beziehung zur Umwelt, andererseits verfügen sie auf verschiedenen funktionalen und räumlichen Ebenen über diverse interne Stoffkreisläufe und -depots. Diese Eigenschaft vermittelt ihnen ein relativ stabiles ökologisches Gefüge gegenüber äußeren Einflüssen. Veränderungen des Stoffhaushaltes, insbesondere der Flüsse der gleichzeitig als Makronährstoffe fungierenden reduzierten und oxidierten Stickstoff-Spezies ( $\text{NH}_x$  und  $\text{NO}_y$ ), lassen sich dadurch jedoch nur mit großen Unsicherheiten nachweisen.

Die Übertragbarkeit der Ergebnisse von Stofffluss-Bestimmungen, die an anderen Wald-Ökotopen in Europa gewonnen wurden, auf die Weser-Ems Region ist – wenn überhaupt – nur eingeschränkt möglich, da sowohl die aktuelle Emissionssituation (vgl. Döhler et al. 2002) als auch die Belastungsgeschichte dieser Standorte eine Sonderrolle erwarten lassen. Die an weniger belasteten Standorten gewonnenen Bilanzmodelle weisen fast ausschließlich gerichtete Flüsse reaktiver Spezies aus der Atmosphäre in den Bestand auf. Die Bilanzen von Kiefern-Ökosystemen mit höheren Stickstoff-(N)-Belastungen legen jedoch nahe, dass auch die gasförmigen N-Verluste eine erhebliche Bedeutung haben können (Butterbach-Bahl et al. 2002).

### 2.2 Bestimmung vertikaler Flüsse zwischen der Atmosphäre und einem Kiefern-Ökosystem – Konzepte, Modelle und Messungen

#### 2.2.1 Dosis-Wirkung-Beziehungen

Der Einfluss von Umweltfaktoren auf Ökosysteme wird über entsprechende Dosis-Wirkung-Beziehungen beschrieben. Diese setzen eigentlich voraus,

dass sowohl die wirksame Dosis eines Stressors (z.B. eines Schadstoffes) als auch die Wirkung quantifizierbar sind.

„Klassische“ Dosis-Wirkung-Modelle wie das Agonist-Rezeptor-Modell der Toxikologie (z.B. Kurz et al. 1987) beschreiben Wirkungen als Funktion der Konzentration des Wirkstoffes (Agonisten) am Wirkort (Rezeptor). Diese Modelle lassen sich im mikroskopischen Bereich anwenden; sie versagen aber bei Anwendung auf Individuen oder Ökosysteme höherer Organisationsformen: Konzentrationen in der Umgebung dieser Systeme sind keine angemessenen Dosisgrößen, da sie als Reaktion komplexe Einzelwirkungen hervorrufen, die in wechselseitiger Beziehung zueinander stehen. In solchen Fällen ist es notwendig und zweckmäßig, die Dosis über eine solche Größe zu bestimmen, die eindeutig mit der Konzentration des Agonisten am Wirkungsort zusammenhängt. Als einzige *Messgröße* hierfür kann der Fluss des Agonisten bzw. seiner Vorläufer-Spezies in das System dienen. Dieser Fluss ist eine potenziell absorbierte Dosis. Für reaktive Stickstoff- und Schwefel-Spezies (N- und S-Spezies) ist im Hinblick auf die Eutrophierung bzw. Versauerung des Systems die potenziell absorbierte Dosis gleich der absorbierten Dosis, da by-pass-Flüsse und Detoxifikations-Reaktionen nicht auftreten (Dämmgen et al. 1993, 1997, Dämmgen und Grünhage 1998).

Bei der Untersuchung der Wirkung von Luftinhaltsstoffen auf ausgedehnte Ökosysteme insgesamt stellt die vertikale Flussdichte eines Luftinhaltsstoffes die absorbierte Dosis dar. Diese vertikalen Flussdichten sind im Regelfall nicht proportional den Konzentrationen, sondern hängen von der Austauschfähigkeit der Atmosphäre und den Senkeneigenschaften des Systems (physikalische, chemische und biologische Senkeneigenschaften) ab.

Auch die Wirkung äußert sich in veränderten Stoffflüssen. Denkbar ist, dass die Wirkung etwa erhöhter N-Flüsse zur Folge hat, dass einzelne Kompartimente gegenüber dem Normalfall mit

<sup>1</sup> Bundesforschungsanstalt für Landwirtschaft, Institut für Agrarökologie, Bundesallee 50, 38116 Braunschweig, [ulrich.daemgen@fal.de](mailto:ulrich.daemgen@fal.de)

<sup>2</sup> Landwirtschaftskammer Weser-Ems, Mars-la-Tor-Str. 9-13, 26121 Oldenburg

<sup>3</sup> Niedersächsische Forstliche Versuchsanstalt, Grätzelstr. 2, 37079 Göttingen

erhöhten Stoffumsätzen und erhöhten Austrägen reagieren. So scheinen erhöhte Kohlenstoffdioxid-Konzentrationen über Ackerflächen die Umsatzraten für Kohlenstoffhaltige Spezies im Boden zu erhöhen, ohne dass sich signifikante Änderungen der Vorratsgrößen ergeben. Ähnliches lässt sich auch aus den N-Bilanzgliedern von N-reichen Wäldern ableiten: Papen et al. (1999) beobachteten an belasteten Standorten in der Schorfheide, dass das Teilsystem „durchwurzelter Boden“ offenbar in der Lage ist, durch Erhöhung der N-Umsatzraten „überschüssiges“ N durch Emission N-haltiger Spurengase wirksam aus dem System zu entfernen. In diesem Falle wären Stoffflussmessungen etwa an  $\text{N}_2\text{O}$  ein geeignetes Mittel oder zumindest eine Hilfsgröße zur Quantifizierung von Wirkungen. In anderen Waldökosystemen sind dagegen signifikante N-Vorratsänderungen im Boden beobachtet worden, die ohne erhöhte N-Depositionen nicht zu erklären wären (Meiwes et al. 2002).

### 2.2.2 Stickstoff-Flüsse und –bilanzen in Wäldern

Die experimentelle Bestimmung der Komponenten des N-Haushalts von natürlichen und naturnahen Ökosystemen ist schwierig und ein bisher letztlich immer noch ungelöstes Problem (vgl. z.B. Tamm 1991, Marques et al. 2001). Aus Abbildung 2.1 geht hervor, dass die zwischen Bestand/Boden und Atmosphäre ausgetauschten N-Mengen wie auch die mit dem Sickerwasser ausgetragenen Stoffmengen in der Regel klein gegenüber den Vorräten sind. Entsprechendes gilt auch für S-Spezies. Deshalb besteht kaum eine Chance, Änderungen der Vorräte zur Beschreibung der Änderung der N- oder S-Dynamik in diesen Systemen heranzuziehen; die Messungen sind aufwendig und dennoch fehlerbehaftet (vgl. Gundersen et al. 1998).

Die potenziellen Dosen und Wirkungen quantifizierenden Flüsse müssen möglichst direkt bestimmt werden. Die Gesamtflüsse zwischen der Atmosphäre und dem Bestand lassen sich nur oberhalb des Bestandes als Nettoflüsse experimentell bestimmen (vgl. Dämmgen et al. 1997). Diese Messungen lassen sich nicht gleichzeitig für alle relevanten N-Spezies durchführen; sie müssen aus meteorologischen wie praktischen Gründen für sedimentierende und nichtsedimentierende Spezies getrennt bearbeitet werden. Während für die zuerst genannten Spezies Surrogatflächentechniken erfolgreich eingesetzt werden können, müssen die letzten im Prinzip mit Hilfe sog. mikrometeorologischer Verfahren über den betrachteten Rezeptorsystemen durchgeführt werden (Dämmgen et al. 2005, Erisman et al. 2005).

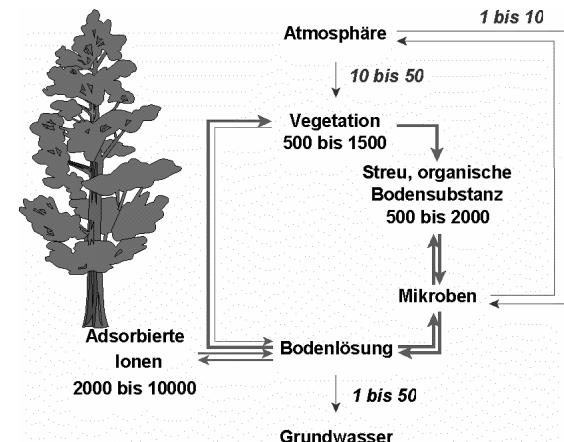


Abbildung 2-1:  
Größenordnungen von Stickstoff-Flüssen im Wald (steil: Vorräte in  $\text{kg ha}^{-1} \text{N}$ ; kursiv: Flüsse in  $\text{kg ha}^{-1} \text{a}^{-1} \text{N}$ ), nach Ovington (1962), Aber und Mellilo (1991) und van Miegroet et al. (1992), Marques et al. (2001) in Anlehnung an Zimmerling und Dämmgen (2000)

Hierzu müssen für nicht-sedimentierende Spezies (sog. trockene Deposition von Gasen und Schwebstäuben) mikrometeorologische Ansätze verfolgt werden. Derartige Messungen nutzen die turbulenten Eigenschaften der bodennahen Atmosphäre. Flussmessungen setzen daher zunächst die Erfassung der wesentlichen turbulenten Flüsse (Impuls- und Wärmeflüsse) voraus. Die Bestimmung von Stoffflüssen ist stets auch an die Bestimmung von Konzentrationen gebunden. Sind diese nicht mit einer zeitlichen Auflösung durchführbar, die dem Zehnfachen der typischen Wirbelfrequenz entspricht (vgl. Dämmgen et al. 1989), so müssen vertikale Konzentrationsgradienten mit vergleichsweise hoher zeitlicher Auflösung (Größenordnung: 1 h) bestimmt werden. Dies ist für alle betrachteten N- und S-Spezies der Fall.

Die Verwendung von Surrogatflächen zur Bestimmung der trockenen Deposition bleibt unbefriedigend, da die Rezeptoreigenschaften des untersuchten Systems zeitlichen Änderungen unterliegen, die von Surrogatsystemen nicht wiedergegeben werden können (vgl. Rodrigo und Ávila 2002 und dort zit. Lit.).

Derjenige Anteil solcher vertikalen Flüsse sedimentierender Partikel, der in den Bestand hineingereicht ist und *am Boden des Bestandes wirksam* wird, lässt sich dagegen mit guter Näherung als sog. Bestandesniederschlag durch Messungen mit Surrogatflächen verfolgen.

Mit Hilfe geeigneter Kammern lässt sich ein Teil derjenigen Gase bestimmen, die den Boden als Stoffwechselprodukte verlassen (Brumme et al. 1999, Butterbach-Bahl et al. 2002).

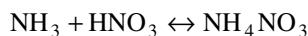
Wir gehen davon aus, dass im Wald in erster Näherung zwei durch eutrophierendes N beeinflusste Wirkräume existieren, für die Stoffflüsse

bestimmt werden müssen: der Kronenraum und der durchwurzelte Boden einschließlich der Krautschicht (Abbildung 2.1):

Deponiertes reaktives N wird in der Krone teilweise aufgenommen und metabolisiert (Blattdüngung). Dies erklärt die geringeren N-Flüsse über den Bestandesniederschlag gegenüber dem Freilandniederschlag in wenig belasteten Systemen (Hinweise aus der Bilanz z.B. Cape et al. 2001, aus einzelnen Flüssen z.B. Langford und Fehsenfeld 1992).

Nicht metabolisiertes Ammonium-(NH<sub>4</sub>)-N steht im Zellinneren mit gasförmigem NH<sub>3</sub> im Gleichgewicht (vgl. z.B. Schjøerring 1991). Es bildet sich stets ein NH<sub>3</sub>-Dampfdruck aus, der – je nach der NH<sub>3</sub>-Konzentration in der die Blätter umgebenden Atmosphäre – zur Emission von NH<sub>3</sub> führen kann. Dieser Prozess wurde bisher vor allem bei landwirtschaftlichen Nutzpflanzen beobachtet und beschrieben (vgl. Sutton et al. 1998 und dort zit. Lit.). Die NH<sub>3</sub>-Gleichgewichtskonzentration in den Stomata (sog. Kompensationspunkt, vgl. Conrad und Dentener 1999) wird dabei als Funktion des NH<sub>4</sub>-Gehaltes im Apoplasten und seines pH-Wertes angesehen (Mattson und Schjoerring 2003).

Die NH<sub>3</sub>-Konzentration in der Umgebung der Blätter wird von der NH<sub>3</sub>-Konzentration der Atmosphäre über dem Kronenraum (Umgebungsluft) beeinflusst, aber auch durch die Thermolyse von Ammoniumnitrat (NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>), die auf den äußeren Oberfläche der Krone – d.h. auf den Blättern – stattfindet: NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>, das mit Schwebstäuben auf den Blättern abgeschieden wurde oder das sich an den Oberflächen bei Überschreiten des „Löslichkeitsproduktes“ bei niedrigen Temperaturen und hohen Luftfeuchten aus gasförmigem NH<sub>3</sub> und Salpetersäure (HNO<sub>3</sub>) durch Kokondensation gemäß



bildet, gehorcht der Beziehung

$$\rho(\text{NH}_3) \cdot \rho(\text{HNO}_3) = K_p$$

mit  $\rho$  Partialdichte  
 $K_p$  Sättigungsprodukt

Dabei ist  $K_p$  eine Funktion der Temperatur, der relativen Luftfeuchte und des Partikeldurchmessers (Mozurkewich 1993). NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>, das sich so bei niedrigen Temperaturen und hohen Luftfeuchten gebildet hat, zersetzt sich unter Umkehrung der Gleichung bei höheren Temperaturen und geringeren Luftfeuchten.

Die feuchte Blattoberfläche wirkt als temporärer Speicher für NH<sub>3</sub>, der sich je nach der Verfügbar-

keit von Wasser und den herrschenden NH<sub>3</sub>-Konzentrationen in der Atmosphäre im Kronenbereich belädt oder entlädt.

Die für den Stoffaustausch maßgeblichen Konzentrationen von NH<sub>3</sub> in unmittelbarer Blattnähe sind also gleichzeitig von den Konzentrationen der „freien“ Atmosphäre über dem Kronenraum, den Quelle- und Senkeneigenschaften der Blätter, der Feuchte und der jeweiligen Gleichgewichtspartialdichte von NH<sub>3</sub> im Hinblick auf die Bildung oder Thermolyse von NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> abhängig.

Für die N-Gesamtbilanz von Wald-Ökosystemen sind ferner die Flüsse von Bedeutung, die als Austrag aus dem System zu verstehen sind. Dazu sind der Austrag mit dem Sickerwasser, der Austrag mit der Biomasse im Zuge von Erntemaßnahmen und der Austrag gasförmiger N-Spezies zu zählen. Von Bedeutung sind auch interne N-Flüsse, die u.a. mit Veränderungen der Bindungsform verbunden sind: die N-Aufnahme der Vegetation und die Mineralisation der N-haltigen organischen Substanz.

### 2.2.3 Relevante Spezies (Versauerung und Eutrophierung)

Alle mengenmäßig bedeutenden Flüsse von reaktiven N- und S-Spezies können zur Versauerung beitragen, die der N-Spezies auch zur Eutrophierung.

Die Wurzaufnahme und die mikrobielle Oxidation (Nitrifikation) von NH<sub>4</sub>-Stickstoff im Boden setzen Protonen frei (Binkley und Richter 1987):



Mit der Dissoziation von NH<sub>3</sub> zu NH<sub>4</sub><sup>+</sup> und der Nitrat-(NO<sub>3</sub>)<sup>-</sup>-Aufnahme über die Wurzel geht wiederum ein äquivalenter Protonen-Verbrauch einher. Ein Protonen-Überschuss entsteht deshalb erst, wenn es durch eine räumliche Trennung der Protonen-konsumierenden und -produzierenden Prozesse zu einer Entkoppelung des N-Kreislaufes (vgl. Ulrich et al. 1981) kommt. Er tritt z.B. dann ein, wenn die NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-Aufnahme über die Pflanzenwurzeln mit dem atmosphärischen N-Eintrag nicht Schritt hält.

Distickstoff (N<sub>2</sub>) wird mikrobiell fixiert und kann gleichzeitig Produkt der Denitrifikation sein. Der Austausch erfolgt ausschließlich zwischen Boden und Atmosphäre. N<sub>2</sub>O und NO sind Nebenprodukte der Nitrifikation und der Denitrifikation im Boden. Die Bestimmung von Flüssen dieser drei Gase ist nicht Gegenstand dieser Arbeit.

NH<sub>3</sub> wird sowohl über die inneren Oberflächen der Pflanzen (Stomata) als auch von äußeren Oberflächen (Cuticula, Bodenoberfläche etc.) aufge-

nommen, solange der Partialdruck über den betrachteten Senkenflächen niedriger ist als der Partialdruck in der freien Atmosphäre. Im umgekehrten Fall kommt es zu  $\text{NH}_3$ -Emission (aus den Stomata). Sowohl im Boden und in der Streu als auch in der Vegetation laufen Prozesse ab, bei denen  $\text{NH}_4$  gebildet und  $\text{NH}_3$  freigesetzt wird.

$\text{NO}_2$  wird fast ausschließlich durch Deposition über die Stomata von der Vegetation aufgenommen. Die geringe Reaktivität und Wasserlöslichkeit bedingen vergleichsweise niedrige Depositionen bei gegebenen Konzentrationen, d.h. niedrige Depositionsgeschwindigkeiten.

$\text{HNO}_2$  ist hinsichtlich seiner Reaktivität mit  $\text{SO}_2$  vergleichbar. Wie dieses wird es an den inneren und äußeren Oberflächen der Ökosysteme abgelagert.  $\text{HNO}_2$  hat einen merklichen Dampfdruck; es kann aus Lösungen emittiert werden.

$\text{HNO}_3$  ist ein sehr reaktives Gas und wird fast ausschließlich durch Reaktion mit äußeren Oberflächen in Ökosysteme eingetragen.

$\text{NH}_4^+$  und  $\text{NO}_3^-$  in Partikeln werden ausschließlich auf Oberflächen abgeschieden. Der Mechanismus der Abscheidung ist eine Funktion der Partikelgröße.  $\text{NH}_4\text{NO}_3$  ist thermisch labil. Deponiertes  $\text{NH}_4\text{NO}_3$  kann durch Thermolyse eine Quelle von  $\text{NH}_3$  und  $\text{HNO}_3$  werden.

Die Konzentrationen von  $\text{NO}_2^-$ -N in der Bulk-Deposition bewegt sich bei 2 bis 4 % der  $\text{NO}_3^-$ -Konzentrationen und damit in deren Fehlerbereich (eigene Messungen). Es wird daher in der Regel vernachlässigt.

Organische reduzierte und oxidierte Spezies treten in der Umgebungsluft in Konzentrationen auf, die keine bilanzrelevanten Flüsse erwarten lassen: Messungen ergaben, dass organische Nitrate Konzentrationen  $\rho < 10 \text{ ng m}^{-3}$  aufweisen (Nielsen et al. 1995, Kastler et al. 1998, Flocke et al. 1998). Entsprechendes gilt für Alkylamine und Aminosäuren (Mopper und Zika, 1987, Schade und Crutzen 1995).

Die N-Flüsse zwischen Atmosphäre und Bestand sowie die innerhalb einzelner Ökosystemkompartimente müssen daher für nahezu jede relevante Spezies einzeln quantifiziert werden. Im Hinblick auf die hier gestellten Fragen sind folgende Teilflüsse zu berücksichtigen:

#### Flüsse mit Gasen

Distickstoff ( $\text{N}_2$ ): Deposition und Emission  
 Ammoniak ( $\text{NH}_3$ ): Deposition und Emission  
 organischer reduzierter Stickstoff ( $\text{R-NH}_x$ ): Deposition  
 Distickstoffoxid ( $\text{N}_2\text{O}$ ): Emission

#### Stickstoffmonooxid ( $\text{NO}$ ):

Deposition und Emission

#### Stickstoffdioxid ( $\text{NO}_2$ ): Deposition

salpetrige Säure ( $\text{HNO}_2$ ):

Deposition und Emission

#### Salpetersäure ( $\text{HNO}_3$ ): Deposition

organischer oxiderter Stickstoff ( $\text{R-NO}_x$ ): Deposition

#### Flüsse mit nichtsedimentierenden und sedimentierenden Partikeln

Ammonium ( $\text{NH}_4^+$ ): Deposition  
 organischer reduzierter

Stickstoff: Deposition

Nitrat ( $\text{NO}_3^-$ ): Deposition

organischer oxiderter Stickstoff: Deposition

Mengenmäßig bedeutende Flüsse von S-Spezies sind

#### Flüsse mit Gasen

Schwefeldioxid ( $\text{SO}_2$ ): Deposition

#### Flüsse mit nichtsedimentierenden und sedimentierenden Partikeln

Sulfat ( $\text{SO}_4^{2-}$ ): Deposition

Schwefelsäure ( $\text{H}_2\text{SO}_4$ ):

Deposition

Dabei wird  $\text{SO}_2$  an allen inneren und äußeren Oberflächen des Systems adsorbiert bzw. von den Oberflächenfilmen absorbiert, solange der pH-Wert des Oberflächenfilms bzw. der Dampfdruck der dort entstehenden Lösung geringer ist als der Partialdruck in der Atmosphäre.

$\text{SO}_4^{2-}$  in Salzen oder in  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Aerosolen wird ausschließlich auf den äußeren Oberflächen des Systems abgeschieden. Wie bei  $\text{NH}_4^+$  und  $\text{NO}_3^-$  ist der Mechanismus wesentlich von der Größe der Partikel abhängig.

### 2.3 Randbedingungen der Messungen

Das Konzept der Untersuchungen innerhalb des ANSWER-Projekts (Atmospheric Nitrogen Deposition in the Weser-Ems Region) hatte folgenden Umständen Rechnung zu tragen:

- Eingriffe in den Level II-Bestand (Augustendorf) sollten nur im geringstmöglichen Maße stattfinden. Insbesondere sollten die für die Dauerbeobachtung gekennzeichneten Bäume weder entfernt noch geschädigt werden. Dies umfasste auch deren Wasserhaushalt und damit störende Eingriffe in den Boden.

- Die Gesamtkosten sollten niedrig gehalten werden.

Damit schied die Beschaffung und der Aufbau eines für Gradientenmessungen geeigneten hinreichend hohen, begehbarer und nicht abgespannten Turmes aus. Zur Bestimmung der die Deposition bestimmenden turbulenten atmosphärischen Austauschgrößen reichte ein einfacherer Turm aus.

Als weitere Randbedingungen mussten berücksichtigt werden:

- Für die für Flüsse relevanten N-Spezies lassen sich Konzentrationen mit hoher zeitlicher Auflösung nicht bestimmen. Die Turbulenzmessungen mussten daher ohnehin mit zeitlichen Mitteln der Konzentrationen verknüpft werden.
- $\text{HNO}_2$  und  $\text{HNO}_3$  bilden typische Tagesgänge der Konzentrationen aus. Messungen von Tages- und Nachtkonzentrationen erschienen deshalb notwendig.
- Konzentrationen *über* einem Wald sollten im Mittel nicht kleinräumig variieren. Die Messungen von Konzentrationen und Austauschparametern sollten daher in gewissem Umfang räumlich voneinander trennbar sein.
- Die Durchführung einer zeitlich dichten Beprobung zur nasschemischen Analyse der Luftinhaltsstoffe war wegen der Entfernung zwischen Probennahmeort und Labor (300 km) nahezu unmöglich.

Damit war nur eine Kombination von turbulenten Messungen über dem Level II-Bestand und Konzentrationsmessungen in *nur einer* Messhöhe in der Nähe des Bestandes denkbar.

Die Ergebnisse der Messungen und Modellierungen müssen den dabei auftretenden Unsicherheiten und Fehlern in besonderer Weise Rechnung tragen.

Messungen der Bestandesdeposition sowie orientierende Konzentrationsmessungen an den Standorten Holdorf, Herrenholz und Sandkrug dienten der Extrapolation der in Augustendorf erhaltenen Beziehungen auf eine größere Region im Raum Weser-Ems.

## 2.4 Einfluss der Bestandesstruktur

Der Einfluss von bestandesstrukturellen Eigenschaften von Waldbeständen auf Prozesse der atmogenen Deposition ist nicht hinreichend geklärt. Dies ist jedoch eine Voraussetzung für eine Schätzung der Höhe der N-Einträge und ihre Beeinflussung durch forstliche Maßnahmen. Verschiedene Untersuchungen haben gezeigt, dass immergrüne Nadelbaumbestände im Vergleich zu sommergrünen Laubbaumbeständen höhere Depositionsraten,

Altbestände höhere als Jungbestände oder exponierte Kammlagen höhere als geschützte Tallagen erwarten lassen (Meesenburg et al. 1995, Rothe et al. 2002). Bestandesspezifische Parameter, die die Höhe der atmogenen Einträge möglicherweise beeinflussen, sind die Baumart, die Bestandeshöhe, die Bestandesdichte, die Rauigkeit und die Ernährungssituation der Bestände. Weiterhin dürften die atmosphärischen Bedingungen und die Struktur der Umgebung von Beständen eine wichtige Rolle spielen. Ziel der Arbeit war es daher, bestandessstrukturelle Parameter hinsichtlich ihrer Effekte auf die N-Deposition in Wäldern zu bewerten. Dazu sollten atmogene Stoffeinträge in Waldbestände unterschiedlicher Struktur in einem eng begrenzten Raum unter möglichst homogenen atmosphärischen Randbedingungen erfasst werden. Es wurden 13 Bestände unterschiedlicher Strukturphasen der Baumarten Kiefer, Fichte, Douglasie und Eiche ausgewählt. Fichte und Douglasie wurden zu einer Baumartengruppe zusammengefasst, da die morphologische Struktur dieser Baumarten sehr ähnlich ist. Innerhalb einer Baumartengruppe wurden jeweils Bestände ausgewählt, die ein möglichst weites Spektrum an Struktureigenschaften (z.B. Alter, Bestandeshöhe, Grundfläche) erfassen. Geeignete Kiefern- und Fichten-/Douglasienbestände wurden im Revier Augustendorf, die Eichenbestände in einem etwa 35 km entfernten Revier (Herrenholz, s.u.) des Niedersächsischen Forstamtes Ahlhorn gefunden.

Die Bestimmung der Stoffeinträge beschränkte sich auf die klassische Methode der Bestandesniederschlagsmessung. Mit Hilfe von Kronenraumbilanzmodellen können aus den Ergebnissen von Bestandesniederschlagsmessungen und Freilandmessungen Teilflüsse der trockenen Deposition geschätzt werden (Ulrich 1994, Draaijers und Erisman 1995). Es wird dabei eine akzeptorunabhängige nasse Deposition, die der Freilanddeposition entspricht, und eine akzeptorabhängige trockene Deposition, die sich wiederum in eine partikuläre und eine gasförmige Komponente differenzieren lässt, unterschieden. Darüber hinaus können für die N-Spezies, Protonen und mineralische Nährstoffe Austauschraten mit dem Kronenraum geschätzt werden.

Das Kronenraumbilanzmodell nach Ulrich (1994) (Ulrich-Modell) stellt in jedem Fall eine Unterschätzung der Gesamtdeposition der N-Komponenten dar, da gasförmige Deposition und Aufnahme in den Bestand zusammen als Netto-Fluss berechnet werden. Beide Prozesse können gleichzeitig wirksam sein, gehen aber mit unterschiedlichem Vorzeichen in die Bilanzierung der Gesamtdeposition ein. Im Draaijers-Modell (Draaijers und Erisman 1995) wird die Aufnahme von  $\text{NH}_4^+$  und  $\text{H}^+$  in den Bestand als Kationen-

Austausch gegen Nährstoff-Kationen beschrieben. Die Verteilung der Aufnahme zwischen  $\text{NH}_4^+$  und  $\text{H}^+$  wird mit einem empirisch ermittelten Faktor berechnet. Da dieser Faktor (Draaijers-Faktor) bisher nur an einem Bestand in den Niederlanden ermittelt wurde, war es ebenfalls Ziel dieser Studie, die Gültigkeit für verschiedene bestandesstrukturelle Einheiten zu untersuchen.

Die Ermittlung des Einflusses bestandesstruktureller Eigenschaften auf den Depositionsprozess dient letztlich der Identifikation einfacher Indikatoren zur Übertragung von Punktinformationen auf die Fläche. Es sollen Transferfunktionen ermittelt werden, die es erlauben, mit flächenhaft vorliegenden Informationen Messungen in einzelnen Waldbeständen auf ungemessene Flächen zu übertragen. Als charakteristische Flächengrößen werden die Bewirtschaftungseinheiten für forstliche Maßnahmen (Abteilungen, Unterabteilungen) gewählt. Wenn geeignete Transferfunktionen ermittelt werden, wäre es so möglich, die Deposition durch forstliche Maßnahmen zu steuern, bzw. den Einfluss von Veränderungen der Bestandesstruktur auf Depositionsraten zu prognostizieren.

## 2.5 Literatur

- Binkley D, Richter D (1987) Nutrient Cycles and  $\text{H}^+$  Budgets of Forest Ecosystems. *Adv Ecological Res* 16, 1-51.
- Brumme R., Borken W, Finke S (1999) Hierarchical control of nitrous oxide emission in forest ecosystems. *Global Biogeochem Cycles* 13, 1137-1148.
- Butterbach-Bahl K, Breuer L, Gasche R, Willibald G, Papen H (2002) Exchange of trace gases between soils and the atmosphere in Scots pine forest ecosystems of the northeastern German lowlands. 1. Fluxes of  $\text{N}_2\text{O}$ ,  $\text{NO/NO}_2$  and  $\text{CH}_4$  from forest sites with different N-deposition. *Forest Ecol Managem* 167, 123-134.
- Cape JN, Dunster A, Crossley A, Sheppard LJ, Harvey FJ (2001) Through-fall chemistry in a sitka spruce plantation in response to six different simulated polluted mist treatments. *Water Air Soil Pollut* 130, 619-624.
- Conrad R, Dentener, FJ (1999) The application of compensation point concepts in scaling of fluxes. In: Bouwman AF (Hrsg.): *Approaches to scaling trace gas fluxes in ecosystems*. Amsterdam, Elsevier. S. 205-216.
- Dämmgen U, Erisman JW, Cape JN, Grünhage L, Fowler D (2005) Practical considerations for addressing uncertainties in monitoring bulk deposition. *Environ Pollut* 134, 535-548.
- Dämmgen U, Grünhage L, Jäger H-J (1997) Description, assessment and meaning of vertical flux densities of matter within ecotopes: A systematic consideration. *Environ Pollut* 96, 249-260.
- Dämmgen U, Grünhage L (1998) Response of a grassland ecosystem to air pollutants. V. A toxicological model for the assessment of dose-response relationships for air pollutants and ecosystems. *Environ Pollut* 101, 375-380.
- Dämmgen U, Grünhage L, Haenel H-D, Jäger H-J (1993) Climate and stress in ecotoxicology – a coherent system of definitions and terms. *Environ Pollut* 96, 249-260.
- Dämmgen U, Grünhage L, Hartwig-Hanitz B, Jäger H-J (1989) Auswirkungen luftgetragener Stoffe auf Vegetation und Boden von Grünlandökosystemen. III. Die Ermittlung der vertikaler Flüsse von Gasen und Schwebstäuben in Agrarökosysteme mit Hilfe von Gradientenmodellen. *Landbauforsch Völkenrode* 39, 202-216.
- Döhler H, Eurich-Menden B, Dämmgen U, Lüttich M, Osterburg B (2002) BMVEL/UBA-Ammoniak-Emissionsinventar der deutschen Landwirtschaft und Minderungsszenarien bis zum Jahr 2010. UBA-Texte 05/02. Umweltbundesamt, Berlin.
- Draaijers GPJ, Erisman JW (1995) A canopy budget model to assess atmospheric deposition from through-fall measurements. *Water Air Soil Pollut* 85, 2253-2258.
- Erisman JW, Vermeulen A, Hensen A, Flechard C, Dämmgen U, Fowler D, Sutton M, Grünhage L, Tuovinen J-P (2005) Monitoring and modelling of biosphere/atmosphere exchange of gases and aerosols. *Environ Pollut* 133, 403-413.
- Flocke F, Volz-Thomas A, Buers H-J, Pätz W, Garthe H-J, Kley D (1998) Long-term measurements of alkyl nitrates in southern Germany. I. General behavior and seasonal and diurnal variation. *J Geophys Res* 103, 5729-5746.
- Gundersen P, Emmett BA, Kjønaas OJ, Koopmans CJ, Tietema A (1998) Impact of nitrogen deposition on nitrogen cycling in forests: a synthesis of NITREX data. *Forest Ecol Managem* 101, 37-55.
- Kastler J, Fischer RG, Ballschmiter K (1997) Organonitrate als atmosphärische Spurenstoffe. *Nachr Chem Tech Lab* 45, 979-984.
- Kurz H, Neumann H-G, Wollenberg P, Forth W, Henschler D, Rummel W (1987) Allgemeine Pharmakologie. In: Forth W, Henschler D, Rummel W (Hrsg.) *Allgemeine und spezielle Pharmakologie und Toxikologie*. Mannheim, BI Wissenschaftsverlag. S. 1-97.
- Langford AO, Fehsenfeld FC (1992) Natural Vegetation as a Source or Sink for Atmospheric Ammonia: A Case Study. *Science* 255, 581-583.
- Marques MC, Gravenhorst G, Ibrom A (2001) Input of atmospheric particles into forest stands by dry deposition. *Water Air Soil Pollut* 130, 571-576.
- Mattson M, Schjoerring K (2003): Senescence-induced changes in apoplastic and bulk tissue ammonia concentrations of ryegrass. *New Phytol* 160, 489-499.
- Meesenburg H, Meiweis KJ, Rademacher P (1995) Long-term trends in atmospheric deposition and seepage output in northwest German forest ecosystems. *Water Air Soil Pollut* 85, 611-616.
- Mopper K, Zika RG (1987) Free amino acids in marine rain: evidence for oxidation and potential role in nitrogen cycling. *Nature* 325, 246-249.
- Mozurkewich M (1993) The dissociation constant of ammonium nitrate and its dependence on temperature, relative humidity and particle size. *Atmos Environ* 27A, 261-270.

- Nielsen Z, Egeløv AH, Granby K, Skov H (1995) Observations on particulate organic nitrates and unidentified components of  $\text{NO}_y$ . *Atmos Environ* 29, 1757-1769.
- Ovington JD (1962) Quantitative Ecology and the Woodland Ecosystem Concept. In: Cragg JB (Hrsg.) *Adv Ecol Res* 1, 103-192.
- Papen H, Butterbach-Bahl K, Gasche R, Breuer I, Zumbusch E, Willibald G, Böß A (1999) Vergleichende Untersuchungen zur Emission von  $\text{N}_2\text{O}$ ,  $\text{NO}$  und  $\text{NO}_2$  aus zwei unterschiedlich N-belasteten Kiefernwald-Ökosystemen des Nordostdeutschen Tieflandes. Abschlußbericht für das Bundesministerium für Bildung, Wissenschaft, Forschung und Technologie (BMBF). Förderkennzeichen 0339628. Garmisch-Partenkirchen, Fraunhofer-Institut für Atmosphärische Umweltforschung. 90 S.
- Rodrigo A, Ávila A (2002) Dry deposition to the forest canopy and surrogate surfaces in two Mediterranean holm oak forests in Montseny (NE Spain). *Water Air Soil Pollut* 136, 269-288.
- Rothe A, Huber C, Kreutzer K, Weis W (2002) Deposition and soil leaching in stands of Norway spruce and European beech. Results from the Höglwald research in comparison with other European case studies. *Plant Soil* 240, 1-14.
- Schade GW, Crutzen PJ (1995) Emission of aliphatic amines from animal husbandry and their reactions: Potential source of  $\text{N}_2\text{O}$  and HCN. *J Atmos Chem* 22, 319-346.
- Schjøerring JK (1991) Ammonia Emission from the Foliage of Plants. In: Sharkey TD, Holland EA, Mooney HA (Hrsg.) *Trace Gas Emissions by Plants*. San Diego, Academic Press. S. 267-292.
- Sutton MA, Burkhardt JK, Guerin D, Nemitz E, Fowler D (1998) Development of resistance models to describe measurements of bi-directional ammonia surface-atmosphere exchange. *Atmos Environ* 32, 473-480.
- Tamm CO (1991) Nitrogen in terrestrial ecosystems. *Ecol Studies* 81, 1-115.
- Ulrich B (1994) Nutrient and acid/base budget of central European forest ecosystems. In: Hüttermann A, Godbold DL (Hrsg.) *Effects of acid rain on forest processes*. New York, Wiley, S. 1-50.
- Ulrich B, Mayer R, Khanna P K (1981) Deposition von Luftverunreinigungen und ihre Auswirkungen in Waldökosystemen im Solling. *Schr Forstl Fak Univ Göttingen und der Nieders Forstl Versuchsanstalt* 58, 1-291.



### 3 Die Untersuchungsstandorte im ANSWER-Projekt

H. Meesenburg<sup>1</sup>, K. Mohr<sup>2</sup>

#### 3.1 Das Untersuchungsgebiet

##### 3.1.1 Lage des Untersuchungsgebiets und der Untersuchungsstandorte - Übersicht

Die 4 Untersuchungsstandorte des Weser-Ems-N-Depositions-Projekts ANSWER (Atmospheric Nitrogen Deposition in the Weser-Ems Region) liegen in der nordwestdeutschen Tiefebene, den niedersächsischen Landkreisen Cloppenburg (Augustendorf), Oldenburg (Sandkrug) und Vechta (Herrenholz, Holdorf) (Abbildung 3.1). Sie befinden sich im Zentrum des Weser-Ems Gebietes; ihre Entfernung voneinander beträgt höchstens jeweils 60 km.



Abbildung 3.1:  
Lage der Messstandorte im Wald (Rechtecke) sowie die der Immissionsmessstelle des Niedersächsischen Landesamtes für Ökologie (Bösel, Kreis)

Es handelt sich um eine flache, mit einem Waldanteil von ca. 10 % waldarme Landschaft zwischen den Flüssen Weser und Ems, die sich im Laufe der letzten Jahrzehnte zu einer landwirtschaftlich intensiv genutzten Region entwickelt hat. Nach Döhler et al. (2002) weist sie eine der bundesweit höchsten Nutztierdichten mit entsprechend hohen NH<sub>3</sub>-Emissionen auf.

##### 3.1.2 Das Klima im Untersuchungsgebiet

Das Untersuchungsgebiet liegt am Ostrand der atlantischen Klimaregion, die sich durch niederschlagsreichere Sommer und milde Winter auszeichnet. Die klimatischen Unterschiede der 4 Untersuchungsstandorte halten sich trotz der von Norden nach Süden zunehmenden Distanz zum Meer in engen Grenzen (Abbildung 3.2). Nach Mosimann et al. (1999) liegen sie im Bereich zwischen 8,0 und 8,5 °C. Im Januar beträgt das Monatsmittel zwischen 0,5 und 1 °C; im Juli steigen die Temperaturen auf durchschnittlich 16 bis 17 °C. Die durchschnittliche Höhe der Niederschläge liegt nach Angaben von Seedorf und Mayer (1992) an allen Untersuchungsstandorten zwischen 700 und 750 mm a<sup>-1</sup>. Auf die davon zum Teil deutlich abweichenden Witterungsverhältnisse während des Untersuchungszeitraumes wird in Schaaf et al. (2005) eingegangen.

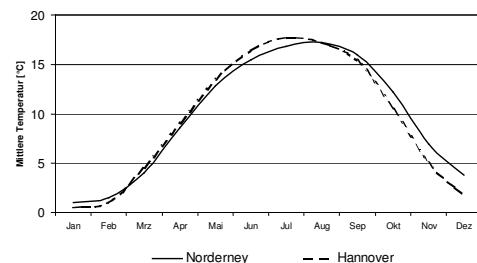


Abbildung 3.2:  
Langjähriges Mittel der Lufttemperatur [°C] nördlich (Insel Norderney) und südlich (Hannover) des Untersuchungsgebietes (Messzeitraum 1961-1990 aus: Mosimann et al. 1999)

<sup>1</sup> Niedersächsische Forstliche Versuchsanstalt, Grätzelstr. 2, 37079 Göttingen, Henning.Meesenburg@nfv.gwdg.de

<sup>2</sup> Landwirtschaftskammer Weser-Ems, Mars-la-Tour-Str. 9-13, 26121 Oldenburg

### 3.1.3 Wälder und Böden im Untersuchungsgebiet

Die Wälder dieser Region stocken in der Regel auf landwirtschaftlich oft ungünstigen, nährstoffarmen Böden. Geologisches Ausgangsmaterial sind pleistozäne oder nacheiszeitliche Sande und Lehme, die auf den grundwasserfernen Standorten in der Vergangenheit eine meist längere Heidenutzung erfahren haben und daher mehr oder minder podsoliert sind. Reichere Böden beschränken sich auf Moränenlagen, vereinzelte Senkenlagen mit Kontakt zu basenreicherem Grundwasser oder, wie am Untersuchungsstandort Herrenholz auf das Sandlössgebiet der Wildeshauser Geest (Tabelle 3.1).

Aufgrund der relativ ungünstigen geologischen und nutzungsgeschichtlichen Ausgangssituation ist der Nadelwaldanteil im nordwestdeutschen Tiefland sehr hoch. Hauptbaumart ist mit 44 % des Anteils an der Waldfläche des niedersächsischen Tieflands die Kiefer; in der gesamten norddeutschen Tiefebene liegt der Kiefernanteil mit ca. 60% wesentlich höher.

Tabelle 3.1:  
Übersicht der Untersuchungsstandorte.  
Untersuchte Bestandtypen: KI – Kiefer, FD – Fichte/  
Douglasie, EI – Eiche.

Messort	Kürzel	Landkreis	Bestands- typ	Vorherr- schender Bodentyp
Augu- stendorf	AU	Clop- penburg	KI, FD	Eisen-Hu- muspodsol
Holdorf	H	Vechta	KI	Eisen-Hu- muspodsol
Herren- holz	HE	Vechta	EI	Pseudogley
Sand- krug	SA	Olden- burg	KI	Eisen-Podsol

## 3.2 Beschreibung der einzelnen Untersuchungsstandorte

### 3.2.1 Untersuchungsstandort Augustendorf

Der Untersuchungsstandort Augustendorf liegt im Landkreis Cloppenburg in unmittelbarer Nähe zur Thülsfelder Talsperre. Das Waldgebiet im Bereich der Thülsfelder Talsperre ist das größte zusammenhängende Waldgebiet im Landkreis in einer ansonsten landwirtschaftlich geprägten Region (Abbildung 3.3). Naturräumlich zählt das Gebiet zur Ems-Hunte-Geest. Die Untersuchungsbestände liegen auf 30 bis 50 m ü. NN. Die Substrate für die Bodenbildung werden von saalezeitlichen

Talsanden und Geschiebesanden bzw. -lehmern mit z.T. geringer Flugsandüberlagerung gebildet.

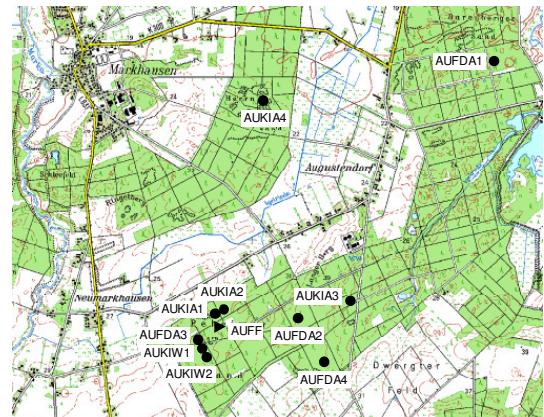


Abbildung 3.3:  
Untersuchungsstandort Augustendorf. Lage und Bezeichnung der Messstellen im Wald (Kreise) und im Freiland (Dreieck).

Die Böden sind schwach bis mäßig, z.T. auch ziemlich gut nährstoffversorgt (Tabelle 3.2). Der Wasserhaushalt ist bei unverlehmten Sanden meist sommertrocken, nur im tiefen Unterboden mäßig frisch. Bei höheren Lehmanteilen ist der Wasserhaushalt frischer einzustufen, z.T. tritt auch schwache Pseudovergleyung auf. Große Bereiche der Waldfläche wurden im Rahmen von Kompensationsmaßnahmen gegen atmogene Säure-Einträge gekalkt.

#### Kurzbeschreibung des Untersuchungsstandortes

Gauß-Krüger Koordinaten:	R <sup>34</sup> 23300 H <sup>58</sup> 64500
Höhe über NN:	30 m
Bestockungstypen:	überwiegend Kiefernreinbestände, z.T. mit Birkenbeimischung und Douglasienbestände
geol. Ausgangsmaterial:	Flugsand über glazifluvialen Sanden
Eigentümer:	Landesforst, NFA Ahlhorn

Auf den umliegenden landwirtschaftlich genutzten Flächen wird intensive landwirtschaftliche Produktion betrieben. Durch die Lage in einem Trinkwassereinzugsgebiet wurde jedoch in den letzten Jahren eine Extensivierung der landwirtschaftlichen Nutzung vorangetrieben. Auf größeren Flächen wurde auch die landwirtschaftliche Nutzung eingestellt und aufgeforstet.

Weitere Angaben zum Alter und zur Struktur der untersuchten Bestände am Standort Augustendorf sind in Tab. 3.2 aufgeführt.

### 3.2.2 Untersuchungsstandort Herrenholz

Der Untersuchungsstandort Herrenholz liegt im Landkreis Vechta (Abbildung 3.4). Naturräumlich gehört dieses Gebiet zur Ems-Hunte-Geest. Der Forstort Herrenholz ist zumindest in Teilen in geschichtlicher Zeit immer bewaldet gewesen (pers. Mitt. NFA Ahlhorn). Die Untersuchungsbestände liegen auf 40 bis 50 m ü. NN. Ausgangssubstrat der Bodenbildung ist Geschiebemergel mit Sandlößüberlagerung. Diese natürliche Zweischichtigkeit der Böden führt zu wechselfeuchten, staufeuchten Standortbedingungen. Der Oberboden ist durch hydromorphe Merkmale überprägt, der Wechsel zwischen Vernässung und Abtrocknung ist mäßig ausgeprägt, die Phasen sind etwa gleich lang. Die Nährstoffversorgung ist gut, die Basensättigung ist als ausreichend bis hoch einzustufen. Die Waldfläche wurde gekalkt.



Abbildung 3.4:  
Untersuchungsstandort Herrenholz. Lage und Bezeichnung der Messstellen im Wald (Kreise) und im Freiland (Dreieck).

#### Kurzbeschreibung des Untersuchungsstandortes

Gauß-Krüger Koordinaten:	R 3457600 H 5851200
Höhe über NN:	48 m
Bestockungstyp:	Eichenbestand mit Buchenbeimischung
Begründungsjahr:	1886
Stammzahl:	220 ha <sup>-1</sup>
BHD:	45,2 cm
mittlere Höhe:	28,3 m
Schlussgrad:	90 %
geol. Ausgangsmaterial:	Sandlöß über Geschiebemergel
Eigentümer:	Landesforst, NFA Ahlhorn

### 3.2.3 Untersuchungsstandort Holdorf

Der Untersuchungsstandort Holdorf im südoldenburgischen Landkreis Vechta liegt in der Dümmer-Geest-Niederung (zur Lage vgl. Abbildung 3.5). Der untersuchte Kiefernforst befindet sich hier auf einer flachen Geestinsel, die sich inmitten der Talsandniederung erhebt. Das flachgeneigte Gebiet stellt eine fächerförmige Sanderfläche dar, die den östlich angrenzenden Endmoränenzügen der Dammer Berge vorgelagert ist. Leichte, tonarme glazifluviatile Sande, die im Bereich des Kiefernforstes Holdorf von einer geringmächtigen Flugsanddecke überlagert sind, bildeten das geologische Ausgangsmaterial für die Bodenbildung, die im Laufe der Zeit zur Bildung eines tiefgrünig versauerten Eisen-Humus-Podsols führte. Der Wasserhaushalt dieser unverlehmten Sande ist meist sommertrocken und nur im tiefen Unterboden mäßig frisch. Eine Kompensationskalkung wurde bislang nicht durchgeführt.

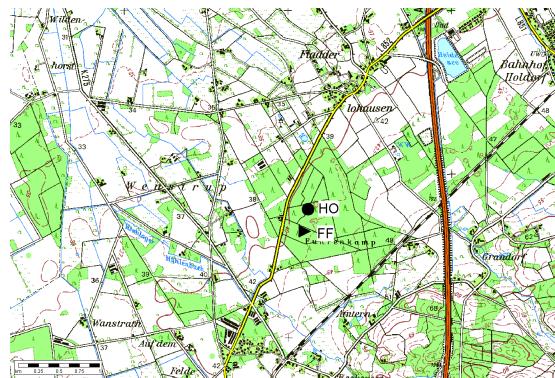


Abbildung 3.5:  
Untersuchungsstandort Holdorf. Lage der Messstelle HO im Wald (Kreis) und im Freiland (Dreieck).

Das vergleichsweise kleine, ca. 2 km<sup>2</sup> große Waldgebiet ist von mehreren größeren Tierhaltungsbetrieben in einer Entfernung von ca. 2 bis 5 km umgeben. Ca. 400 Meter entfernt in Hauptwindrichtung befindet sich ein kleinerer Tierstall. Auf den landwirtschaftlichen Nutzflächen wird vornehmlich Futtermaisbau betrieben. Aufgrund der Lage in einem Trinkwassereinzugsgebiet und den dadurch bedingten Bewirtschaftungsauflagen bezüglich der Düngung sowie Neuauflorungen werden - trotz der geringen Größe des Waldgebietes - Randeinflüsse von den unmittelbar angrenzenden landwirtschaftlich genutzten Flächen abgemildert.

### Kurzbeschreibung des Untersuchungsstandortes

Gauß-Krüger Koordinaten:	R <sup>34</sup> 38432 H <sup>58</sup> 25520
Höhe über NN:	42 m
Bestockungstyp:	Kiefernreinbestand
Vegetationstyp:	Drahtschmiele-Kiefernforst
Begründungsjahr:	1947
Stammzahl:	600 ha <sup>-1</sup>
BHD:	20 bis 25 cm
mittlere Höhe:	15 m
Schlussgrad:	70 %
geol. Ausgangsmaterial:	Flugsand über glazifluvialen Sanden
Eigentümer:	Landesforst, NFA Ahlhorn

### 3.2.4 Untersuchungsstandort Sandkrug

Der Untersuchungsstandort Sandkrug befindet sich wenige Kilometer südlich der Stadt Oldenburg (Abbildung. 3.6). Der Kiefernbestand stockt im westlichen Teil eines größeren Waldgebietes auf Flugsanden, die sich am Rande der zur Ems-Hunte-Talsandniederung abfallenden Delmenhorster Geest während des Postglazials und bis ins letzte Jahrhundert bildeten.

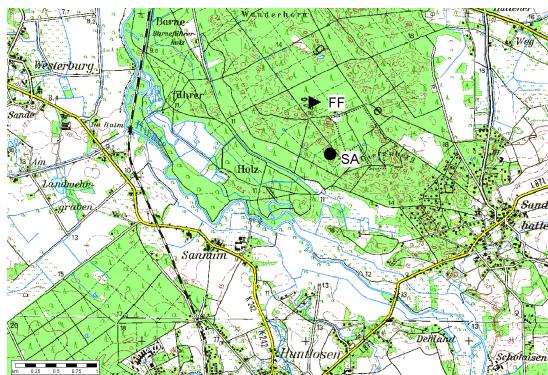


Abbildung 3.6:

Untersuchungsstandort Sandkrug. Lage der Messstellen im Wald (SA) und im Freiland (Dreieck).

Nach zeitweiliger Heidnutzung hat sich ein relativ geringmächtiger, jedoch bereits stark versauerter Eisen-Humus-Podsol gebildet. Eine Waldkalkung wurde in dem untersuchten Bestand bisher nicht durchgeführt. Im Umkreis von 3 bis 4 Kilometern sind mehrere Rindviehställe vorhanden. Die wechselfeuchten Böden der luvseitig angrenzenden Huntmarsch tragen überwiegend intensiv genutztes Grünland sowie vereinzelte Futtermais- und Getreideanbauflächen.

### Kurzbeschreibung des Untersuchungsstandortes

Gauß-Krüger Koordinaten:	R <sup>34</sup> 52240 H <sup>58</sup> 7629
Höhe über NN:	15 m
Bestockungstyp:	Kiefernreinbestand
Vegetationstyp:	Drahtschmiele-Blaubeer-Kiefernforst
Begründungsjahr:	1945
Stammzahl:	650 ha <sup>-1</sup>
BHD:	20 bis 25
mittlere Höhe:	17 m
Schlussgrad:	70 %
geol. Ausgangsmaterial:	Flugsand
Eigentümer:	Landesforst, NFA Hasbruch

### 3.3 Literatur

- Döhler H, Eurich-Menden B, Dämmgen U, Lüttich M, Osterburg B (2002) BMVEL/UBA-Ammoniak-Emissionsinventar der deutschen Landwirtschaft und Minderungsszenarien bis zum Jahr 2010. UBA-Texte 05/02. Umweltbundesamt, Berlin.
- Mosimann T, Frey T., Trute P. (1999) Schutzgut Klima/Luft in der Landschaftsplanung. NLÖ (Niedersächsisches Landesamt für Ökologie, Hrsg.): Informationsdienst Naturschutz Niedersachsen 4/99. 276 S. Hannover.
- Schaaf S, Dämmgen U, Mohr K, Meesenburg H (2005) Witterung, Spurengas- und Schwebstaub-Inhaltsstoff-Konzentrationen in der Umgebungsluft und in den Beständen des ANSWER-Projekts. *Landbauforsch Völkenrode SH XXX, YYY-ZZZ*.
- Seedorf H-H, Mayer H-H (1992) Landeskunde Niedersachsen, Teil 1. Neumünster, Wachholtz, S. 215-240.

Tabelle 3.2:

Verzeichnis der untersuchten Bestände (NFA Ahlhorn) mit Angabe einiger Standort- und Strukturparameter.

Untersuchungs- standort/ Ken- nung	Struktur- stufe	Baumart	Alter (2003) a	Stammzahl ha <sup>-1</sup>	Standort
<b>Augustendorf</b>					
AU/KIA1	<b>1</b>	Kiefer	15	4125	Unverlehmter Talsand, einschichtig oder mit Flugsandüberlagerung, sommertrocken, im tiefen Unterboden mäßig frisch
AU/KIA2	<b>2</b>	Kiefer	28	3100	Unverlehmter Talsand, einschichtig oder mit Flugsandüberlagerung, sommertrocken, im tiefen Unterboden mäßig frisch
AU/KIA3	<b>3</b>	Kiefer	29	2400	Verlehmter Geschiebesand mit unverlehmter Sandunterlagerung, mäßig sommertrocken
AU/KIA4	<b>5</b>	Kiefer	123	220	Unverlehmter Flugsand, einschichtig, mäßig sommertrocken, im tiefen Unterboden mäßig frisch
AU/KIW1	<b>4</b>	Kiefer, Birke 10 %	60	550	Unverlehmter Talsand, einschichtig, z.T. lehmige Einlagerungen, mäßig sommertrocken, im tiefen Unterboden mäßig frisch, Kompensationskalkung 1985
AU/KIW2	<b>4</b>	Kiefer	60	533	Unverlehmter Talsand, einschichtig, z.T. lehmige Einlagerungen, mäßig sommertrocken, im tiefen Unterboden mäßig frisch, Kompensationskalkung 1985
AU/FDA1	<b>1</b>	Douglasie	27	1420	Unverlehmte Talsande, einschichtig oder mit Flugsandüberlagerung, mäßig sommertrocken, z.T. schwach grundwasserbeeinflusst
AU/FDA2	<b>2</b>	Douglasie	32	1600	Teils Talsand, teils verlehmter Geschiebesand, mäßig frisch, z.T. schwache Pseudovergleyung im Unterboden
AU/FDA3	<b>3</b>	Fichte	75	770	Unverlehmter Talsand, einschichtig, z.T. lehmige Einlagerungen, mäßig sommertrocken, im tiefen Unterboden mäßig frisch
AU/FDA4	<b>4</b>	Fichte, Douglasie 20 %	67 54	500	Verlehmter Geschiebesand, z.T. Geschiebelehm, Wechselfeuchte im Unterboden (staufrisch)
<b>Herrenholz</b>					
HE/EIA1	<b>1</b>	Eiche, Birke 5 %	32	3625	Geschiebemergel mit Sandlößüberlagerung, mäßig wechselfeucht, staufucht, Kompensationskalkung
HE/EIA2	<b>2</b>	Eiche	31	3250	Geschiebemergel mit Sandlößüberlagerung, mäßig wechselfeucht, staufucht, Kompensationskalkung
HE/EIA4	<b>4</b>	Eiche, Buche 30 %	117	140 80	Geschiebemergel mit Sandlößüberlagerung, mäßig wechselfeucht, staufucht, Kompensationskalkung
<b>Holdorf</b>					
HO	<b>4</b>	Kiefer	60	600	Geschiebesand mit geringmächtiger Flugsandauflage, mäßig sommertrocken, Unterboden z.T. stauwasserbeeinflusst
<b>Sandkrug</b>					
SA	<b>4</b>	Kiefer	65	650	Flugsand, Unterboden mäßig sommertrocken,



## 4 Methoden zur Bestimmung von Stoffflüssen und –konzentrationen im ANSWER-Projekt

U. Dämmgen<sup>1</sup>, S. Schaaf<sup>1</sup>, B. Horváth<sup>2</sup>, H. Meesenburg<sup>2</sup>, K. Mohr<sup>3</sup>

### 4.1 Messungen meteorologischer Größen

Am Standort Augustendorf des ANSWER-Projects (Atmospheric Nitrogen Deposition in the Weser-Ems Region<sup>4</sup>) wurden die zur Flussbestimmung benötigten meteorologischen Größen Windgeschwindigkeit, Windrichtung, Lufttemperatur, Luftfeuchte, Netto-, Globalstrahlung nach Norm VDI 3786, Bl. 3 in Höhen von 25 m und 22 m über dem Boden auf dem Turm (Abbildung 4.1) der Messstation kontinuierlich erfasst. (Zur Lage des Standortes vgl. Meesenburg und Mohr 2005.)

Die Messung von *Windrichtung* und *Windgeschwindigkeit* in 25 m Höhe wurde mit einem kombinierten Windgeber 4.3324.31.000 der Fa. Thies (Göttingen) durchgeführt. Der Messbereich des Anemometers mit optoelektronischer Abtastung liegt bei etwa 0,3 bis 50 m s<sup>-1</sup>, die Genauigkeit beträgt 1 % vom Messbereichsendwert. Der Windrichtungsgeber hat eine Auflösung von 1,4° und eine Genauigkeit von 2°.

Zur Bestimmung der Windgeschwindigkeit in 22 m Höhe diente ein Schalenkreuzanemometer (Windgeber) 4.3303.22.000 der Fa. Thies (Charakteristik wie kombinierter Geber).

Die Bestimmung der *Lufttemperatur* (Widerstandsfühler Pt 100) und *-feuchte* (kapazitiv) erfolgte mit einer Kombi-Sonde HMP45D der Fa. Vaisala (Hamburg) sowohl in 25 m als auch in 22 m. Die Genauigkeit des Sensors beträgt für die Temperatur 0,3 K, für die Luftfeuchte 3 %.

Die *Globalstrahlung* wurde mit dem Pyranometer CM6B der Fa. Kipp & Zonen (Delft, Niederlande) bestimmt. Das Gerät besitzt eine Auflö-

sung von 1 W m<sup>-2</sup>. Die jährliche Drift liegt bei 0,5 bis 1,0 %.

Die Bestimmung der *Nettostrahlung* erfolgte mit dem Strahlungsbilanzmesser (Pyrradiometer 8111) der Fa. Thies (Göttingen). Das Gerät hat eine Auflösung von 1 W m<sup>-2</sup>. Die jährliche Drift liegt bei 0,5 bis 1,0 %.

Alle Daten wurden als 15-min-Mittelwerte abgelegt. Zur Datenerfassung diente ein Datenbus-System der Fa. IMKO Micromodultechnik (Ettlingen) in Kombination mit einem PC.

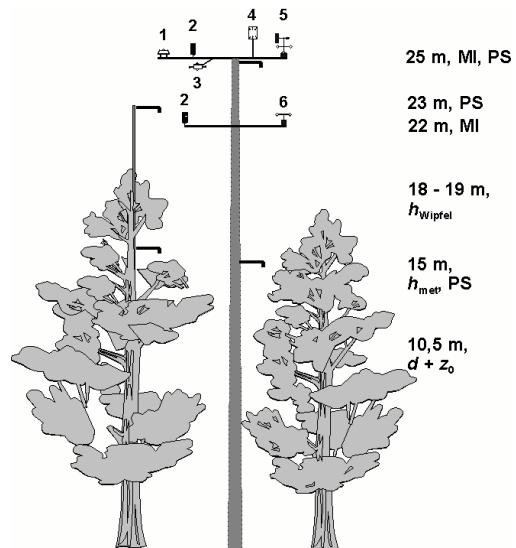


Abbildung 4.1:  
Schematischer Aufbau der Instrumentierung am Messsturm: MI: meteorologische Instrumentierung: 25 m: Pyranometer (1), Lufttemperatur- und Feuchtegeber

<sup>1</sup> Bundesforschungsanstalt für Landwirtschaft, Institut für Agrarökologie, Bundesallee 50, 38116 Braunschweig  
ulrich.daemgen@fal.de

<sup>2</sup> Niedersächsische Forstliche Versuchsanstalt, Grätzelstr. 2, 37079 Göttingen

<sup>3</sup> Landwirtschaftskammer Weser-Ems, Mars-la-Tour-Str. 9-13, 26212 Oldenburg

<sup>4</sup> Zum Konzept des ANSWER-Projekts siehe Mohr et al. (2005a) und Dämmgen et al. (2005), zu den Standorten Meesenburg und Mohr (2005), zu den verwendeten Modellen und Schaaf und Meesenburg (2005), zu den Ergebnissen Schaaf et al. (2005), Mohr et al. (2005b) sowie Meesenburg et al. (2005).

(2), Pyrradiometer (3), Ultraschallanemometer (4), kombinierter Windrichtung und -geschwindigkeitsgeber (5); 22 m: Lufttemperatur- und Feuchtegeber (2), Schalenkreuzanemometer (6). PS Passiv-Sammler.  $h_{\text{Wipfel}}$  Wipfelhöhe,  $h_{\text{met}}$  meteorologisch wirksame Höhe des Bestandes;  $d$ : Nullebenenverschiebung;  $z_0$ : Rauhigkeitslänge. Zu Einzelheiten siehe Text.

Zur Messungen der Windgeschwindigkeiten und der Temperatur für die Bestimmung turbulenter Flüsse von Impuls und fühlbarer Wärme wurde ein Ultraschallanemometer R2 der (Fa. Gill Instruments, Lymington, UK) in 25 m Höhe installiert. Die Bestimmung der Flüsse erfolgte hierbei nach der Eddy-Kovarianz-Methode (z.B. Stull 1994). Die Taktfrequenz betrug 20,8 Hz. Die Berechnung und die Speicherung der Flüsse erfolgte aus 30-min-Datensätzen auf einem separaten Rechner, der auch als Datenspeicher diente.

Die meteorologischen Daten wurden monatlich am Standort Augustendorf ausgelesen und für die Datenbank des Instituts für Agrarökologie der Bundesforschungsanstalt für Landwirtschaft (FAL) in Braunschweig aufbereitet.

## 4.2 Konzentrationsmessungen in der Atmosphäre mit Denuder-Filter-Sammeln

### 4.2.1 Das Denuder-Filter-System KAPS, Aufbau und Wirkungsweise

Zur simultanen Messung reaktiver gas- und staubförmiger N- und S-Spezies wurden Denuder-Filter-Sammler eingesetzt (zum Prinzip vgl. Dämmgen, 2001a, zum speziellen Denuder-Filter-System Kananakis Atmospheric Pollutant Sampler KAPS vgl. Peake, 1985, Peake und Legge, 1987).

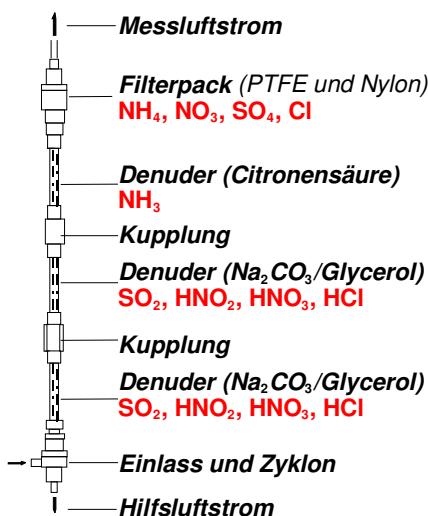


Abbildung 4.2  
Aufbau des Denuder-Filter-Sammelsystems KAPS. Zu Einzelheiten siehe Text.

Dieses System hatte sich unter extremen Wetterbedingungen und bei Vergleichsmessungen bewährt (für  $\text{HNO}_3$  vgl. Hering et al. 1988, für  $\text{NH}_3$  vgl. Wiebe et al. 1990). Innerhalb der Projektarbeitsgruppe bestehen mehrjährige Erfahrungen im Umgang mit KAPS (Zimmerling et al. 1996a, b, 1997).

Der eingesetzte Denuder-Filter-Sammler besteht aus einem Einlasssystem (Zyklon) zur Abscheidung von größeren Stäuben, drei sequentiellen Ringspalt-Denudern zur Abscheidung von Gasen und einem Filterpack (PTFE- und Nylon-Filter) zur Abscheidung von Schwebstäuben ( $\text{PM}_{2,5}$ ). Der Aufbau einer Einheit geht aus Abbildung 4.2 hervor.

Die Probenluft wird über ein Ansaugstück (Duran) in den Zyklon gesaugt, in dem die Schwebstäube klassiert werden. Luftstrom und Zyklon sind so bemessen, dass Partikel mit einem aerodynamischen Durchmesser von  $d(p) > 2 - 3 \mu\text{m}$  abgetrennt werden. Sie werden mit dem Nebenluftstrom entfernt. Der Messluftstrom passiert nacheinander zwei basisch beschichtete Denuder (B1 und B2; Beschichtung  $\text{Na}_2\text{CO}_3$ /Glycerol), den sauer beschichteten Denuder (S; Beschichtung Citronensäure/Glycerol), das PTFE-Filter (T) und das Nylon-Filter (N). Die Denuderrohre sind jeweils so lang, dass alle gasförmigen Bestandteile auf den ersten Rohrabschnitten deponiert werden. Ein Durchbruch der Denuder wurde bisher nicht beobachtet. Es hat sich gezeigt, dass  $\text{NO}_2$  nicht in merklichen Mengen abgeschieden wird.

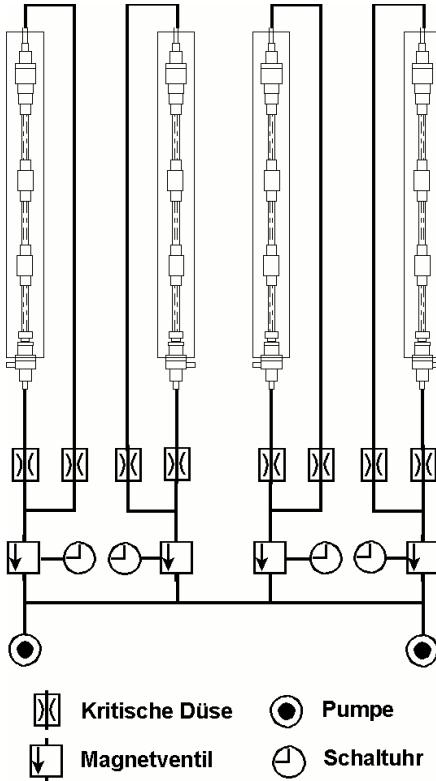


Abbildung 4.3

Betriebssystem der KAPS-Denuder-Filter-Sammler am Standort Augustendorf. Zu Einzelheiten siehe Text.

#### 4.2.2 Vorbereitung der Sammler, Exposition, Aufarbeitung und Analysenverfahren

##### Beschichtung der Ringspalt-Denuderrohre

Denuder B1 und B2 werden mit etwa 1 ml basischer Lösung (4 g  $\text{Na}_2\text{CO}_3$ , 4 ml Glycerol,  $c = 85\%$ , 50 ml demin.  $\text{H}_2\text{O}$ , mit  $\text{CH}_3\text{OH}$  auf 100 ml aufgefüllt), Denuder S mit etwa 1 ml saurer Lösung (4 g Citronensäure, 4 ml Glycerol,  $c = 85\%$ , 50 ml demin.  $\text{H}_2\text{O}$ , mit  $\text{CH}_3\text{OH}$  auf 100 ml aufgefüllt) benetzt und anschließend im Ar-Strom bzw.  $\text{N}_2$ -Strom getrocknet. Der Einbau der beschichteten Rohre sowie der Filter erfolgt jeweils unmittelbar nach dem Trocknen. Die Ansaug- und Absaugöffnungen der KAPS werden während der Lagerung und des Transports mit Laborfilm verschlossen. Die Citronensäure-Denuder werden im Labor unmittelbar vor dem Versand nach Augustendorf beschichtet.

##### Filter

Wir verwenden PTFE-Filter Nr. 11806 und Nylon-Filter Nr. 20006 der Fa. Sartorius, Göttingen.

##### Exposition

Zur Probennahme wurden die Denuder auf der Freifläche in Augustendorf an Aluminium-Masten exponiert. Die beiden Masten waren mit einer Rolle ausgerüstet, mit deren Hilfe ein Aluminium-Schlitten, der jeweils 1 Paar Sammler aufnehmen konnte, auf eine Gesamthöhe von 6 m über dem Boden gebracht wurde. Die effektive Ansaughöhe der KAPS lag bei 5,3 m.

Die Wochenmittel der Konzentrationen wurden getrennt für Tag und Nacht bestimmt. Zur Absicherung der Datenqualität und zur Minimierung von Datenverlusten wurden die Messungen als Doppelbestimmung angelegt. Die Expositionsdauer berücksichtigte die unterschiedliche Dauer von Tag und Nacht in Abhängigkeit von der Jahreszeit. Start und Ende aller Expositionen wurden so gelegt, dass Übergangsperioden (Sonnenaufgang und Sonnenuntergang) ausgeschlossen wurden. Die durchgesetzten Luftvolumina (Messluftstrom) unterschritten  $10 \text{ m}^3$  pro Sammelperiode; dadurch war gewährleistet, dass die Membranfilter nicht verstopfen. Fielen Feiertage ungünstig, so wurden mehrwöchige Messungen der Konzentrationen der Gase durchgeführt; auf eine Bestimmung der Konzentrationen der Schwebstäube wurde dann verzichtet.

Ausgehend von der in der Immissionsmessung üblichen Praxis, nur solche Werte als gestört zu bezeichnen, bei denen der Datenverlust  $1/3$  übersteigt, gelang es, die Konzentrationen mit ausreichender zeitlicher Repräsentativität zu erfassen.

##### Aufarbeitung

Die exponierten Denuder wurden im Labor mit 15 ml demin. Wasser extrahiert (3 Portionen) und bis zur Analyse in gasdichten Szintillationsfläschchen aus PP (Fa. Zinser) aufbewahrt (Kühlschrank). Die Elution der Filter wird in 20-ml-Szintillationsfläschchen vorgenommen. Dazu wird jeweils ein Filter in ein Szintillationsfläschchen gegeben, mit 15 ml demin. Wasser versetzt und anschließend zweimal für jeweils 30 min im Ultraschallbad ( $40^\circ\text{C}$ ) behandelt. Die Aufbewahrung bis zur Analyse erfolgt im Kühlschrank.

##### Analysen

Die Eluate der Denuder bzw. der Filter wurden auf die Konzentrationen der folgenden Inhaltsstoffe untersucht:

B1 und B2:	$\text{NO}_3\text{-N}$ , $\text{NO}_2\text{-N}$ , $\text{SO}_4\text{-S}$ , $\text{Cl}$
S:	$\text{NH}_4\text{-N}$
T:	$\text{NH}_4\text{-N}$ , $\text{SO}_4\text{-S}$ , $\text{Cl}$ , $\text{Na}$
N:	$\text{NO}_3\text{-N}$ , $\text{SO}_4\text{-S}$ , $\text{Cl}$

Na-Konzentrationen wurden nicht regelmäßig bestimmt. Die NO<sub>2</sub>-N-Konzentrationen in den Eluaten der Filter lagen unterhalb der Nachweissgrenze.

Die jeweils erhaltenen Lösungen wurden wie folgt analysiert:

NH <sub>4</sub> -N, NO <sub>2</sub> -N:	Segmented-Flow-Analyse (Photometrie) nach Norm DIN 38 406 E5, Ionenchromatographie nach Norm EN ISO 10304-1
NO <sub>3</sub> -N, SO <sub>4</sub> -S, Cl:	Ionenchromatographie nach Norm EN ISO 10304-1
Na	Flammen-AAS nach Norm DIN 38 406 E14

Die auf den einzelnen Flächen abgeschiedenen Stoffmengen der unterschiedlichen Spezies wurden wie in Tabelle 4.1 interpretiert und zur Berechnung von Konzentrationen in der Umgebungsluft verwendet.

#### 4.2.3 Datenverfügbarkeit

Der Transport der Denuder-Filter-Sammler von Braunschweig nach Augustendorf mit Hilfe eines Paketdienstes erwies sich zunächst als schwierig. Die schweren hölzernen Transportkisten für jeweils 4 KAPS-Sammler waren nicht gut zu handhaben; sie boten den Sammlern keinen hinreichenden Schutz, wenn die Kisten unsanft abgesetzt wurden. Dies führte in einigen Fällen zum Bruch der Denuder-Rohre. Zusätzliche Halterungen der Denuder in den Schutzrohren sowie schließlich der Ersatz der hölzernen Transportkisten durch gepolsterte Gewehrtransportbehälter für jeweils 2 Sammler führten dazu, dass keine Transportschäden mehr auftraten.

Beim Betrieb der Denuder-Filter-Sammler kam es zur Kondensatbildung im Messluft-Schlauch und im Nebenluft-Schlauch. Dies beeinträchtigte den Luftdurchsatz und führte zu Probenverlusten. In Einzelfällen lösten sich die Quetschverschlüsse, die die Denuder miteinander verbinden. Auch so entstanden Ausfälle.

Tabelle 4.1:

Berechnung der Konzentrationen von Luftinhaltsstoffen aus Denuder-Filter-Analysen:  $m_S$ : Masse des Analyten auf saurem Denuder S;  $m_{B1}$  und  $m_{B2}$ : Masse des Analyten auf den basischen Denudern B1 und B2;  $m_T$ : Masse des Analyten auf PTFE-Filter T;  $m_N$ : Masse des Analyten auf Nylon-Filter N;  $e_N$ : Summe der Equivalente von NO<sub>3</sub>-N und Cl auf dem Nylon-Filter zur Bestimmung des durch Thermolyse verlorengegangenen Anteils von NH<sub>4</sub>-N auf T; V: durchgesetztes Luftvolumen

Spezies in der Umgebungsluft	Analytisch bestimmte Spezies	Rechnung
Gase		
NH <sub>3</sub>	NH <sub>4</sub> -N	$m_S \cdot V^{-1}$
HNO <sub>2</sub>	NO <sub>2</sub> -N	$(m_{B1} - m_{B2}) \cdot V^{-1}$
HNO <sub>3</sub>	NO <sub>3</sub> -N	$(m_{B1} - m_{B2}) \cdot V^{-1}$
SO <sub>2</sub>	SO <sub>4</sub> -S	$(m_{B1} - m_{B2}) \cdot V^{-1}$
HCl	Cl	$(m_{B1} - m_{B2}) \cdot V^{-1}$
Schwebstaub-Bestandteile		
NH <sub>4</sub> -N	NH <sub>4</sub> -N	$(m_T + e_N) \cdot V^{-1}$
NO <sub>3</sub> -N	NO <sub>3</sub> -N	$(m_T + m_N) \cdot V^{-1}$
SO <sub>4</sub> -S	SO <sub>4</sub> -S	$m_T \cdot V^{-1}$
Cl	Cl	$(m_T + m_N) \cdot V^{-1}$
Na	Na	$m_T \cdot V^{-1}$

Insgesamt waren jedoch von 66 Probennahmen 1 Totalausfall, 1 Ausfall aller Nachtwerte, 1 Ausfall der nächtlichen Gas-Konzentrationen, 2 Ausfälle der nächtlichen Schwebstaub-Konzentrationen sowie 4 Ausfälle der Schwebstaub-Konzentrationsmessungen am Tage zu verzeichnen. Dabei wurden während der mehrtägigen Feste (Weihnachten/Neujahr und Ostern), bei denen ein Probenwechsel nicht gut zu bewerkstelligen war, eine verlängerte Expositionszeit unter Verlust auf Filtermessungen in Kauf genommen.

Die Probennahme begann am 18.8.2001 und dauerte bis zum 28.10.03. Es wurden mittlere Konzentrationen für jeweils 1 Woche bestimmt, und zwar jeweils für die Zeit von 6 – 18 h MEZ (Tagstunden) und 19 – 5 h MEZ (Nachtstunden). Dabei wurden zur Vermeidung von Datenverlusten und zur Überprüfung der Datenqualität Doppelbestimmungen durchgeführt. Die Probennahme begann jeweils Dienstags um 19 h und endete Montags 5 h (Nachtstunden) bzw. am Mittwoch um 6 h und endete Montags 18 h (Tagstunden). Während der Schulferien und über den Jahreswechsel konnten die Sammler nicht ausgetauscht werden. Hier wurden Zwei-Wochen-Proben genommen, wobei zur Vermeidung von Störungen durch belegte Filter (Verringerung des Luftdurchsatzes) keine Filter eingelegt wurden. Insgesamt wurden von den 432 denkbaren Proben 414 NH<sub>3</sub>-Proben (96 %), 423 HNO<sub>2</sub>-Proben (98 %), 415 HNO<sub>3</sub>-Proben (96 %), 422 SO<sub>2</sub>-Proben (98 %), 416 HCl-Proben (96 %) von den Denudern sowie

je 419 NH<sub>4</sub>-N-, NO<sub>3</sub>-N- und SO<sub>4</sub>-S-Proben (97 %) sowie 418 Cl-Proben (97 %) analysiert. Die nachfolgende Überprüfung der Analysendaten im Hinblick auf Plausibilität (bei Abweichungen der Parallelen für die Nacht wurden die jeweiligen Konzentrationen für den Tag als Maß herangezogen und umgekehrt. Bei den Schwebstäuben wurde die Ionenbilanz herangezogen, um unplausible Werte zu identifizieren.

#### 4.2.4 Datenqualität

Die gewonnenen Datensätze wurden auf ihre Plausibilität überprüft. Gesichtspunkte für die Zurückweisung von Analysendaten waren:

- notierte Mängel bei Exposition oder Aufarbeitung (Luftdurchsatz unzureichend oder schwankend, Kondensat-Bildung, unzureichender Druckabfall über Filtern; Beschädigung der Rohre, Farbe der Filter, Analysen der B2-Denuder)
- nicht plausible Konzentrationen (Vergleich der Angaben im Gesamtdatensatz, Ionenbilanz bei den Schwebstaub-Bestandteilen)

Die doppelte Probennahme erlaubt Aussagen über die erzielte Datenqualität. Bei der Auswertung von 70 möglichen Parallelen waren, je nach Spezies, 40 bis 50 für eine Fehleranalyse geeignet. Beispiele für Parallelbestimmungen an plausiblen Proben sind in den Abbildungen 4.4 bis 4.11 dargestellt. Die numerischen Ergebnisse der Untersuchung sind in Tabelle 2.2 zusammengefasst.

Die in Tabelle 4.2 und den Abbildungen 4.4 bis 4.11 zusammengestellten Ergebnisse lassen erkennen, dass die mittleren absoluten Messfehler sich in der Größenordnung von 10 bis 20 % des Mittelwertes bewegen. Dies ist im Hinblick auf die gestellte Aufgabe vor allem bei SO<sub>2</sub> und NH<sub>4</sub>-N unbefriedigend und verbesserungswürdig.

Im Prinzip lässt sich die Qualität der Gasmessungen verbessern, wenn man den Luftdurchsatz erhöht. Bei der Benutzung von kombinierten Denuder-Filter-Sammlern wie den KAPS-Sammlern beeinflussen die Probennahmen für Gase und Schwebstaub-Bestandteile einander: Hohe Luftdurchsätze zur Erhöhung der Bestimmungsgrenzen bewirken dann einen vergleichsweise hohen Druckabfall über den Filtern. Bei staubbeladener Luft setzen sich die Filter zu; der Luftdurchsatz nimmt während der Probennahme ab. Die Luftströme müssten dann mit Massendurchflussreglern konstant gehalten werden; die Verwendung ( kostengünstiger) kritischer Düsen ist nicht mehr möglich.

Zimmerling et al. (1996a) beschreiben eine Bestimmung der Blindwerte unter Feldbedingungen und der daraus abgeleiteten Bestimmungs-

grenzen für KAPS-Denuder-Filter-Sammler für 24-h-Proben. Sie betragen für

<i>Gase</i>	NH <sub>3</sub>	1,1 µg m <sup>-3</sup>
	HNO <sub>2</sub>	0,1 µg m <sup>-3</sup>
	HNO <sub>3</sub>	0,6 µg m <sup>-3</sup>
	SO <sub>2</sub>	0,6 µg m <sup>-3</sup>
	HCl	0,7 µg m <sup>-3</sup>

<i>Stäube</i>	NH <sub>4</sub> -N	0,3 µg m <sup>-3</sup>
	NO <sub>3</sub> -N	0,2 µg m <sup>-3</sup>
	SO <sub>4</sub> -S	0,3 µg m <sup>-3</sup>
	Cl	0,8 µg m <sup>-3</sup>

Praktisch alle betrachteten NH<sub>3</sub>-, HNO<sub>2</sub>-, HNO<sub>3</sub>-, SO<sub>2</sub>-, NH<sub>4</sub>-N-, NO<sub>3</sub>-N- und SO<sub>4</sub>-S-Konzentrationen liegen oberhalb der Bestimmungsgrenze. Bei Cl liegt ein nennenswerter Anteil der Konzentrationen unterhalb der oben angegebenen Grenze, bei HCl praktisch die Gesamtmenge. Für Na waren keine Bestimmungsgrenzen ermittelt worden.

Tabelle 4.2 stellt die für die Messungen in Augustendorf bestimmten Qualitätskriterien zusammen.

#### 4.2.5 Schließung von Datenlücken

Fehlten beide Werte einer Doppelbestimmung, so wurden die jeweils anderen Werte (Tag- bzw. Nacht-Werte) des entsprechenden Zeitraums eingesetzt. Fehlte ein Datensatz völlig, so wurde er durch Interpolation aus den Zeiträumen davor und danach gewonnen.

Tabelle 4.2:

Aus Parallelmessungen abgeleitete Qualitätsparameter für Denuder-Filter-Messungen von Spurengasen und Schwebstaub-Inhaltsstoffen. n: Anzahl der in den Abbildungen 4.4 bis 4.12 dargestellten Parallelen; \* ab-

weichende Anzahl bei der Regressionsrechnung; Regression  $T2 = a + b \cdot T1$ ; Fehler  $G$  berechnet gemäß<sup>4</sup>.

	n	a	b	R <sup>2</sup>	G
NH <sub>3</sub> tags	81	0,07	1,09	0,95	0,88
NH <sub>3</sub> nachts	90	0,41	0,87	0,93	0,49
HNO <sub>2</sub> tags *	72	0,03	0,92	0,60	0,18
HNO <sub>2</sub> nachts	81	0,07	0,84	0,81	0,20
HNO <sub>3</sub> tags	70	0,06	0,92	0,78	0,28
HNO <sub>3</sub> nachts	73	0,06	0,85	0,78	0,33
SO <sub>2</sub> tags	75	0,07	0,97	0,88	0,29
SO <sub>2</sub> nachts	84	0,13	0,92	0,94	0,29
HCl tags	64	0,21	0,49	0,19	0,26
HCl nachts	55	0,22	0,74	0,37	0,38
NH <sub>4</sub> -N tags	68	0,22	1,01	0,95	0,48
NH <sub>4</sub> -N nachts	86	0,10	0,96	0,95	0,39
NO <sub>3</sub> -N tags	69	0,03	1,08	0,96	0,24
NO <sub>3</sub> -N nachts	88	0,03	1,01	0,97	0,17
SO <sub>4</sub> -S tags	69	0,17	0,96	0,84	0,31
SO <sub>4</sub> -S nachts	89	0,03	1,01	0,90	0,27
Cl tags	71	0,08	1,06	0,77	0,37
Cl nachts	85	0,19	0,79	0,69	0,29
Na alle *	55	-0,04	1,17	0,91	0,23

\* Regression ohne das höchste Wertepaar

<sup>4</sup> 
$$G_{xy} = \sqrt{\frac{1}{n(n-2)} \cdot [n\Sigma y^2 - (\Sigma y)^2] - \frac{[n\Sigma_{xy} - (\Sigma x)(\Sigma y)]^2}{n\Sigma x^2 - (\Sigma x)^2}}$$

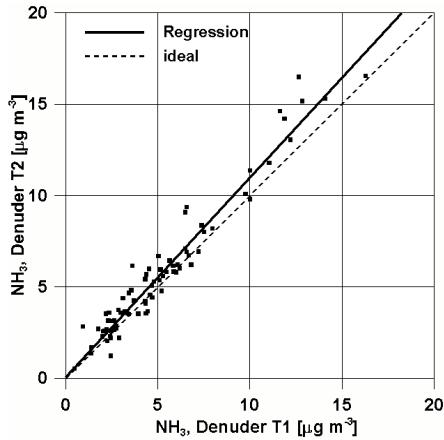


Abbildung 4.4a:  
Vergleich der mit sauren Denudern gemessenen mittleren  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen, Tagwerte

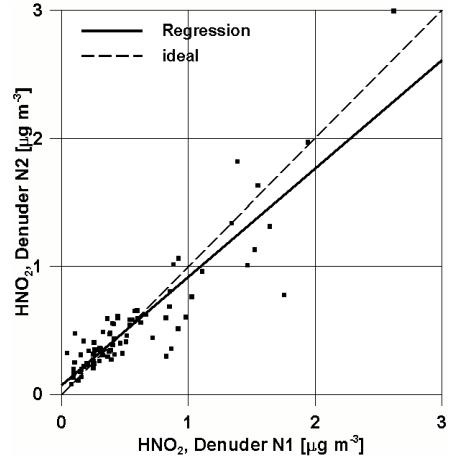


Abbildung 4.5b:  
Vergleich der mit basischen Denudern gemessenen mittleren  $\text{HNO}_2$ -Konzentrationen, Nachtwerte

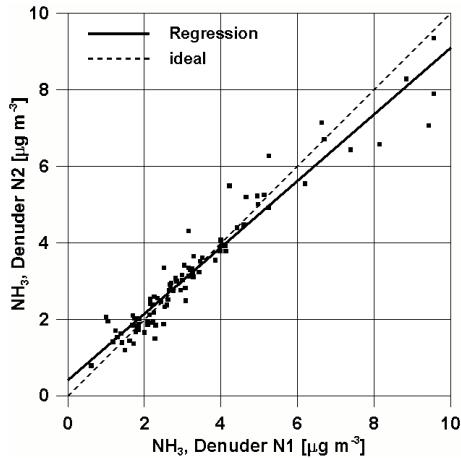


Abbildung 4.4b:  
Vergleich der mit sauren Denudern gemessenen mittleren  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen, Nachtwerte

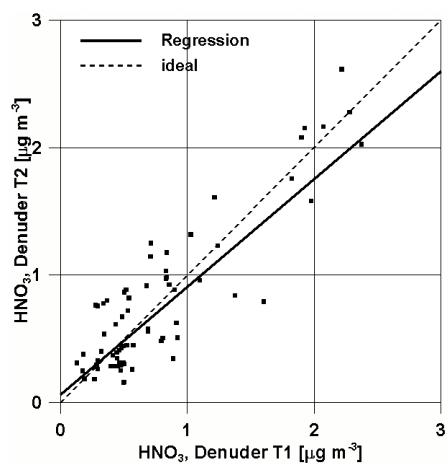


Abbildung 4.6a:  
Vergleich der mit basischen Denudern gemessenen mittleren  $\text{HNO}_3$ -Konzentrationen, Tagwerte

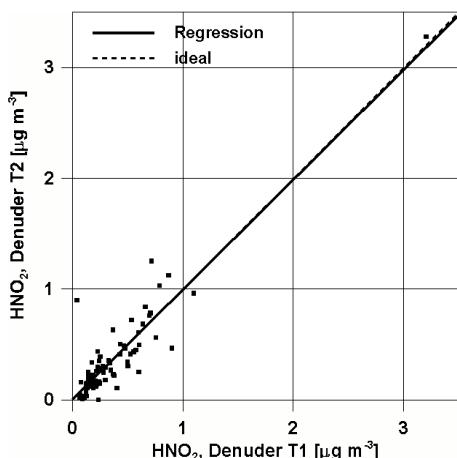


Abbildung 4.5a:  
Vergleich der mit sauren Denudern gemessenen mittleren  $\text{HNO}_2$ -Konzentrationen, Tagwerte

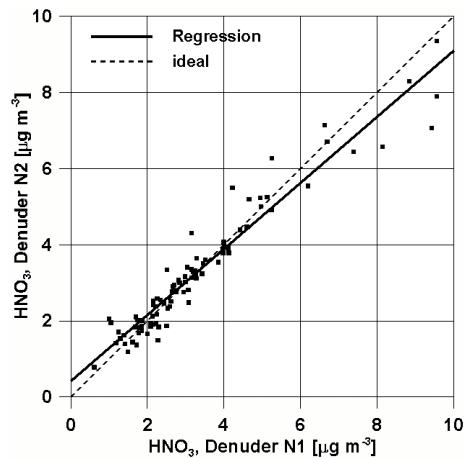


Abbildung 4.6b:  
Vergleich der mit basischen Denudern gemessenen mittleren  $\text{HNO}_3$ -Konzentrationen, Nachtwerte

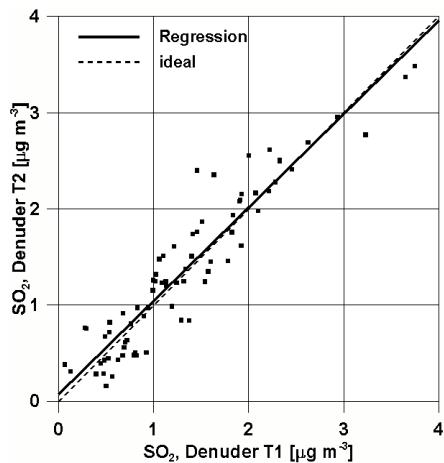


Abbildung 4.7a:  
Vergleich der mit basischen Denudern gemessenen mittleren SO<sub>2</sub>-Konzentrationen, Tagwerte

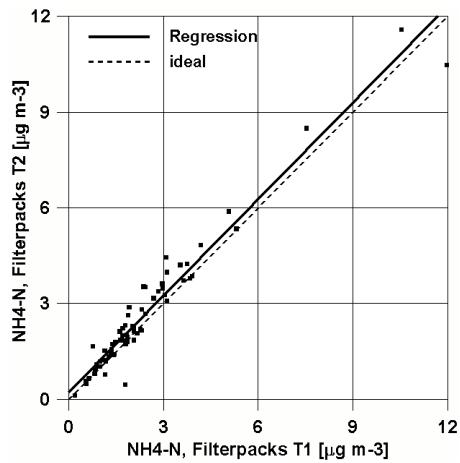


Abbildung 4.9a:  
Vergleich der mit Filterpacks gemessenen mittleren NH<sub>4</sub>-N-Konzentrationen, Tagwerte

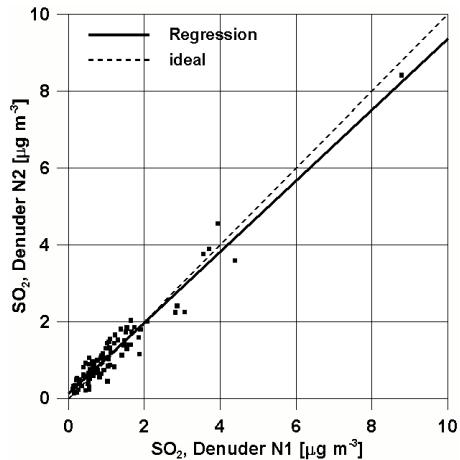


Abbildung 4.7b:  
Vergleich der mit basischen Denudern gemessenen mittleren SO<sub>2</sub>-Konzentrationen, Nachtwerte

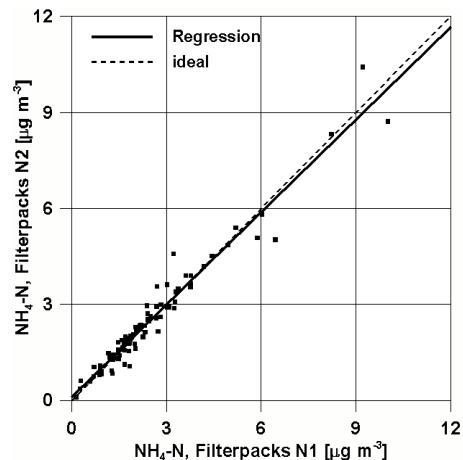


Abbildung 4.9b:  
Vergleich der mit Filterpacks gemessenen mittleren NH<sub>4</sub>-N-Konzentrationen, Nachtwerte

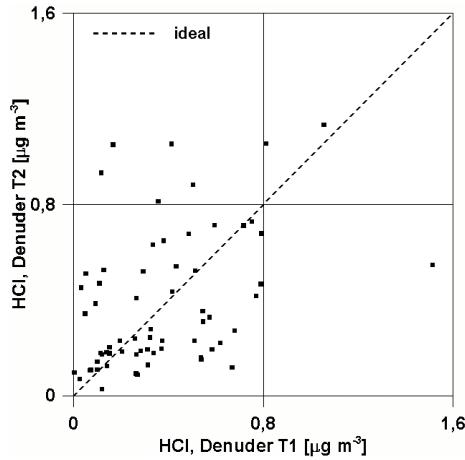


Abbildung 4.8:  
Vergleich der mit sauren Denudern gemessenen mittleren HCl-Konzentrationen, Tag- und Nachtwerte

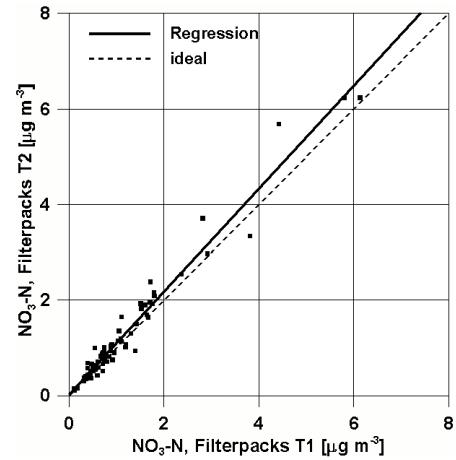


Abbildung 4.10a:  
Vergleich der mit Filterpacks gemessenen mittleren NO<sub>3</sub>-N-Konzentrationen, Tagwerte

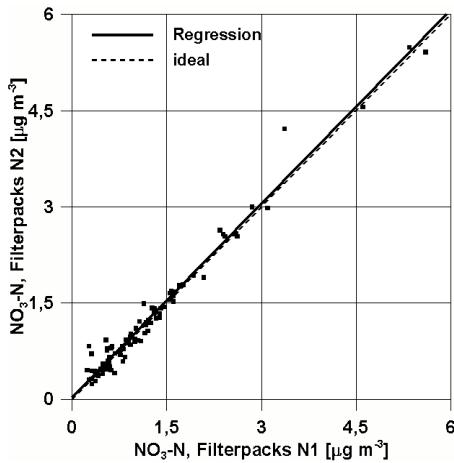


Abbildung 4.9b:  
Vergleich der mit Filterpacks gemessenen mittleren  $\text{NO}_3\text{-N}$ -Konzentrationen, Nachtwerte

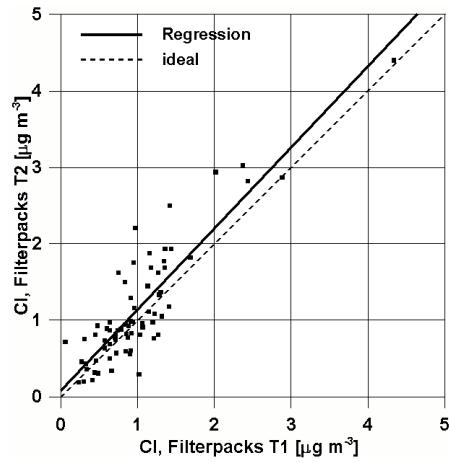


Abbildung 4.11:  
Vergleich der mit Filterpacks gemessenen mittleren Cl-Konzentrationen, Tagwerte

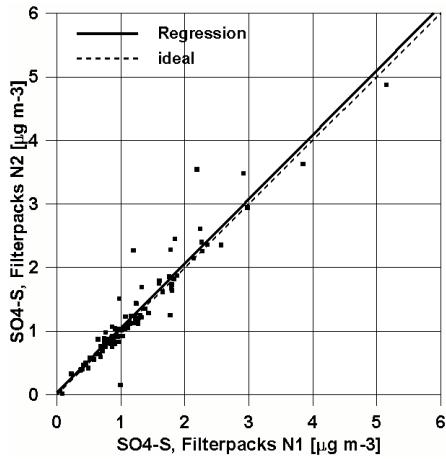


Abbildung 4.10a:  
Vergleich der mit Filterpacks gemessenen mittleren  $\text{SO}_4\text{-S}$ -Konzentrationen, Tagwerte

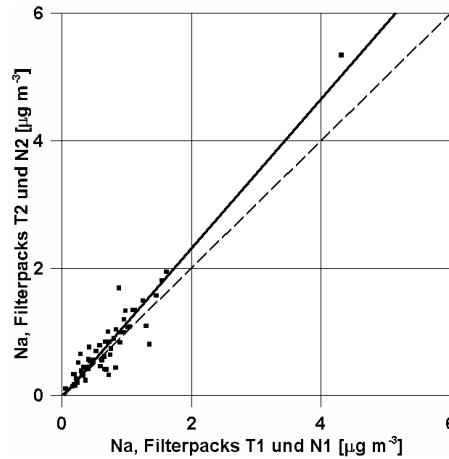


Abbildung 4.12:  
Vergleich der mit Filterpacks gemessenen mittleren Na-Konzentrationen, alle Werte

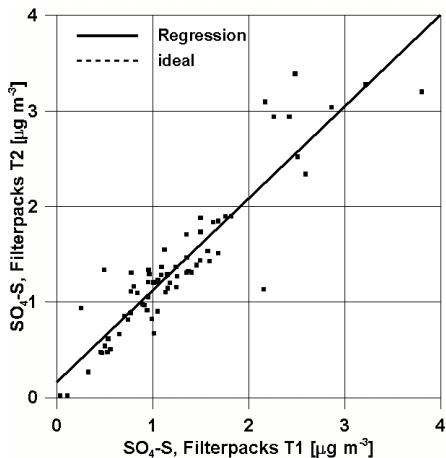


Abbildung 4.10b:  
Vergleich der mit Filterpacks gemessenen mittleren  $\text{SO}_4\text{-S}$ -Konzentrationen, Nachtwerte

#### 4.2.6 Zusammensetzung der Schwebstäube

Frühere Untersuchungen hatten ergeben, dass die Ionenbilanz für die untersuchten Schwebstaub-Inhaltsstoffe weitgehend null war, wenn man die Summen der Kationen  $\text{NH}_4\text{-N}$  sowie Summen der Anionen  $\text{NO}_3\text{-N}$  und  $\text{SO}_4\text{-S}$  miteinander verglich (Zimmerling et al. 1996b, 2000, Bächlin et al. 2003). Für den Standort Augustendorf wurde beobachtet, dass die getrennte Betrachtung von  $\text{NH}_4\text{-N}$  einerseits und  $\text{NO}_3\text{-N}$  sowie  $\text{SO}_4\text{-S}$  anderseits bzw. von  $\text{NH}_4\text{-N}$ ,  $\text{NO}_3\text{-N}$  und  $\text{HSO}_4\text{-S}$  jeweils einen Überschuss an Anionen ergaben, wobei im letzteren Falle die Abweichung etwa die Größenordnung der Analysenfehler hatte. Bezieht man Na und Cl mit ein, so wird auch dann ein Überschuss an Kationen beobachtet, wenn man annimmt, dass  $\text{SO}_4\text{-S}$  vollständig neutralisiert wird. Die Abweichungen vom Idealverhalten sind

jedoch nur für hohe Konzentrationen außerhalb der Analysengenauigkeit (vgl. Abbildung 4.14).

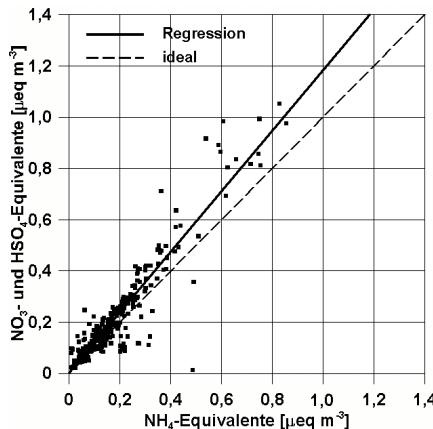


Abbildung 4.14:  
Neutralisation der Schwebstäube, Regression unter der Annahme, dass alles Sulfat als Hydrogensulfat vorliegt.

Proben, für die sowohl Cl- als auch Na-Analysen vorlagen, wurden daraufhin untersucht, ob und in-wieweit die beiden Spezies als NaCl vorlagen. Abbildung 4.15 veranschaulicht, dass sich das Verhältnis von Na und Cl im Aerosol im Mittel zwischen dem Seesalz-Verhältnis ( $n_{\text{Na}}/n_{\text{Cl}} = 0,86$ ) und Equimolarität bewegt. Damit erscheint eine Schätzung der Na-Deposition aus dem Aerosol über die Cl-Deposition möglich.

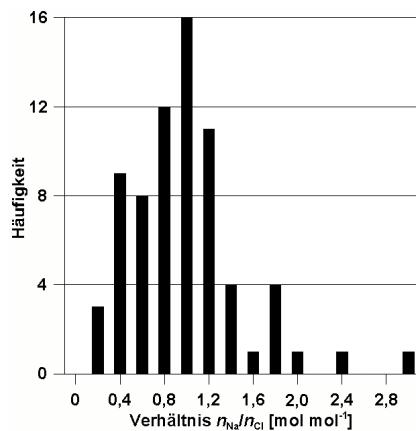


Abbildung 4.15:  
Häufigkeitsverteilung der Mol-Verhältnisse von Na und Cl

### 4.3 Passiv-Sammler

#### 4.3.1 Passiv-Sammler Bauart IVL

##### 4.3.1.1 Aufbau und Wirkungsweise

Passiv-Sammler gestatten die Messung mittlerer Konzentrationen reaktiver Spurengase ohne zusätzliche Pumpen und elektrischer Energiezufuhr. Der verwendete Diffusions-Sammler nach Ferm (1991) hat sich im flächendeckenden Einsatz bewährt und seine Eignung in Vergleichsmessungen bewiesen (Kirchner et al. 1999). Die Genauigkeit der Konzentrationsmessung genügte den hier gestellten Ansprüchen (Zimmerling 2000). Der Aufbau des eingesetzten IVL-Sammelers geht aus Abbildung 4.16 hervor.

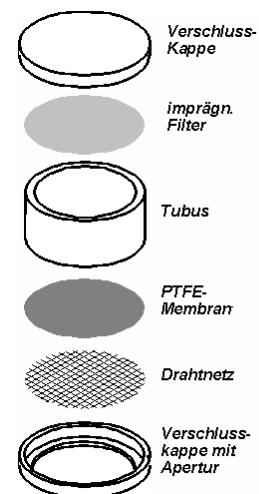


Abbildung 4.16:  
Aufbau des IVL-Sammelers. Wirksame Tubuslänge  $l_R = 10$  mm, Durchmesser der Apertur 20 mm.

Die obere Tubus-Öffnung wird mit einem Schnappdeckel verschlossen, auf dem sich ein beschichtetes Filter (Firma: Schleicher & Schuell; Material: Cellulose; Porengröße: 0,45 μm) befindet. Die untere Öffnung wird von einem PTFE-Filter (Firma: Millipore; Durchmesser: 25 mm; Porengröße: 1,0 μm) verschlossen, das mit einem Edelstahlnetz (Maschenweite: 0,125 mm; Drahtdurchmesser: 0,08 mm) stabilisiert und vor grober Verschmutzung geschützt wird. PTFE-Membran und Stahlnetz werden mit Hilfe eines zweiten Schnappdeckels (Material: PE) auf den Tubus gedrückt. Dieser Schnappdeckel mit Öffnung stellt gleichzeitig die „Sammel-Öffnung“ des Passiv-Sammelers dar. Zur Abscheidung von NH<sub>3</sub> wird das Cellulose-Filter mit Citronensäure beschichtet, zur Abscheidung von SO<sub>2</sub> wird K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> verwendet.

Die Messungen mit Passiv-Sammern wurden als Vierfach-Bestimmung durchgeführt. Jeweils 2 Passiv-Sammler wurden vertikal mit der Öffnung nach unten in eine Edelstahlplatte mit einer entsprechenden Einbuchtung gefügt. Sie waren durch ein Schutzdach aus Edelstahl vor Hitze und Feuchtigkeit geschützt.

#### 4.3.1.2 Vorbereitung der Sammler, Exposition, Aufarbeitung und Analysenverfahren

Präparation und Aufarbeitung der Passiv-Sammler erfolgen wie bei Ferm (1991) beschrieben:

##### NH<sub>3</sub>

Die Cellulose-Filter werden mit demin. Wasser vorgewaschen (2mal 30 min im Ultraschallbad), im Exsikkator getrocknet und dann mit 50 µl einer Lösung von Citronensäure in Aceton ( $c = 2 \%$ ) imprägniert. Nach Trocknung der Filter im Exsikkator (10 min) wird der Passiv-Sammler zusammengebaut und bis zur Exposition in einem gasdichten Transportcontainer (PP) aufbewahrt, der insgesamt 4 Passiv-Sammler aufnehmen kann. Die Exposition im Freiland erfolgt normalerweise am darauffolgenden Tag.

Nach Beendigung der Exposition werden die Passiv-Sammler im verschlossenen Transportgefäß im Labor mit jeweils 5 ml demin. Wasser quantitativ extrahiert (1 h, Schüttelapparatur). Extraktion im Ultraschallbad und in der Schüttelapparatur ergab keine Unterschiede. Für den Fall, dass eine sofortige Aufarbeitung bzw. Analyse nicht möglich war, wurden die trockenen Passiv-Sammler im Transportcontainer bei - 20 °C gelagert. Die Analyse erfolgte mit Hilfe der Segmented Flow Analyse.

##### SO<sub>2</sub>

Die Cellulose-Filter werden, wie oben beschrieben, vorgewaschen, getrocknet und dann mit 50 µl einer Lösung von K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> ( $c = 4 \%$ ) in Wasser/Methanol (1:1) imprägniert. Nach Trocknung der Filter im Exsikkator (1 d) werden die Passiv-Sammler wie für NH<sub>3</sub> zusammengebaut, aufbewahrt und exponiert. Die Analyse erfolgte mit Hilfe der Ionenchromatographie.

Der Expositionsmodus der Passiv-Sammler wird durch die Sammeleffizienz des Sammlers und die Konzentrationen der Spezies in der Umgebungsluft bestimmt. Eine Expositionszeit von 1 Woche war im Messgebiet für NH<sub>3</sub> ausreichend, nach den bisherigen Erfahrungen war sie dies auch für SO<sub>2</sub>.

##### Auswertung

Die auf dem beschichteten Filter abgeschiedene Menge  $Q$  hängt von folgenden Faktoren ab:

- molekularer Diffusionskoeffizient der zu messenden Spezies ( $D_{\text{NH}_3} = 2,54 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$  bei 25 °C;  $D_{\text{SO}_2} = 1,32 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$  bei 20 °C)
- Expositionszeit  $t$
- Länge des Tubus ( $l_R = 0,010 \text{ m}$ ); Durchmesser der Öffnung des Passiv-Sammlers (Durchmesser  $d = 0,020 \text{ m}$ , freier Querschnitt  $A_R = 3,14 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2$ )
- Dicke des PTFE-Filters ( $l_F = 0,175 \cdot 10^{-3} \text{ m}$ ); Porosität des PTFE-Filters (freier Querschnitt  $A_F = 2,67 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2$ )
- Dicke des Edelstahlnetzes ( $l_N = 0,16 \cdot 10^{-3} \text{ m}$ ); Porosität des Edelstahlnetzes (freier Querschnitt  $A_N = 0,47 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2$ )
- Dicke der laminaren Schicht außerhalb des Passiv-Sammlers (abhängig von Bauart und Windgeschwindigkeit, experimentell bestimmt;  $l_{LBL} = 0,0015 \text{ m}$ ); freier Querschnitt entspricht  $A_R = 3,14 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2$ )

Die Konzentrationen der Spezies in der Umgebungsluft  $\rho$  lassen sich daraus wie folgt berechnen:

$$\rho = \frac{Q}{t \cdot D} \cdot \left( \frac{l_R}{A_R} + \frac{l_F}{A_F} + \frac{l_N}{A_N} + \frac{l_{LBL}}{A_{LBL}} \right)$$

Für NH<sub>3</sub> ergibt sich für einen Diffusionskoeffizienten von  $D_{\text{NH}_3} = 2,54 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ , einem Extraktionsvolumen von 5 ml sowie unter Verwendung oben angegebener Parameter folgende Gleichung zur Berechnung der Konzentration von NH<sub>3</sub> in der Umgebungsluft:

$$\rho_{\text{NH}_3} = \frac{c_{\text{NH}_4-\text{N}}}{t} \cdot 9,723 \text{ s}$$

mit	$\rho_{\text{NH}_4-\text{N}}$	Konzentration von NH <sub>4</sub> -N in der Umgebungsluft [ $\mu\text{g m}^{-3}$ ]
	$c_{\text{NH}_4-\text{N}}$	Konzentration von NH <sub>4</sub> -N im Filtereluat [ $\mu\text{g l}^{-1}$ ]
	$t$	Expositionszeit [s]

Der Versuch, einen temperaturabhängigen Diffusionskoeffizienten zu verwenden, hat sich als nicht hilfreich erwiesen (Dämmgen 2001b).

Für Schwefeldioxid (SO<sub>2</sub>) ergibt sich für einen Diffusionskoeffizienten von  $D_{\text{SO}_2} = 1,32 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ , einem Extraktionsvolumen von 5 ml sowie unter Verwendung oben angegebener Parameter folgende Gleichung zur Berechnung von  $\rho(\text{SO}_2)$  in der Umgebungsluft:

$$\rho_{\text{SO}_2} = \frac{c_{\text{SO}_4-\text{S}}}{t} \cdot 24,65 \text{ s}$$

mit  $c_{\text{SO}_4-\text{S}}$  Konzentration von  $\text{SO}_4\text{-S}$  im Filtereluat  $[\mu\text{g l}^{-1}]$

In den Filter-Eluaten der  $\text{NH}_3$ -Passiv-Sammler wurde mit einem Segmented Flow Analyzer photometrisch die  $\text{NH}_4\text{-N}$ -Konzentration bestimmt. Die  $\text{SO}_4\text{-S}$ -Konzentration in den Filter-Eluaten der  $\text{SO}_2$ -Passiv-Sammler wurde ionenchromatographisch bestimmt.

#### 4.3.1.3 Einsatz der Passiv-Sammler

IVL-Passiv-Sammler wurden auf der Freifläche Augustendorf neben den Denuder-Messungen in Gradientenanordnung betrieben (Messhöhen 3, 6, 9 und 12 m über Grund, vgl. Abbildung 4.17). Im Wald wurden sie am Messsturm in Höhen von 15 m und 25 m über Grund angebracht. Über den Freiflächen in Augustendorf und Herrenholz wurden sie in 4 m exponiert. Hier und am Turm im Wald dienten sie zur Messung mittlerer Konzentrationen von  $\text{NH}_3$ ,  $\text{NO}_2$ ,  $\text{SO}_2$  und  $\text{O}_3$ .

An der Vergleichsmessstelle Bösel wurden sie ausschließlich zur Bestimmung der  $\text{NH}_3$ -Konzentration in der Umgebungsluft herangezogen (Vierfachbestimmung in 3,5 m Höhe).

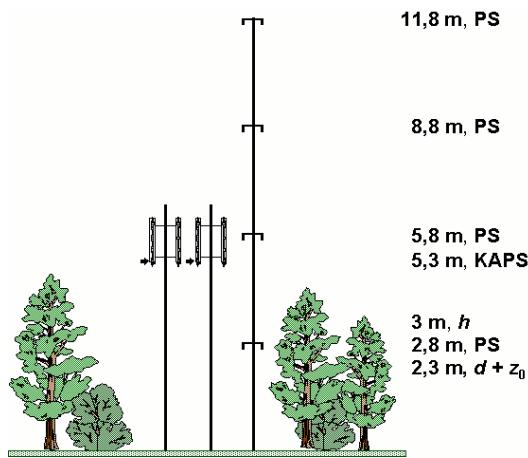


Abbildung 4.17:  
Denuder-Filter-Sammler (KAPS) und Passiv-Sammler (PS) in Gradientenanordnung auf der Freifläche Augustendorf.  $h$ : Höhe des Bestandes;  $d$ : Nullebenenverschiebung;  $z_0$ : Rauhigkeitslänge.

#### 4.3.1.4 Datenverfügbarkeit

##### Freifläche Augustendorf

Messungen über der Freifläche wurden ab November 2001 im ungefähren Monatsrhythmus für  $\text{NH}_3$ ,  $\text{NO}_2$ ,  $\text{SO}_2$  und  $\text{O}_3$  durchgeführt.

Gradientenmessungen (Wochenmittel) über der Freifläche wurden vom 26.11.02 bis zum 6.10.03 durchgeführt. Zunächst wurden je zwei Sammler für die Bestimmung von  $\text{NH}_3$  und  $\text{SO}_2$  exponiert. Die  $\text{SO}_2$ -Bestimmungen erwiesen sich als überflüssig, da die Konzentrationen für die wöchentliche Probennahme zu gering waren.

##### Augustendorf Turm und Herrenholz

Am meteorologischen Turm im Kiefernbestand wurden IVL-Sammler ( $\text{NH}_3$ ,  $\text{NO}_2$ ,  $\text{SO}_2$  und  $\text{O}_3$ ) in 15 m und in 25 m Höhe exponiert, im Herrenholz über der Freifläche. Die durchgängige Probennahme begann im April 2002 und dauerte bis Dezember 2003. Der Probennahmerhythmus betrug etwa 4 Wochen. Exponiert wurde jeweils 1 Sammler pro Gas.

##### Bösel

Regelmäßige Parallelmessungen mit unterschiedlichen  $\text{NH}_3$ -Analysensystemen schlossen seit Januar 2003 auch IVL-Sammler (4 Parallelen) ein. Die Beprobung geschah monatlich.

#### 4.3.1.5 Datenqualität

##### Augustendorf Freifläche

Die mit den Passiv-Sammlern (Höhe 6 m) und mit den Denudern (Höhe 5,3 m) bestimmten Konzentrationen sollten großenordnungsmäßig übereinstimmen. Ein genauerer Vergleich setzt eine Höhenkorrektur voraus.

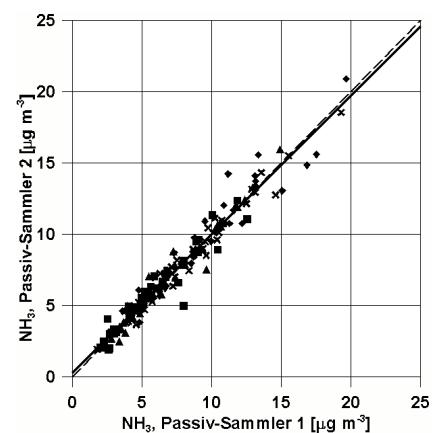


Abbildung 4.18:  
Parallelmessungen mit IVL-Sammlern. Zu Einzelheiten siehe Text

## Augustendorf Turm und Herrenholz

Die unteren Bestimmungsgrenzen für die Passivsammler werden bei jeweils monatlicher Exposition mit  $0,3 \mu\text{g m}^{-3}$  für  $\text{NH}_3$ ,  $0,1 \mu\text{g m}^{-3}$  für  $\text{NO}_2$ ,  $0,2 \mu\text{g m}^{-3}$  für  $\text{SO}_2$  und  $2 \mu\text{g m}^{-3}$  für  $\text{O}_3$  angegeben (IVL 2002). Mit Ausnahme von zwei Messwerten für  $\text{SO}_2$  lagen alle Messwerte deutlich über den jeweiligen Bestimmungsgrenzen. Da jeweils nur ein Sammler exponiert wurde, können keine Angaben zur Reproduzierbarkeit gemacht werden.

### 4.3.2 Passiv-Sammler der Bauart Blatter/Neftel

#### 4.3.2.1 Aufbau und Wirkungsweise

Die von (Blatter und Neftel 1990) beschriebene Messmethode zur Messung der  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen in der Luft erwies sich in zurückliegenden Untersuchungen (Mohr 2000) und bei einer Validierung von Kirchner et al. (1999) als geeignet. Der Aufbau dieses Sammler-Typs ist schematisch in Abbildung 4.19 dargestellt.

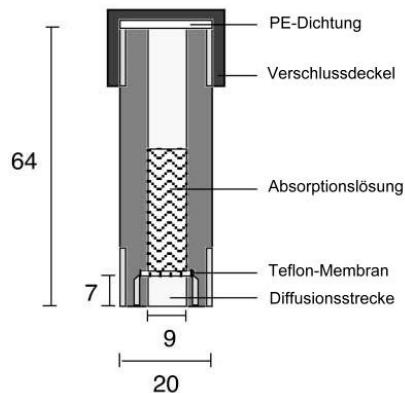


Abbildung 4.19:  
Aufbau der Passiv-Sammler Bauart Blatter/Neftel aus Thöni et al. (2003).

Das Funktionsprinzip beruht auf der Stoffabscheidung in einem flüssigen Medium, das durch eine Polypropylen-Membran (Dicke:  $130 \mu\text{m}$ , Poredurchmesser:  $0,2 \mu\text{m}$ ) von der Umgebungsluft getrennt ist. Als Auffanglösung dient  $\text{HCl}$  ( $c = 0,001 \text{ mol l}^{-1}$ ), die zum Schutz vor Gefrieren einen Volumenanteil von 20 % Ethylenglycol enthält. In der warmen Jahreszeit wurde auf die Zugabe des Frostschutzmittels verzichtet, um bei höheren Verdunstungsverlusten eine Aufkonzentration des Glycols und dadurch nicht reproduzierbare Abweichungen der Abscheidecharakteristik zu vermeiden. Es wurde bei Verwendung der glycolfreien Lösung durch Vergleichsmessungen eine um 25 % gesteigerte  $\text{NH}_3$ -Akkumulation festgestellt,

die bei der Berechnung der Immissionskonzentrationen ihre Berücksichtigung fand.

Zur Bestückung der Messstandorte mit Passiv-Sammlern dieses Typs wurden jeweils 4 Sammler zum Schutz vor Niederschlags- und Windeinwirkungen kreisförmig unter einer trichterförmigen Edelstahl-Haube installiert (Abbildung 4.20).

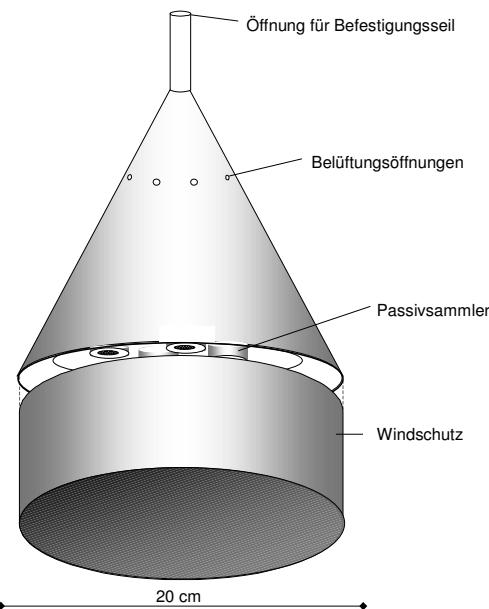


Abbildung 4.20:  
Konstruktion der Installationsvorrichtung für Blatter/Neftel Sammler

#### 4.3.2.2 Einsatz der Blatter/Neftel-Sammler

Für die Gradientenmessungen an den Waldmessstellen Augustendorf, Sandkrug und Holdorf wurden die Passiv-Sammler in einer Höhe von etwa 2 m über dem Kiefernbestand und im darunterliegenden Kronenraum installiert (Abbildung 4.21). Als tragende Konstruktion diente ein Aluminiummast, der mittels Spanngurten am Baumschaft befestigt war. Die mit je 4 Sammlern des Blatter/Neftel-Typs bestückte Messeinrichtung wurde an einem Seil befestigt. An der Vergleichsmessstelle des NLÖ in Bösel wurde die Messhaube in

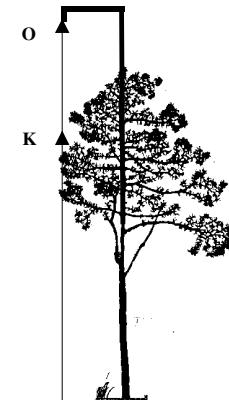


Abbildung 4.21:  
Anordnung der Messeinrichtungen mit Blatter-Sammlern ca. 2 m über dem Bestand (O) und innerhalb des Kronenraumes (K)

3,5 m Höhe auf einem Messcontainer installiert.

Zur Probenentnahme und Wiederbefüllung im Wald wurden die Sammler mit einer Seilvorrichtung herabgelassen.

#### 4.3.2.3 Vorbereitung der Sammler, Exposition, Aufarbeitung und Analysenverfahren

Am Ende der 1- bis 2-wöchigen Exposition wurde die in den Passiv-Sammlern enthaltene Absorptionslösung vor Ort mittels 5 ml Glasspritze entnommen und in 2-ml-Transportgefäß (Zentrifugenrörchen) überführt. Verdunstungsverluste wurden direkt bei der Probenentnahme mit doppelt destilliertem Wasser ausgeglichen. Anschließend wurden die Sammler mit 3 ml im Winter bzw. 5 ml Lösung in den Monaten April bis September neu befüllt. 2 ml dieser Lösung wurden als Blindprobe zurückgestellt.

Die chemische Analyse der Absorptionslösung auf NH<sub>4</sub>-N erfolgte colorimetrisch nach Neutralisation mit NaOH und Zusatz der Färbereagenzien im Photometer bei 623 nm (Indophenol-Verfahren, vgl. VDI 2461). Als Kalibrationslösung diente NH<sub>4</sub>Cl-Lösung ( $c = 0, 1, 5; 10, 20, \text{ und } 50 \mu\text{g l}^{-1}$ ).

Die in der Atmosphäre gemessenen NH<sub>3</sub>-Konzentrationen lassen sich aus folgendem Algorithmus berechnen:

$$\rho_{\text{NH}_3} = \frac{(c_{\text{NH}_4}(\text{Probe}) - c_{\text{NH}_4}(\text{blind})) \cdot 1,8 \cdot T_N^{-1,42} \cdot k}{t \cdot T_{20}^{-1,42}}$$

mit  $\rho_{\text{NH}_3}$

Konzentration von NH<sub>3</sub> in der Luft [ $\mu\text{g m}^{-3}$  NH<sub>3</sub>]

$c_{\text{NH}_4}(\text{Probe})$

Konzentration von Ammonium im Filtereluat [ $\mu\text{g l}^{-1}$  N]

$c_{\text{NH}_4}(\text{blind})$

Blindwert im Filtereluat [ $\mu\text{g l}^{-1}$  N]

$t$

Expositionsdauer [h]

$k$

Konstante (1700 bei Zusatz von Ethylenglycol oder 1300 ohne Ethylenglycol) [ $\text{l m}^{-3} \text{ h}$ ]

$T_{20}$

Skalar der Temperatur von 293 K

$T_N$

Skalar der mittleren Außen-temperatur [K]

#### 4.3.2.4 Datenverfügbarkeit

Die Messungen der NH<sub>3</sub>-Konzentrationen in 2 Messebenen an den Messtandorten Holdorf und Sandkrug begannen am 5.6.2001 und wurden kontinuierlich bis Ende 2003 fortgeführt. Die Messintervalle hatten eine Dauer von 2 Wochen. Die Konzentrationsangaben beziehen sich auf

dieses Zeitintegral ebenso wie auf den Mittelwert der 4 parallel installierten Sammler.

Die NH<sub>3</sub> Messungen in Augustendorf beschränkten sich auf einen kürzeren Zeitraum zwischen dem 9.4.02 und dem 2.9.03. Die Messintervalle betrugen hier von 1 Woche.

Die Vergleichsmessungen auf dem Messcontainer des NLÖ in Bösel zwischen dem 17.8.02 und 2.9.03 wurden in 2-Wochen-Intervallen vorgenommen. An diesem Standort kam es aus probenahmetechnischen Gründen zu häufigeren Messausfällen, so dass nur eine Anzahl von 20 Datensätzen für die Validierung zur Verfügung stand.

#### 4.3.2.5 Datenqualität

Die in den Abbildungen 4.22 bis 4.25 dargestellten Gegenüberstellungen veranschaulichen z.T. größere Unterschiede der Messergebnisse parallel betriebener Passiv-Sammler. Sie entstanden zu meist nach Sturmereignissen oder durch anfängliche Schwierigkeiten bei der Beprobung der Passiv-Sammler, bei denen stärkere Bewegungen der Sammler auftraten. Durch eine Änderung der Befestigungseinrichtung an den Messmasten konnte diese Fehlerquelle beseitigt werden.

In Bösel traten zeitweilig erhebliche Abweichungen der gemessenen NH<sub>3</sub>-Konzentrationen auf, deren Ursache nicht genau festgestellt werden konnte. Möglicherweise wirkte sich der Messbetrieb auf dem Dach des Containers in irgend einer Weise störend auf die Funktion dieses Sammlertyps aus.

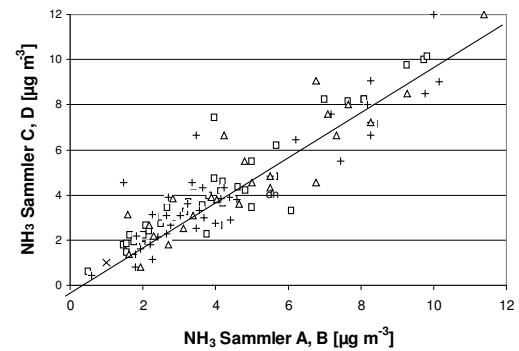


Abbildung 4.22:

Gegenüberstellung von Einzelmesswerten je 2 parallel exponierter Passiv-Sammler in Holdorf

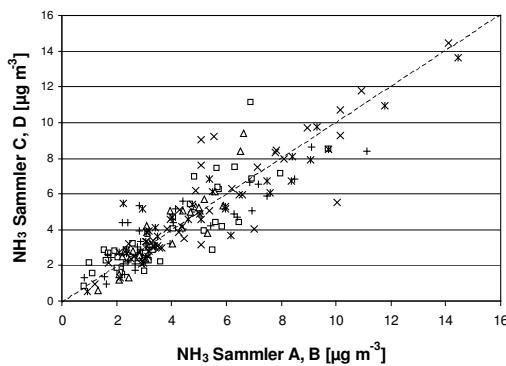


Abbildung 4.23:  
Gegenüberstellung von Einzelmesswerten parallel exponierter Passiv-Sammler in Sandkrug

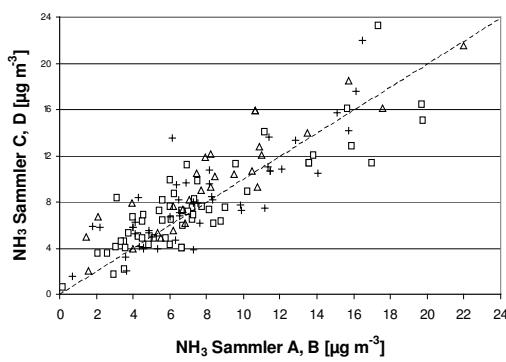


Abbildung 4.24:  
Gegenüberstellung von Einzelmesswerten parallel exponierter Passiv-Sammler in Augustendorf

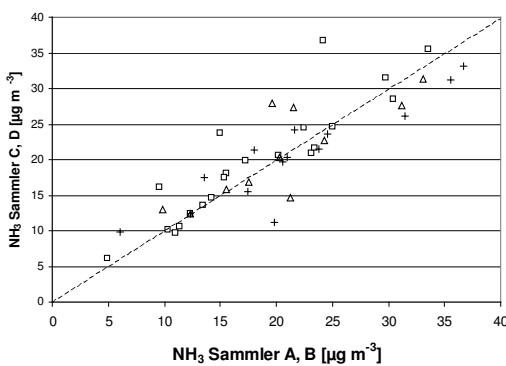


Abbildung 4.25:  
Gegenüberstellung von Einzelmesswerten parallel exponierter Passiv-Sammler in Bösel

#### 4.4 NH<sub>x</sub>-Messungen mit Waschflaschen

##### 4.4.1.1 Aufbau und Wirkungsweise

Dieses nasschemische Messverfahren erfasst die Summe (NH<sub>x</sub>) des gasförmigen NH<sub>3</sub> und des aerosolgebundenen NH<sub>4</sub> in der Atmosphäre. Im Gegensatz zu der aufwändigeren Denuder-

Messtechnik erlaubt dieses Verfahren allerdings keine Differenzierung dieser Komponenten.

Die eingesetzte Messtechnik entsprach im wesentlichen den Vorgaben der Norm VDI 2461 (Abbildung 4.26). Dabei wird das Probengas durch zwei hintereinander geschaltete Waschflaschen geführt, die als Absorptionslösung jeweils 100 ml einer H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-Lösung ( $c = 0,01 \text{ mol l}^{-1}$ ) enthalten. Die Dispersion des Probengases in der Lösung erfolgte über Glasfritten, die eine deutlich höhere Abscheideleistung aufweisen als die in VDI 2461 genannten Münke-Waschflaschen. Die 2. Waschflasche diente lediglich zur kontinuierlichen Kontrolle der Abscheideleistung der 1. Waschflasche. Um ein Einfrieren der Absorptionslösung zu vermeiden, wurde in den Wintermonaten die Lösung mit Ethylenglycol ( $c = 20 \text{ \%}$ ) versetzt.

Der erforderliche Luftstrom wurde mittels Pumpe erzeugt und auf  $2,5 \text{ l min}^{-1}$  eingestellt. Die Menge des beprobten Luftvolumens wurde mit Hilfe eines den Waschflaschen nachgeschalteten Gasmengenzählers erfasst.

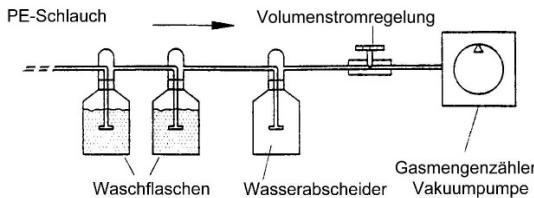


Abbildung 4.26: Schema der Messeinrichtung zur NH<sub>x</sub>-Messung mit Waschflaschen

##### 4.4.1.2 Vorbereitung der Sammler, Exposition

Die Probenluft wurde über einen Polyethylen-schlauch (Durchmesser: 10 mm) in einer Höhe von ca. 2 m über dem Kronenraum entnommen und zu den in Erdcontainern untergebrachten Waschflaschen geführt. Zur Vermeidung einer Adsorption von NH<sub>x</sub> an den Wandungen wurde mit Beginn der Projektphase 2001 regelmäßig der Schlauch mit 0,005 n NaOH gespült. Als Haltevorrichtung für den Probenschlauch wurde ein ähnlicher wie in Abbildung 4.21 dargestellter Mast verwendet.

Probennahme und Austausch der Absorptionslösung erfolgte in regelmäßigen Abständen von 2 Wochen.

##### 4.4.1.3 Einsatz der Waschflaschen-Messungen

Die Ermittlung der NH<sub>x</sub>-Konzentrationen erfolgte an den Standorten Holdorf und Sandkrug. Die Messungen erfolgten dort lediglich zu Beginn des

Projektzeitraumes, da die Messungen mit den gleichzeitig eingesetzten Passiv-Sammlern eine bessere Vergleichbarkeit mit den Messdaten der anderen Standorte boten.

#### 4.4.1.4 Aufarbeitung und Analysenverfahren

Die  $\text{NH}_4$ -Konzentration der Probenlösungen wurde wie in VDI 2461 beschrieben, photometrisch bestimmt (vgl. 4.3.2.1). Mit dem in der Messperiode ermittelten durchgesetzten Gasvolumen errechnet sich die  $\text{NH}_x$ -Konzentration nach folgender Gleichung:

$$\rho_{\text{NH}_x} = \frac{c_{\text{NH}_4} \cdot v_{\text{Lsg}}}{V}$$

mit

$\rho_{\text{NH}_x}$	Konzentration von $\text{NH}_x$ in der Luft [ $\mu\text{g m}^{-3}$ ]
$c_{\text{NH}_4}$	$\text{NH}_4$ -Konzentration von Ammonium [ $\mu\text{g l}^{-1}$ ] in der Waschflasche
$v_{\text{Lsg}}$	Volumen der Lösung in der Waschflasche [l]
$V$	durchgesetztes Luftvolumen [ $\text{m}^3$ ]

#### 4.4.1.5 Datenverfügbarkeit

Die  $\text{NH}_x$ -Messungen wurden seit der Einrichtung der Standorte Holdorf und Sandkrug und eines weiteren Standortes im östlichen Niedersachsen 1996 für eine regionale Differenzierung der Belastungssituation langfristig durchgeführt (Mohr 2001). Sie wurden kontinuierlich bis 2003 weitergeführt, wobei durch die ab 2002 geänderte Messtechnik (Spülung der Schläuche, Erhöhung der Ansaugöffnung über den Waldbeständen) die Datensätze ab 2002 bis 2003 mit denen der Vorjahren nicht unmittelbar miteinander vergleichbar sind.

#### 4.4.1.6 Datenqualität

Die  $\text{NH}_x$ -Messungen wurden mit nur einer Messvorrichtung vorgenommen, so dass eine Qualitätsprüfung mit Hilfe von Parallelmessungen nicht vorgenommen werden konnte. Aus einem längeren Zeitraum ab 2002 stehen jedoch Ergebnisse parallel durchgeführter Messungen mit Waschflaschen und Passivsammlern zur Verfügung. Diese zeigen in der Regel gegenüber den  $\text{NH}_x$ -Konzentrationen erwartungsgemäß z.T. deutlich geringere  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen (Abbildung 4.27 und 4.28). Insbesondere bei niedrigeren Immissionskonzentrationen lagen jedoch die nasschemisch ermittelten  $\text{NH}_x$ -Konzentrationen an beiden Standorten zeitweilig unter den  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen. Diese Messfehler sind auf Unzulänglichkeiten der nas-

schemischen Methodik zurückzuführen, bedingt durch Wandeffekte der 20 m langen PE-Schläuchen und unzureichende Abscheideleistungen der Waschflaschen.

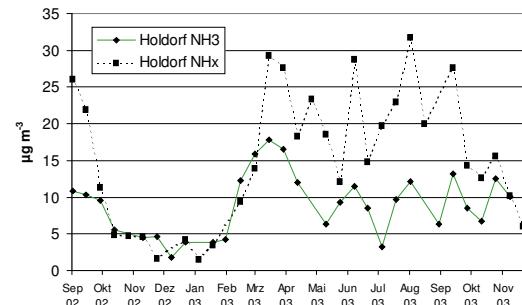


Abbildung 4.27:  
Vergleich der mit Waschflaschen gemessenen  $\text{NH}_x$ -Konzentrationen und der mit Passiv-Sammlern (Typ Blatter/Neftel) gemessenen  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen in Holdorf.

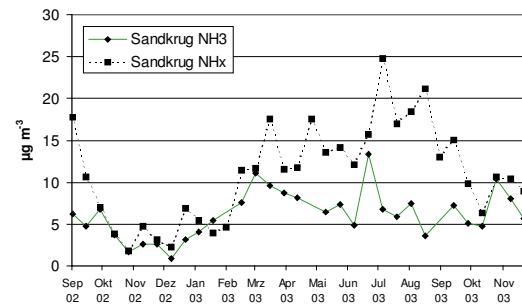


Abbildung 4.28:  
Vergleich der mit Waschflaschen gemessenen  $\text{NH}_x$ -Konzentrationen und der mit Passiv-Sammlern (Typ Blatter/Neftel) gemessenen  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen in Sandkrug.

### 4.5 Depositionsmessungen mit Surrogatflächen

#### 4.5.1 Bulk-Depositionen im Freiland

##### 4.5.1.1 Verfahren

Der Freilandniederschlag wurde als Bulk-Deposition an den Standorten Augustendorf, Herrenholz, Holdorf und Sandkrug mit permanent offenen sog. Bulk-Sammlern erfasst. In Augustendorf und Herrenholz wurden je 3 Niederschlagssammler vom Typ LWF RS200 mit einer Auffangfläche von  $314 \text{ cm}^2$  und einem Volumen der Sammelflaschen von 4400 ml eingesetzt (UMS 2000). Diese Sammler wurden 1 m über dem Erdboden in PVC-Wasserrohren aufgestellt, die gleichzeitig als Schutz gegen Lichteinfall und

Erwärmung dienen. Die Freiflächen-Sammler waren mit einem Vogelvergrämungsring gegen Verunreinigung durch Vogelkot ausgestattet.

In Holdorf und Sandkrug wurde der Freilandniederschlag mit dem vom Niedersächsischen Landesamt für Ökologie eingesetzten Sammlertyp (Typ „Osnabrück“, NLÖ 1993) erfasst. Dieses System setzt sich aus 6 Einzelsammlern mit einer Auffangfläche von jeweils 200 cm<sup>2</sup> zusammen. Die Sammelgefäße besitzen ein Volumen von 2 l und sind gemeinsam in einem gegen Licht- und Wärmewirkung geschützten Behälter untergebracht.

Die Probenentnahme der Niederschläge erfolgte generell in 2-Wochen-Intervallen. Die Proben jeweils mehrerer Beprobungsintervalle (Holdorf und Sandkrug: 4 Wochen, Augustendorf und Herrenholz: 1 Monat) wurden für die chemische Analyse volumengewichtet zu einer Mischprobe vereinigt (zeitliche Mischung).

#### 4.5.2 Kronentraufemessungen

Die Kronentraufe wurde an den Standorten Augustendorf (10 Bestände) und Herrenholz (3 Bestände) wie im Freiland mit Sammlern vom Typ LWF RS200 erfasst. Allerdings sind die Untersuchungsbestände mit je 15 Niederschlagssammlern ausgestattet, die in einem systematischen Raster angeordnet wurden.

Die in den Beständen Holdorf und Sandkrug durchgeführten Kronentraufemessungen erfolgten mit dem Sammler-Typ „Münden“ (NLÖ 1993). Die Sammler sind ca. 1,2 m hoch und besitzen eine Auffangfläche von 110 cm<sup>2</sup>. Sie wurden an beiden Standorten in einer Anzahl von jeweils 16 Stück eingesetzt.

Die Kronentraufemessungen erfolgten nach dem gleichen Prinzip wie die Freilandniederschlagsmessungen. Nach jedem Beprobungsintervall wurden die Proben von 5 (Augustendorf und Herrenholz bzw. 8 (Holdorf und Sandkrug) Sammlern volumengewichtet zu einer Mischprobe vereinigt (räumliche Mischung). Es fand ebenfalls eine zeitliche Mischung wie beim Freilandniederschlag statt. Die räumliche Mischung wurde unmittelbar nach der Beprobung durchgeführt. Die zeitliche Mischung wurde nach Eingang der letzten Teilprobe durchgeführt.

Die Kronentraufeflüsse werden hier dem Bestandesniederschlag gleichgesetzt. Signifikante Mengen Stammablauf treten unter den Hauptbaumarten nur in Buchenbeständen auf (Meesenburg et al. 1997).

#### 4.5.2.1 Datenverfügbarkeit und Datenqualität

Die in den Waldbeständen eingesetzten Sammler-Typen (LWF, Münden) sind bei einem Vergleich von Sammelsystemen zur Depositionsmessung in den Niederlanden im Jahr 1999/2000 getestet worden (Draaijers et al. 2001). Die Ergebnisse der Sammler entsprachen hinsichtlich der Messgenauigkeit und Handhabbarkeit den Anforderungen des Messverfahrens.

Bei der Probennahme in Augustendorf und Herrenholz fand bereits eine Qualitätskontrolle hinsichtlich der quantitativen und qualitativen Verwertbarkeit der Proben statt (Tab. 4.3, Hoppe und Schulze 1997). Dadurch wurden verunreinigte oder auf andere Weise gestörte Proben von der weiteren Verarbeitung ausgeschlossen. Durch die gewählte Anzahl von Wiederholungen ist aber eine vollständige Datenverfügbarkeit über die gesamte Untersuchungsperiode gewährleistet. Weitere Schritte der Qualitätskontrolle fanden nach der chemischen Analyse statt (Wiederholungsanalysen, Berechnung von Ionenbilanzen, Leitfähigkeitsbilanzen, N-Bilanzen, Plausibilität der Analysenergebnisse).

Tabelle 4.3:

Matrix der Statusvergabe bei der Probennahme von Niederschlagsproben in Augustendorf und Herrenholz. Die Vergabe der grau hinterlegten Statuszahlen schließt die Proben von Mischungen und chemischen Analysen aus. Die Vergabe des Status 9 erfordert eine weitergehende Beurteilung im Labor.

Menge Chemie	unverändert	verändert	übergelaufen
unverändert	0	1	2
verdächtig	3	4	5
unbrauchbar	6	7	8
unbestimmt		9	

Die Wiederholungen der Niederschlagsbeprobung im Freiland können zur Beurteilung der Qualität des Messverfahrens eingesetzt werden, da angenommen werden kann, dass die Stoffflüsse auf einer Freifläche homogen sind. Die Wiederholungen der Kronentraufemessungen dienen demgegenüber eher der Beurteilung der räumlichen Variabilität der Kronentraufeflüsse. Abbildung 4.29 und 4.30 zeigen die Übereinstimmung der NH<sub>4</sub>-N- und NO<sub>3</sub>-N-Konzentrationen in den Wiederholungen der Freifläche Augustendorf.

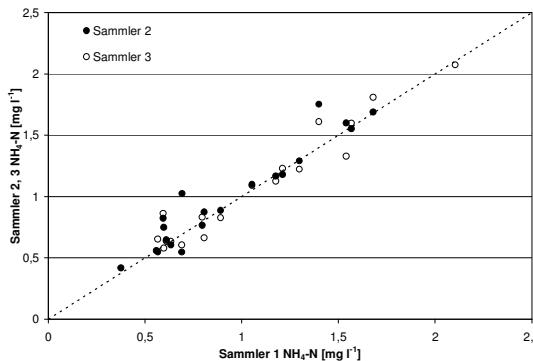


Abbildung 4.29:  
Vergleich der  $\text{NH}_4\text{-N}$ -Konzentrationen in Wiederholungen der Niederschlagssammler auf der Freifläche Augustendorf.

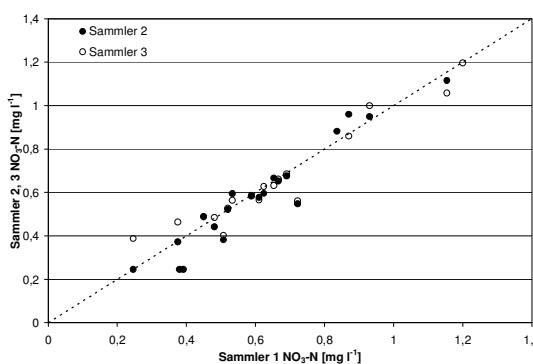


Abbildung 4.30:  
Vergleich der  $\text{NO}_3\text{-N}$ -Konzentrationen in Wiederholungen der Niederschlagssammler auf der Freifläche Augustendorf.

Aus der Variabilität der Einzelmessungen der Flüsse im Freilandniederschlag und in der Kronentraufe wurde der Fehler des Mittelwertes der Stoffflüsse berechnet (Tabelle 4.4). Danach ergeben sich für die Bestimmung der mittleren Wasserflüsse Fehler von 1 % für den Freilandniederschlag und 4 % für die Kronentraufe. Der Fehler der Stoffflüsse bewegt sich zwischen 2 % (Nges) und 23 % (Norg) im Freilandniederschlag sowie zwischen 16 % ( $\text{NO}_3\text{-N}$ , Norg) und 50 % ( $\text{H}^+$ ) in der Kronentraufe.

Tabelle 4.4:  
Relativer Fehler des Mittelwertes der Flussbestimmungen aufgrund der räumlichen Variabilität der Messungen für den Standort Augustendorf im Zeitraum 01.2002 – 10.2003 ( $\alpha = 5\%$ ).

	Freiland	Kronentraufe
	%	%
Fluss	1	4
$\text{H}^+$	21	50
Na	4	20
K	16	32
Mg	6	39

Ca	13	48
$\text{NH}_4\text{-N}$	4	18
$\text{NO}_3\text{-N}$	8	16
Cl	6	20
$\text{SO}_4$	4	20
Nges	2	17
Norg	23	16
Sges	4	19

Der für die Depositionsmessungen auf der Freifläche in Holdorf und Sandkrug verwendete Sammlertyp „Osnabrück“ wurde bei der Validierung bei Draajers et al (2001) nicht berücksichtigt. Er wies bei einer 40-monatigen Vergleichsmessung unterschiedliche stoffspezifische, jedoch für den Untersuchungszweck hinreichend genaue Messgenauigkeiten auf (Abbildung 4.31 bis 4.33, vgl. auch Dämmgen und Küsters 1992). Die Übereinstimmung zwischen den mit Bulk-Sammlern und Wet-only-Sammlern (Fa. Eigenbrodt, Typ UNS 130/E) gemessenen  $\text{NH}_4\text{-N}$ - und  $\text{NO}_3\text{-N}$ -Depositionen war relativ hoch ( $\text{NH}_4$ :  $R^2 = 0,75$  - 0,76;  $\text{NO}_3$ :  $R^2 = 0,88$ ). Durch die Mitberücksichtigung von trocken deponierten Partikeln beim Einsatz des Osnabrück-Sammlers in Holdorf und Sandkrug liegt der  $\text{NH}_4\text{-N}$ -Eintrag um etwa 16 % und der  $\text{NO}_3\text{-N}$ -Eintrag um 5 % über der nassen Deposition dieser Spezies.

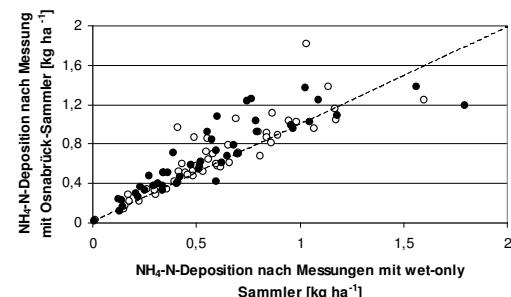


Abbildung 4.31:  
Vergleich der  $\text{NH}_4\text{-N}$ -Deposition, ermittelt mit dem Bulk-Sammler Typ „Osnabrück“ und dem Wet-only Sammler „Eigenbrodt“ in der Freifläche von Holdorf (Kreise) und Sandkrug (Punkte).

Zeitweilig größere Unterschiede traten zwischen den gemessenen Depositionsraten trotz insgesamt hoher Korrelationen (Holdorf:  $R^2 = 0,95$ ; Sandkrug:  $R^2 = 0,91$ ) bei Natrium (Na) auf. Der Anteil der mit den Osnabrück-Sammlern erfassten trockenen Deposition lag in Sandkrug um 24 % über der nassen Deposition. Auch in Holdorf war dieser mit 18 % vergleichsweise hoch. Dies erklärt sich durch zeitweilig deutlich höhere Na-Einträge, die im permanent geöffneten Osnabrück-Sammler trocken deponiert oder im zumeist geschlossenen Zustand während Nebelpe-

rioden von Wet-only-Sammlern nicht erfasst werden.

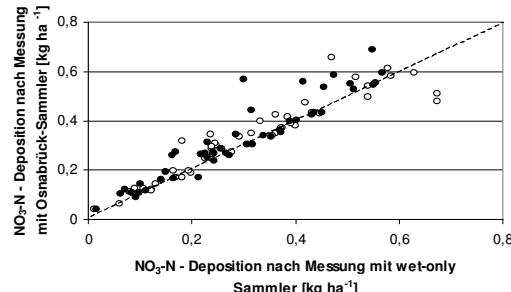


Abbildung 4.32:  
Vergleich der  $\text{NO}_3\text{-N}$ -Deposition, ermittelt mit dem Bulk-Sammler Typ „Osnabrück“ und dem Wet-only Sammler „Eigenbrodt“ in der Freifläche von Holdorf (Kreise) und Sandkrug (Punkte).

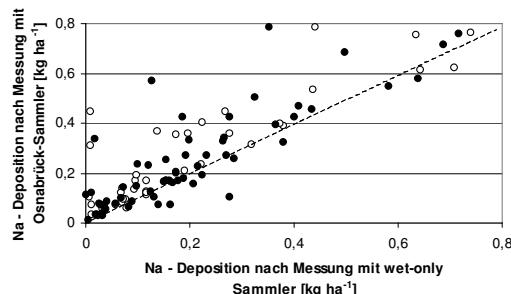


Abbildung 4.33:  
Vergleich der Na-Deposition, ermittelt mit dem Bulk-Sammler Typ „Osnabrück“ und dem Wet-only Sammler „Eigenbrodt“ in der Freifläche von Holdorf (Kreise) und Sandkrug (Punkte).

#### 4.5.3 Draaijers-Faktor (DF)

Der Draaijers-Faktor ist ein empirisch bestimmbarer Parameter, der zur Anwendung des Draaijers-Kronenraumbilanzmodell (Draaijers und Erisman 1995) nötig ist. Die Bestimmung der Gesamtdeposition von  $\text{NH}_4^+$  und  $\text{H}^+$  mit dem Draaijers-Modell beruht auf der Annahme eines Austauschs dieser Ionen im Kronenraum gegen basische Kationen (K, Mg, Ca). Die Verteilung der Aufnahme im Kronenraum zwischen  $\text{NH}_4^+$  und  $\text{H}^+$  wird mit dem sog. Draaijers-Faktor geschätzt. Die Gültigkeit des bisher verwendeten Wertes für die relative Aufnahmeeffektivität sollte im Rahmen dieser Untersuchung geprüft werden. Es wird vermutet, dass der Draaijers-Faktor unter anderem auch von Baumart, Ernährungszustand und Jahreszeit abhängig ist (Draaijers 1999).

Eine kurze Beschreibung eines Verfahrens zur Bestimmung der relativen Aufnahmeeffektivität ist in Draaijers (1999) zu finden: Frisch abgeschnittene Triebe werden in verdünnten (dem Niederschlagswasser ähnlichen)  $\text{NH}_4\text{Cl}$ - bzw.

$\text{HCl}$ -Lösungen geschüttelt. Ein Teil der  $\text{H}^+$ - bzw.  $\text{NH}_4^+$ -Ionen wird gegen andere Kationen ausgetauscht. Da die Kationen auch in Verbindung mit der Exkretion schwacher Säuren aus dem Blatt bzw. Nadel ausgewaschen werden können, wird der Versuch auch mit einer  $\text{NaCl}$ -Lösung durchgeführt, bei der keine Austauschprozesse zu erwarten sind. Der  $\text{NH}_4^+$ - bzw.  $\text{H}^+$ -Austausch ergibt sich aus der Änderung der  $\text{H}^+$ - bzw.  $\text{NH}_4^+$ -Konzentrationen in Vergleich zu einer Blindprobe, korrigiert mit der Konzentrationsänderung in der  $\text{NaCl}$  Lösung. Der gesuchte Draaijers-Faktor ist das Verhältnis zwischen den eingetauschten  $\text{NH}_4^+$ -bzw.  $\text{H}^+$ -Mengen. Der Versuch wird bei zwei Konzentrationsniveaus ( $c = 100$  bzw.  $1000 \mu\text{mol l}^{-1}$ ) durchgeführt.

In jedem Bestand wurde von 6 repräsentativen Bäumen jeweils ein Hauptzweig entfernt. Die Proben wurden in Plastiktüten verpackt und schnell weiterverarbeitet. Die Verletzungen, die durch das Abschneiden entstanden waren, wurden mit Parafilm verschlossen. Anschließend wurden in vierfacher Wiederholung Mischproben aus Teilproben aller Bäume und aller Nadeljahrgänge (bei Nadelbeständen) eines Bestandes zu jeweils ca. 80 g Frischgewicht hergestellt. Somit ergaben sich bei sechs verschiedenen Lösungen und vierfacher Wiederholung insgesamt 24 Proben. Die Teilproben wurden in 1-l-Plastikflaschen eingefüllt (Abbildung 4.34).

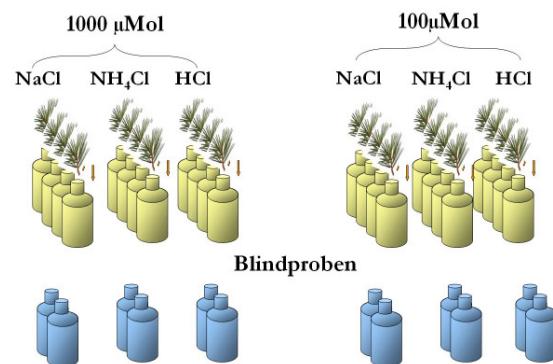


Abbildung 4.34:  
Schema der Bestimmung des Draaijers-Faktors

Es wurden drei verschiedene Lösungen ( $\text{NH}_4\text{Cl}$ ,  $\text{HCl}$ ,  $\text{NaCl}$ ) in zwei Konzentrationen ( $c = 100$  und  $1000 \mu\text{mol l}^{-1}$ ) angesetzt. Um Partikel von den Oberflächen der Blätter bzw. Nadeln zu entfernen, wurden die Flaschen mit deion.  $\text{H}_2\text{O}$  gefüllt und eine Stunde lang vorsichtig geschüttelt. Anschließend wurde das Wasser abgegossen und die Zweige gespült. Die Menge des Wassers, die an den Zweigen haften bleibt, kann aus dem Gewichtsunterschied der Proben vor und nach der Spülung bestimmt werden. Danach wurden die

vorbereiteten Lösungen in die Probeflaschen gefüllt. Jede Lösung wurde zusätzlich als Blindprobe in zwei Flaschen ohne Blatt-/Nadelprobe gefüllt. Die Proben wurden 24 h bei ca.  $80 \text{ min}^{-1}$  geschüttelt.

Anschließend wurde der  $\text{NH}_4^+$ -Gehalt, der pH-Wert sowie alle quantitativ bedeutsamen Ionen in den Lösungen gemessen. Die Zweige wurden bei  $60^\circ\text{C}$  getrocknet und die trockene Blatt- bzw. Nadelmasse bestimmt.

#### 4.6 Sickerwasser

Die Sickerwasserbeprobung erfolgte mittels keramischer P80-Saugkerzen (Meiwes et al. 1984), die mit kontinuierlichem Unterdruck von ca. 0,4 bar betrieben werden. Die Kerzen eignen sich für die Bestimmung der quantitativ wichtigen Ionen in der Bodenlösung (Expert Panel on Soil 2002). Am Standort Augustendorf (AUKIW1) wurden jeweils 6 Wiederholungen in 4 Tiefenstufen (unter Humusaufklage, 10, 60, 250 cm Tiefe) eingesetzt. An den Standorten Holdorf und Sandkrug befanden sich zur Sickerwasser-Beprobung jeweils 8 Saugkerzen in 1,2 m Tiefe.

Die Beprobung erfolgte wöchentlich mit einer Zusammenfassung der Proben zu Monatsmischproben. Eine räumliche Mischung fand nicht statt. Wie bei den Niederschlagsmessungen fand bei der Probennahme eine Qualitätskontrolle hinsichtlich der quantitativen und qualitativen Verwertbarkeit der Proben statt.

#### 4.7 Charakterisierung der Bestände

##### 4.7.1 Bestandesstrukturparameter

Grundlage der Beschreibung der Bestandesstrukturen bildete die Erhebung einzelbaumbezogener Daten zu Baumhöhe, Höhe des Kronenansatzes, Ansatz der Lichtkrone sowie dem Brusthöhen Durchmesser (BHD).

Baumzwiesel, die sich unterhalb der Messebene (1 m Auffanghöhe der Niederschlagssammler) verzweigen, wurden als einzelne Baumindividuen vermessen. Hochzwiesel, die sich oberhalb der Messebene verzweigen, wurden als ein Baum gewertet. Alle gemessenen Bäume wurden mit einer permanenten Baumnummer markiert.

Auf den Messflächen einzeln vorkommende Sträucher und Baumarten-Verjüngung (< 4 cm BHD) wurden nach Art bestimmt und höhengemessen, wenn sie die Messebene (1 m Auffanghöhe der Niederschlagssammler) überstiegen. Die Höhenmessung erfolgte abgerundet in 0,1-m-Stufen. Jedem Individuum wurde eine Baumnummer zugewiesen.

Innerhalb der Boden-Dauerbeobachtungsfläche Augustendorf (AUKIW1) wurde parallel ein weiteres Sammlermessfeld (AUKIW2) installiert. Dort wurden Messungen der Kronentraufe ohne den Einfluss der Strauchschicht wiederholt. Dazu wurde die Strauchschicht auf einer Fläche von  $15 \cdot 20 \text{ m}^2$  freigeschnitten.

Zur Auswertung der einzelbaumweise erhobenen Daten zu Bestandesparametern wurden folgende ertragskundliche Inventurgrößen berechnet:

- mittlerer Durchmesser und Mittelhöhe, sowie Standardabweichungen und Variationskoeffizienten
- Bestandeshöhenkurven als Beziehung zwischen BHD und Baumhöhe (Akca 1987). Bäume mit Kronenbrüchen (Fichte, Kiefer) wurden nicht in die Berechnung der Bestandeshöhenkurve einbezogen
- Bestandesgrundfläche aus der Summe aller Stammquerschnitte (BHD) der Untersuchungseinheit
- Grundflächenzentralstamm DZ als der Median der Grundflächenverteilung der Einzelbäume (Akca 1987). Die Höhe des Grundflächenzentralstamms (HZ) wird über dem entsprechenden Durchmesser aus der Bestandeshöhenkurve abgelesen.
- Die Oberhöhe  $H_O$  (nach Weise) als Mittelhöhe der 20 % stärksten Stämme (Akca 1987). Sie wird über dem entsprechenden Durchmesser aus der Bestandeshöhenkurve abgelesen.
- Kronenstrukturanalysen: Mittlere Kronenlänge, mittlerer Lichtkronenansatz sowie deren Standardabweichungen (als Rauhigkeitsparameter der Krone)

Zur Herleitung von Bestockungsgrad, Leistungsklasse und Holzvorrat wurden folgende Ertragstafeln verwendet (Ertragstafeln wichtiger Baumarten, vgl. Schober, 1987):

- |             |  |
|-------------|--|
| • Kiefer    | Wiedemann 1943, mäßige Durchforstung                       |
| • Fichte    | Wiedemann 1936/42, mäßige Durchforstung                    |
| • Douglasie | Bergel 1985, mäßige Durchforstung, mittleres Ertragsniveau |
| • Eiche     | Jüttner 1955 mäßige Durchforstung                          |
| • Birke     | Schwappach 1903/29   |

##### 4.7.2 Hemisphärische Kronenfotos

Hemisphärische Kronenfotos können das Kronendach bezüglich seiner Dichte und Homogenität und seiner Einflüsse auf die Interzeption beschrei-

ben. Für jeden Untersuchungsbestand wurden 30 bis 33 hemisphärische Kronenfotos mit einem 180°-Fisheye-Objektiv angefertigt (Wagner und Nagel 1992). Fotopunkte lagen über jedem der 15 Niederschlagssammler sowie in einem mindestens 15 Bilder umfassenden Vergleichskollektiv (Sammler-Zwischenräume). Aus den Fotos wurden die Parameter Überschirmungsgrad und diffuse Strahlung (DIFFSF) ermittelt. Der Überschirmungsgrad beschreibt den überdeckten Himmelsanteil im 20°-Öffnungswinkel.

DIFFSF gibt den prozentualen Anteil der am Aufnahmepunkt vorhandenen diffusen Himmelsstrahlung im Vergleich zur Freifläche an. Der Öffnungswinkel beträgt 180°.

Die Werte von DIFFSF werden nicht so stark wie der Überschirmungsgrad von einzelnen Bestandeslücken beeinflusst und geben daher einen Gesamtüberblick über die Überschirmungssituation in den Versuchsbeständen. Aus DIFFSF lässt auf der Grundlage des Lambert-Beer-Gesetzes der Blattflächenindex (LAI) schätzen:

$$LAI = \frac{\ln(DIFFSF)}{-ki}$$

mit  $ki$  Klumpungsindex [-]

Der Klumpungsindex  $ki$ , der die Ungleichverteilung der Belaubung erfasst, wurde für alle Bestände mit 0,5 geschätzt.

#### 4.7.3 Ernährung der Bestände

Die Ernährung der Waldbäume ist für das Depositionsgeschehen von Bedeutung, da sie einerseits die Vitalität der Bestände, andererseits die Austauschvorgänge im Kronenraum beeinflussen. Die Vitalität der Bestände steuert das Wachstum und damit für die Deposition wichtige Größen wie Rauhigkeit und Abscheidungsoberfläche. Für die Austauschvorgänge im Kronenraum wie Leaching oder Aufnahme ist ebenfalls der Nährlementstatus von Bedeutung, da dieser die Höhe und Richtung der Prozessraten steuert (z.B. Kompensationspunkt für  $\text{NH}_3$ -Deposition/Emission).

Die Ernährung der Untersuchungsbestände wurde im Sommer 2001 (Eichenbestände) bzw. Winter 2001/2002 durch eine Beprobung der Assimilationsorgane (Blätter, Nadeln) festgestellt. Es wurden auf allen Standorten jeweils 6 Bäume der Baumklasse 1 oder 2 beprobt, am Standort AUFDA4 jeweils 6 Fichten und 6 Douglasien. In den Kiefernbeständen wurden Äste (2. Quirl) aus der Lichtkrone geerntet und der 1. und 2. Nadeljahrgang analysiert. Bei den Fichten wurden Äste aus dem 7. Quirl beprobt und die Nadeljahrgänge

1 bis 5 analysiert. Von den Douglasien wurde der 4. Quirl beprobt und 3 Nadeljahrgänge analysiert. Bei den Eichen wurden Äste aus der Lichtkrone geerntet. Die Proben wurden mittels Astscheren gewonnen.

#### 4.8 Datenerfassung

Die Erfassung und -haltung der Messdaten zur Meteorologie, Deposition, Bodenlösung und Passiv-Sammler der Standorte Augustendorf und Herrenholz erfolgte in der Datenbank ECO (Niedersächsische Forstliche Versuchsanstalt), in der neben den reinen Maßzahlen auch die Methodik der Probensammlung und der chemischen Analyse verwaltet wird. Für die Standorte Holdorf und Sandkrug wurden die Messdaten mit eigens erstellten Routinen des Programm paktes MS-EXCEL bei der Landwirtschaftskammer Weser-Ems gesammelt und verarbeitet.

#### 4.9 Literatur

- Akca A (1987) Leitfaden für Dendrometrie und Bestandesinventur. Frankfurt am Main, Sauerländer.
- Bächlin W, Lohmeyer A, Kuhlbusch T, Dreiseidler A, Baumbach G, Giesen K-P, Heits B, Müller WJ, Klasmeier E, Schmidt H (2003) Aerosolbudget in einem landwirtschaftlich geprägten Gebiet in Niedersachsen. Schlussbericht Projekt 1890 des Niedersächsischen Landesamtes für Ökologie, Hannover. Radebeul, Ingenieurbüro Lohmeyer, 107 S.
- Blatter A, Neftel A. (1990) Vergleich dreier Messtechniken zur Bestimmung von Ammoniakemissionen und -immissionen. KTBL (Hrsg.) Ammoniak in der Umwelt. Sekt. 3. 1-21. Darmstadt.
- Dämmgen U (1996) Kritische Düsen zur Gewährleistung konstanter Volumenströme – Entwicklung einer Bauart mit einstellbarem Durchsatz. Landbauforsch Völkenrode SH 170, 39-42.
- Dämmgen U (2001a) Konzentrationsbestimmungen mit Denufern. In: Kuratorium für Technik und Bauwesen in der Landwirtschaft (Hrsg.) Messmethoden für Ammoniak-Emissionen. KTBL, Darmstadt, S. 49-60.
- Dämmgen U (2001b) Konzentrationsbestimmungen Passiv-Sammlern. In: Kuratorium für Technik und Bauwesen in der Landwirtschaft (Hrsg.) Messmethoden für Ammoniak-Emissionen. KTBL, Darmstadt, S. 49-60.
- Dämmgen U, Küsters A (1992) Vergleich von Depositionssammlern der Typen 'Osnabrück' und 'Rotenkamp'. Schlussbericht für das Niedersächsische Landesamt für Wasser und Abfall, Hildesheim. Braunschweig, 37 S.
- Dämmgen U, Mohr K, Meesenburg H (2005) Die Bestimmung von Flüssen reaktiver Stickstoff-Spezies in hoch mit Stickstoff belasteten Wald-Ökosystemen – methodische Grundlagen, Randbedingungen und Konzept der Messungen und Modellierungen im ANSWER-Projekt. Landbauforsch Völkenrode SH XXX, YY-ZZ.

- Draaijers GPJ (1999) Canopy Budget Models applicable for use within the Intensive Monitoring Programme. In: FIMCI Manual IV Measurement of Deposition and Air Pollution (Annex 5)
- Draaijers GPJ, Bleeker A, van der Veen D, Erisman JW, Möls H, Geusenbroek M (2001) Field intercomparison of throughfall, stemflow and precipitation measurements performed within the framework of the Pan\_European Intensive Monitoring Program of EU/ICP forests. TNO rep. R 2001/140.
- Draaijers GPJ, Erisman JW (1995) A canopy budget model to assess atmospheric deposition from throughfall measurements. *Water Air Soil Pollut* 85, 2253-2258.
- Expert Panel on Soil (2002) Submanual on soil solution collection and analysis. Programme Coordinating Centre, Federal Research Centre for Forestry and Forest Products (BFH) (Hrsg.): Manual on methods and criteria for harmonized sampling, assessment, monitoring and analysis of the effects of air pollution on forests. United Nations Economic Commission for Europe, Convention on Long-range Trans-boundary Air Pollution, International Co-operative Programme on Assessment and Monitoring of Air Pollution Effects on Forests, Part III, 111-161.
- Ferm M (1991) A sensitive diffusional sampler. Göteborg, Swedish Environmental Research Institute. Report L91-172, 12 S.
- Hering SV, Lawson DR, Allegrini I, Febo A, Perrino C, Possanzini M, Sickles JE, Anlauf KG, Wiebe A, Appel BR, John W, Ondo J, Wall S, Braman RS, Sutton R, Cass GR, Solomon PA, Eatough NL, Ellis EC, Grosjean D, Hicks BB, Womack JD, Horrocks J, Knapp KT, Ellestad TG, Paur RJ, Mitchell WJ, Plesant M, Peake E, Mac Lean A, Pierson WR, Brachachzek W, Schiff HI, Mackay GI, Spicer CW, Stedman DH, Winer AM, Biermann HW, Tuazon EC (1988) The nitric acid shootout: field comparison of measurement methods. *Atmos Environ* 22, 1519-1539.
- Hoppe J, Schulze A (1997) ECO - Datenbank zur Stoffbilanzierung in Waldökosystemen, Teil 1: Datenbankstruktur und Virtuelle Tabellen. Ber. Forschungszentrum Waldökosysteme B54, 124 S.
- IVL (2002) Diffusive samplers for air pollution monitoring. Product information, Göteborg, Swedish Environmental Research Institute IVL.
- Kirchner M, Braeutigam S, Ferm M, Haas M, Hangartner M, Hofschreuder P, Kasper-Giebl A, Römmelt H, Striedner J, Terzer W, Thöni L, Werner H, Zimmerling R (1999) Field intercomparison of diffusive samplers for measuring ammonia. *J Environ Monit* 1, 259-265.
- Meesenburg H, Meiwes KJ, Schulze A, Rademacher P (1997) Bodendauerbeobachtungsflächen auf forstlich genutzten Flächen (BDF-F). In: Kleefisch B, Kues J (Hrsg.) Das Bodendauerbeobachtungsprogramm von Niedersachsen: Methodik und Ergebnisse, Arb-H Boden 2/1997, 77-95.
- Meesenburg H, Mohr K (2005) Die Untersuchungsstandorte im ANSWER-Projekt. *Landbauforsch Völkenrode SH XX, YY-ZZ*.
- Meesenburg H, Mohr K, Dämmgen U, Schaaf S, Meiwes KJ, Horváth B (2005) Stickstoff-Einträge und – Bilanzen in den Wäldern des ANSWER-Projekts – eine Synthese. *Landbauforsch Völkenrode SH XX, YY-ZZ*.
- Meiwes KJ, Hauhs M, Gerke H, Asche N, Matzner E, Lammersdorf N (1984) Die Erfassung des Stoffkreislaufes in Waldökosystemen: Konzept und Methodik. *Ber Forschungszentrum Waldökosysteme/Waldsterben* 7, 68-142.
- Mohr K (2001) Stickstoffimmissionen in Nordwestdeutschland - Untersuchungen zu den ökologischen Auswirkungen auf Kiefernforsten und Möglichkeiten der Bioindikation. Dissertation Universität Oldenburg. <http://www.bis-uni.oldenburg.de>, 182 S.
- Mohr K, Meesenburg H, Dämmgen U (2005a) Die Stickstoff-Belastung von Waldökosystemen – Wirkungen, Wirkungspfade, offene Fragen, Gesamtkonzept. *Landbauforsch Völkenrode SH XXX, YY-ZZ*.
- Mohr K, Schaaf S, Horváth B, Meesenburg H, Dämmgen U (2005b) Stoff- und Energieflüsse der im ANSWER-Projekt untersuchten Waldbestände. *Landbauforsch Völkenrode SH XX, YY-ZZ*.
- NLÖ (1993) Depositionsmessnetz Niedersachsen. Hannover, Niedersächsisches Landesamt für Ökologie (Hrsg.). 40 S.
- Norm VDI 2461 Bl. 1 (1974): Messung gasförmiger Immissionen. Messen der Ammoniakkonzentration. Indophenolverfahren. 4 S.
- Norm VDI 3786, Bl. 3 (1982): Meteorologische Messungen für Fragen der Luftreinhaltung: Messen der Lufttemperatur. Düsseldorf, Verein Deutscher Ingenieure.
- Peake E (1985) A Preliminary Report on the Design and Testing of the KAPS (Kananakis Atmospheric Pollutant Sampler) for the Collection of Acidic and Basic Gases and Fine Particles. Document 0012e/July 8/85. Typskript Universität Calgary.
- Peake E, Legge A (1987) Evaluation of methods used to collect air quality data at remote and rural sites in Alberta, Canada, Proc. 1987 EPA/APCA symposium on measurements of toxic and related air pollutants. APCA, Pittsburgh, 174-182.
- Schaaf S, Dämmgen U, Mohr K, Meesenburg H (2005) Witterung, Spuren- und Schwebstaub-Inhaltsstoff-Konzentrationen in der Umgebungsluft und in den Beständen des ANSWER-Projekts. *Landbauforsch Völkenrode SH XX, YY-ZZ*.
- Schaaf S, Meesenburg H (2005) Modellierung der Stoffflüsse in Waldbeständen im ANSWER-Projekt. *Landbauforsch Völkenrode SH XX, YY-ZZ*.
- Thöni L, Seitker E, Blatter A, Neftel A (2003) A passive sampling method to determine ammonia in ambient air. *J Environ Monit BAND*, 96-99.
- UMS (2000) Produktinformation Niederschlagssammler LWF RS200. Fa. UMS, München.
- Wagner S, Nagel J (1992) Ein Verfahren zur PC-gesteuerten Auswertung von Fish-eye-Negativfotos für Strahlungsschätzungen. *Allg Forst Jagd Z* 163, 110-116.
- Wiebe HA, Anlauf KG, Tuazon EC, Winer AM, Biermann HW, Appel BR, Solomon PA, Cass GR, Ellestad TG, Knapp KT, Peake E, Spicer CW, Lawson DR (1990) A comparison of measurements of at-

- mospheric ammonia by filter packs, transition flow reactors, simple and annular denuders and Fourier transform infrared spectroscopy. *Atmos Environ* 24A, 1019-1028.
- Zimmerling R (2000) Die Qualität der Konzentrationsmessungen mit Passiv-Sammeln. Ergebnisse methodischer Untersuchungen. *Landbauforsch Völkenrode* SH 213, 129-133.
- Zimmerling R, Dämmgen U, Behrens U (2000) Konzentrationen versauernd und eutrophierend wirkender Spurengase und Aerosol-Bestandteile in Nordost-Brandenburg. *Landbauforsch Völkenrode* SH 213, 43-93.
- Zimmerling R, Dämmgen U, Küsters A (1996a) Systematische Untersuchungen zur Charakterisierung des Denuder-Filter-Systems KAPS. In: Dämmgen U. (Hrsg.) Untersuchungen zum chemischen Klima in Südstniedersachsen, *Landbauforsch Völkenrode* SH 170, 73-88.
- Zimmerling R, Dämmgen U, Küsters A, Wolff D (1996b) Konzentrationen von Luftinhaltsstoffen. II. non-criteria pollutants (N-, S- und Cl-Spezies). *Landbauforsch Völkenrode* SH 170, 222-273.
- Zimmerling R, Dämmgen U, Küsters A (1997) The Determination of Concentrations of Reactive S- and N-Species for Flux Measurements in the Lower Atmosphere using Ion Chromatography and Photometry. In: Kettrup A, Weiss J, Jensen D (Hrsg.) Spurenanalytische Bestimmung von Ionen. Ionenchromatographie und Kapillarelektrophorese. Landsberg, ecomed, S. 87-93.

## 5 Modellierung der Stoffflüsse in Waldbeständen im ANSWER-Projekt

S. Schaaf<sup>1</sup>, H. Meesenburg<sup>2</sup>

### 5.1 Die Bestimmung der Flüsse reaktiver Stickstoff-Spezies in Augustendorf mit Widerstandsmodellen

Bei der Deposition von Luftinhaltsstoffen und der Freisetzung von Gasen handelt es sich um Austauschprozesse an der Grenzfläche zwischen Vegetation/Boden und Atmosphäre. Sie vollziehen sich in der sogenannten atmosphärischen Grenzschicht im Wesentlichen durch Turbulenzkörper, die Materie und Energie transportieren können (siehe z.B. Stull 1994). Größe und Lebensdauer dieser Wirbel werden maßgeblich von den Windverhältnissen, der Rauhigkeit des Bestandes sowie von den atmosphärischen Schichtungsverhältnissen bestimmt.

Triebkraft der Austauschvorgänge sind Potenzialdifferenzen (Konzentrationsdifferenzen), die sich durch den Transport ausgleichen. Für den Zusammenhang zwischen Potenzialdifferenzen, Flüssen und Widerständen werden ähnliche Verhältnisse wie beim elektrischen Strom beobachtet.

Die Berechnung des Flusses ( $F$ ) ergibt sich in Analogie zum Ohmschen Gesetz der Elektrizitätslehre wonach der elektrische Strom ( $I$ ) aus dem Quotienten von Potenzialdifferenz (der Spannung  $U_1 - U_2$ ) und dem ohmschen Widerstand ( $R$ ) berechnet wird. Im Analogiemodell wird dann der elektrische Strom durch den atmosphärischen Fluss ersetzt, so dass der elektrischen Spannung eine Konzentrationsdifferenz ( $\rho_1 - \rho_2$ ) und dem ohmschen Widerstand ein Transportwiderstand ( $R_{\text{Atmosphäre}} + R_{\text{Bestand}}$ ) zugeordnet werden kann:

$$I = \frac{U_1 - U_2}{R} \Rightarrow F = \frac{\rho_1 - \rho_2}{R_{\text{Atmosphäre}} + R_{\text{Bestand}}}$$

Zur Stoffflussbestimmung für das WaldÖkotop am Standort Augustendorf im Rahmen des ANSWER-Projekts<sup>3</sup> wird ein Widerstandsmodell verwendet, das auf dem sogenannten big-leaf-Konzept (Hicks et al. 1987, Erisman et al. 1994) basiert. Vertikale Stoffflüsse zwischen Vegetation/Boden und Atmosphäre resultieren hiernach als Ausgleichsbewegung zwischen unterschiedlichen Potenzial- bzw. Konzentrationsniveaus. Dabei werden diese von einem Transportwiderstand, der die turbulenten und laminaren Transportphänomene der Atmosphäre und des Bestandes repräsentiert, gesteuert.

Die beiden Potenziale bzw. Konzentrationen werden im Modell für 2 Höhenstufen benötigt. In der Regel wird die obere Konzentration oberhalb des Bestandes gemessen; als untere Konzentration wird die in unmittelbarer Nähe der konzeptionellen Hüllfläche, des sog. *big leaf*, herrschende angesehen. Diese Konzentration wird auch als Kompensationspunkt bezeichnet, sofern sie von Null verschieden ist.

Ausgleichsvorgänge zwischen den Niveaus sind um so intensiver, je geringer der Widerstand von Atmosphäre und Bestand sind und je größer die Potenzialdifferenz ist. Dabei spielen die atmosphärischen Schichtungsverhältnisse, die über den *aerodynamischen Widerstand* erfasst werden, eine entscheidende Rolle, da sie Vertikalbewegungen beschleunigen (labile Schichtung) oder auch dämpfen können (stabile Schichtung). Neben den atmosphärischen turbulenten Eigenschaften können auch laminare Strömungsverhältnisse im unteren Teil der atmosphärischen Grenzschicht den Transport von Spurengasen und Energie beeinflussen. Diesem Phänomen wird mithilfe des sogenannten (*quasi-)laminaren Widerstandes* Rechnung getragen.

<sup>1</sup> Bundesforschungsanstalt für Landwirtschaft, Institut für Agrarökologie, Bundesallee 50, 538116 Braunschweig, stefan.schaaf@fal.de

<sup>2</sup> Niedersächsische Forstliche Versuchsanstalt, Grätzelstr. 2, 37079 Göttingen

<sup>3</sup> Zum Konzept des ANSWER-Projekts siehe Mohr et al. (2005a) und Dämmgen et al. (2005a), zu den Standorten Meesenburg und Mohr (2005), zu den verwendeten Messverfahren Dämmgen et al. (2005b), zu den Ergebnissen Schaaf et al. (2005), Mohr et al. (2005b) sowie Meesenburg et al. (2005).

Die Spurengasaufnahme durch die Vegetation über die Stomata (interne Blattoberflächen) oder Cuticula (externe Blattoberflächen) wird von zahlreichen meteorologischen und auch Bodenparametern wie Strahlung, Temperatur, Luft- und Bodenfeuchte etc. beeinflusst. Dies wird im Modell über den sogenannten *Bestandeswiderstand*, erfasst.

Der *aerodynamische* und der *quasi-laminare Widerstand* werden zum einen aus direkten Impuls- und Wärmefluss-Messungen gewonnen und zum anderen im Modell iterativ aus Windgeschwindigkeits- und Temperaturmessungen unter Berücksichtigung der atmosphärischen Schichtungsverhältnisse bestimmt.

Der *Bestandeswiderstand*, der sich aus mehreren Teilwiderständen zusammensetzt, wird aus der Energiebilanz des untersuchten Ökotops abgeleitet.

Zur Bestimmung der Konzentrationen oberhalb des Bestandes werden Messungen mit Denunder-Filter-Sammlern herangezogen. Die Konzentrationen werden wegen der großen Unterschiede der Widerstände, der Atmosphärenchemie und der biologischen Aktivität für die Tagstunden und die Nachtstunden getrennt bestimmt. Die Kompensationspunkte, insbesondere für  $\text{NH}_3$ , werden im Modell parametrisiert.

Alle Modellrechnungen werden auf der Basis von 30-Minuten-Mitteln durchgeführt. Eingesetzt wurde das Soil-Vegetation-Atmosphere-Transfer-Modell (SVAT-Modell) PLATIN.

### 5.1.1 Die Bestimmung der trockenen Deposition von Gasen mit Hilfe von PLATIN

Das verwendete SVAT-Modell ist eine Weiterentwicklung des von Grünhage und Haenel (1997) beschriebenen Widerstandsmodells PLATIN (PLAnt-ATmosphere INteraction). Es ist ein eindimensionales Ökotop-Modell, das die Eigenschaften von Boden und Bestand in einem *big leaf* abbildet. Es erlaubt die Simulation des Austausches von Energie und Spurenstoffen zwischen Vegetation/Boden und der Atmosphäre. Das Modell wurde für verschiedene Ökosysteme (Grünland, Ackerland und Forst) anhand von direkten Messungen (Eddy-Kovarianz-, Gradient- und dynamische Kammermessungen) validiert und mit Simulationsergebnissen anderer Modelltypen verglichen (Falge et al. 2004).

Die durchgeführten Simulationen des Energie- und Spurengas-Transfers werden unter folgenden Annahmen durchgeführt:

- Quellen- und Senkenverteilung im Bestand werden durch die Modellvorstellung eines großen Blattes (*big leaf*) repräsentiert

- der Bestand ist ein Ökotop und nur nach  $z$  gegliedert; er ist horizontal homogen (horizontale Flüsse sind Null oder addieren sich zu Null)
- Quellen und Senkenfreiheit in der Atmosphäre oberhalb des Bestandes
- Höhenunabhängigkeit der Vertikalfüsse oberhalb des Bestandes (Prinzip des “constant flux layer”)

Das Modell berechnet aus dem Verhältnis von Konzentrationsdifferenzen und der Kombination von Transportwiderständen der Atmosphäre und des Bestandes vertikale Flüsse luftgetragener Stoffe:

$$F_A = -\frac{\rho_A - \rho_{\text{ccan}, A}}{R_{\text{ah}} + R_{b, A} + R_{c, A}}$$

mit	$F_A$	vertikaler Stofffluss des Luftinhaltsstoffs A
	$\rho_A$	Konzentration des Stoffes A in der Atmosphäre oberhalb des Bestandes
	$\rho_{\text{ccan}, A}$	Bestandes-Kompensationspunkt des Stoffes A
	$R_{\text{ah}}$	turbulenter atmosphärischer (aerodynamischer) Transportwiderstand
	$R_{b, A}$	Transportwiderstand der quasilaminaren Grenzschicht
	$R_{c, A}$	Bestandeswiderstand

In Abbildung 5.1 ist der schematische Aufbau des verwendeten Widerstandmodells als Blockschaltbild dargestellt.

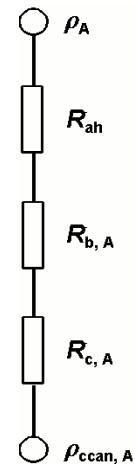


Abbildung 5.1:  
Schematische Darstellung des verwendeten Widerstandsmodells zwischen einem atmosphärischen Quellen- ( $\rho_A$ ) und einem Senkenpotenzial ( $\rho_{\text{ccan}, A}$ ) auf Bestandesebene (*big leaf*): aerodynamischer Widerstand  $R_{\text{ah}}$ , quasi-laminarer Widerstand  $R_{b, A}$ , Bestandeswiderstand  $R_{c, A}$ .

Auf Bestandesebene können die Flüsse mehrerer Teilsysteme (Abbildung 5.2), wie die Stoffflüsse in die Stomata bzw. Substomata (hier bidirektional als Deposition bzw. Emission) und Cuticula von Flüssen in den Boden oder auf externe Blattoberflächen (hier unidirektional als Deposition) unterschieden und quantitativ erfasst werden. Dies geschieht durch die Aufspaltung des Bestandewiderstandes  $R_{c,A}$  in die Teilwiderstände  $R_{\text{stom},A}$  (Stomatawiderstand),  $R_{\text{mes},A}$  (Mesophyllwiderstand),  $R_{\text{cut},A}$  (Cuticula-Widerstand),  $R_{\text{ext},A}$  (Oberflächenwiderstand) sowie  $R_{\text{Boden},A}$  (Bodenwiderstand) unter Berücksichtigung des stomatären ( $\rho_{\text{stom},A}$ ) und Oberflächenpotenzials (Symbol für „Erde“). Dabei sind definitionsgemäß negative Flüsse Depositionen und positive Flüsse Emissionen.

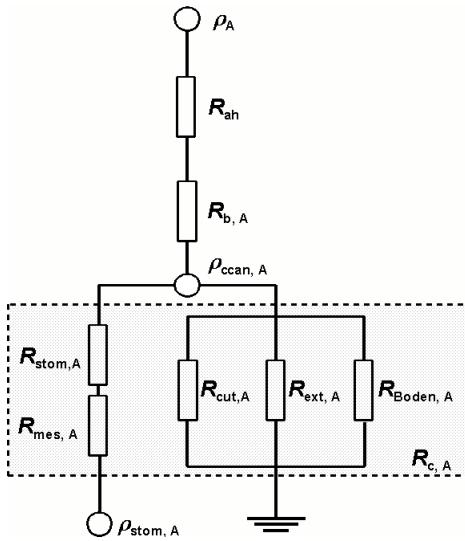


Abbildung 5.2:  
Schematische Darstellung des verwendeten Widerstandsmodells mit Aufgliederung des Bestandewiderstand  $R_{c,A}$  in die Teilwiderstände unter der Berücksichtigung des Stomata- ( $\rho_{\text{stom},A}$ ) und Oberflächenpotenzials (Symbol „Erde“) und des Stomatawiderstandes ( $R_{\text{stom},A}$ ), des Mesophyllwiderstandes ( $R_{\text{mes},A}$ ), des Cuticula-Widerstandes ( $R_{\text{cut},A}$ ), des Oberflächenwiderstandes ( $R_{\text{ext},A}$ ) sowie des Bodenwiderstandes ( $R_{\text{Boden},A}$ ).

### 5.1.2 Berechnung des aerodynamischen Widerstands

In Anlehnung an übliche Verfahren (z.B. Sellers et al. 1985) wird der aerodynamische Widerstand über Wald unter Berücksichtigung des roughness-sublayer-Effekts als gegenüber dem nach Monin und Obukhov (1954) zu berechnenden halbiert angesetzt:

$$R_{\text{ah}} = \frac{1}{2} \cdot \frac{\ln\left(\frac{z_m - d}{z_{0m}}\right) - \Psi_h\left(\frac{z_m - d}{L}\right) + \Psi_h\left(\frac{z_{0m}}{L}\right)}{\kappa \cdot u_*}$$

mit	$\kappa$	von-Kármán-Konstante
	$d$	Nullebenen-Verschiebung
	$z_m$	Messhöhe der Temperatur bzw. Windgeschwindigkeit
	$z_{0m}$	Rauhigkeitslänge für Impulsfluss
	$\Psi_h$	atmosphärische Stabilitätsfunktion (vgl. Haenel 1993, 1996)
	$L$	Monin-Obukhov-Länge
	$u_*$	Schubspannungsgeschwindigkeit

Die Schubspannungsgeschwindigkeit  $u_*$  lässt sich aus der horizontalen Windgeschwindigkeit  $u$  unter Berücksichtigung der Stabilitätsverhältnisse der Atmosphäre ermitteln:

$$u_* = \frac{\kappa \cdot u}{\ln\left(\frac{z_m - d}{z_{0m}}\right) - \Psi_m\left(\frac{z_m - d}{z_{0m}}\right) + \Psi_m\left(\frac{z_{0m}}{L}\right)}$$

mit	$\Psi_m$	atmosphärische Stabilitätsfunktion (vgl. Haenel 1993, 1996)
-----	----------	---

Aus der Schubspannungsgeschwindigkeit wird der atmosphärische Impulsfluss  $F_m$  berechnet:

$$F_m = -u_*^2$$

Es wird davon ausgegangen, dass bei einer maximalen Bestandeshöhe von ca. 19 m die Messhöhe von 25 m noch innerhalb des roughness-sublayer liegt, dessen Obergrenze in der Regel mit dem zwei- bis zweieinhalbtenfachen der Bestandeshöhe angesetzt wird (vgl. Cellier und Brunet 1992).

Die Bestimmung der Monin-Obukhov-Länge  $L$  als Kennzahl für die atmosphärischen Schichtungsverhältnisse erfolgt gemäß

$$L = -\frac{T_a \cdot u_*^3}{\kappa \cdot g \cdot H}$$

mit	$T_a$	Lufttemperatur oberhalb des Bestandes
	$H$	fühlbarer Wärmestrom
	$g$	Gravitationsbeschleunigung

Obige Gleichung setzt die Kenntnis des fühlbaren Wärmestroms  $H$  zwischen Bestand und Atmosphäre und der Schubspannungsgeschwindigkeit  $u_*$  voraus. Beide Größen werden zum einen mittels Ultraschallanemometer-Messung

(Eddy-Kovarianz-Verfahren) bestimmt, zum anderen modelliert. Dabei wird  $u_*$  im Modell unter Berücksichtigung der in 25 m Höhe gewonnenen Daten zur Windgeschwindigkeit und Lufttemperatur iterativ bestimmt.

Der fühlbare Wärmestrom  $H$  wird als Restglied der Energiebilanzgleichung berechnet:

$$R_{\text{net}} = H + \lambda E + G$$

mit  $R_{\text{net}}$  Nettostrahlung  
 $\lambda E$  latente Wärme  
 $G$  Bodenwärmestrom

Dabei ist die Nettostrahlung  $R_{\text{net}}$  aus direkten Messungen (siehe Dämmgen et al. 2005) über dem Bestand zugänglich, während die latente Wärme  $\lambda E$  und der Bodenwärmestrom  $G$  parametrisiert werden müssen (siehe Kapitel 5.1.1.3).

### 5.1.3 Die Berechnung der latenten Wärme

Die Bestimmung der latenten Wärme  $\lambda E$  erfolgt über die Penman-Monteith-Näherung (vgl. Monteith 1965):

$$\lambda E = \frac{s(R_{\text{net}} - G) + \rho_L \cdot c_p \cdot \frac{VPD}{R_{\text{ah}} + R_{b,h}}}{s + \gamma \cdot \frac{R_{\text{ah}} + R_{b,H_2O} + R_{c,H_2O}}{R_{\text{ah}} + R_{b,h}}}$$

mit  $\rho_L$  Luftdichte  
 $c_p$  spez. Wärmekapazität der Luft  
 $VPD$  aktuelles Wasserdampfsättigungsdefizit  
 $s$  Steigung der Dampfdruckkurve  
 $\gamma$  Psychrometer-Konstante  
 $R_{b,A}$  quasi-laminarer Transportwiderstand für Wärme  
 $\lambda$  Verdampfungswärme  
 $\lambda \approx (2.501 - 0.00237 t_a) \cdot 10^6 \text{ J kg}^{-1}$   
 $t_a$  Lufttemperatur in °C

Aus der Kenntnis der latenten und Verdampfungswärme kann die Evapotranspirationsrate  $ET$  für ein bestimmtes Zeitintervall  $\Delta t$  bestimmt werden:

$$ET = \frac{\lambda E}{\lambda} \cdot \Delta t$$

Der in der Energiebilanzgleichung und in der Penman-Monteith-Beziehung benötigte Bodenwärmestrom  $G$ , der in Abhängigkeit von der Nettostrahlung  $R_{\text{net}}$  und der Bestandesentwicklung ( $\beta$ -Funktion) steht, wird wie folgt parametrisiert (Brutsaert 1984):

$$G = 0,4 \cdot \beta \cdot R_{\text{net}} \quad (R_{\text{net}} \geq 0)$$

$$G = 0,5 \cdot R_{\text{net}} \quad (R_{\text{net}} < 0)$$

mit  $\beta = e^{-c_{\text{LAI}} \cdot LAI}$   $\beta$ -Funktion  
 $c_{\text{LAI}}$  Extinktionskoeffizient des Bestandes (Löpmeier, 1983)  
 $LAI$  Blattflächenindex

Eine weitere Möglichkeit die latente Wärme bzw. die Evapotranspiration des Ökosystems abzuschätzen und damit auch die Penman-Monteith-Beziehung zu verifizieren, stellt die Lösung der Wasserbilanzgleichung nach  $ET$  dar:

$$N_F - ET - GR - \Delta BW = 0$$

mit  $N_F$  Freilandniederschlag  
 $ET$  Evapotranspiration  
 $GR$  Sicherung / Grundwasserneubildung  
 $\Delta BW$  Bodenwasseränderung

Diese Alternative kann hier jedoch aufgrund der fehlenden Komponente für die Grundwasserneubildung  $GR$  im Modell nicht angewandt werden.

### 5.1.4 Widerstand der quasi-laminaren Grenzschicht

Der Widerstand der quasi-laminaren Grenzschicht für ein Gas  $R_{b,A}$  beschreibt im Unterschied zum turbulenten atmosphärischen Widerstand  $R_{\text{ah}}$  den Austauschprozess in unmittelbarer Umgebung des big-leafs. Nach Hicks et al. (1987) lässt sich dieser Widerstand wie folgt berechnen:

$$R_{b,A} = R_{b,h} \cdot \left( \frac{Sc}{Pr} \right)^{\frac{2}{3}}$$

mit

$$R_{b,h} = \frac{\ln \left( 1 + \frac{z_{0m}}{z_{0h}} \right)}{K \cdot u_*}$$

und  $Sc$  Schmidt-Zahl  
 $Pr$  Prandtl-Zahl

Die Werte der Kennzahlen wurden Grünhage und Haenel (1997) entnommen.

### 5.1.5 Bestandeswiderstand

Der Bestandeswiderstand  $R_{c,A}$ , wie bereits einleitend in Kapitel 5.1.1.1 dargestellt, setzt sich aus

mehreren Teilwiderständen (siehe Abbildung 5.2) zusammen. Um den Einfluss der Vegetationsentwicklung auf den Bestandeswiderstand nicht unberücksichtigt zu lassen wird hier, ähnlich wie beim Bodenwärmestrom  $G$  (siehe Kapitel 5.1.1.3), zusätzlich die Gewichtungsfunktion  $\beta$  angewandt, so dass sich folgender Zusammenhang ergibt:

$$\frac{1}{R_{\text{stom},\text{H}_2\text{O}}} = \frac{1}{R_{\text{H}_2\text{O},\text{min}}} \cdot f_1(R_g) \cdot f_2(T_a) \cdot f_3(\text{VPD}) \cdot f_4(\text{BW})$$

$$\frac{1}{R_{\text{c},\text{A}}} = (1 - \beta) \cdot \left( \frac{1}{R_{\text{stom},\text{A}} + R_{\text{mes},\text{A}}} + \frac{1}{R_{\text{cut},\text{A}}} \right) + \frac{1 - \beta}{R_{\text{ext},\text{A}}} + \frac{\beta}{R_{\text{Boden},\text{A}}}$$

Der Stomatawiderstand für Wasserdampf wird im Modell durch die Abhängigkeit von der Globalstrahlung  $R_g$ , Lufttemperatur  $T_a$ , Wasserdampfsättigungsdefizit  $VPD$  der Atmosphäre und Bodenwassergehalt  $BW$  beschrieben. Hierzu wird die Jarvis-Stewart-Näherung (Jarvis 1976, Stewart 1988) verwandt:

mit  $R_{\text{H}_2\text{O},\text{min}}$  minimaler Stomatawiderstand für Wasserdampf  
 $f_1, f_2, f_3, f_4$  Jarvis-Stewart-Kontrollfunktionen

Der Stomatawiderstand für ein Spurengas ergibt sich dann durch die Wichtung des Wasserdampf-Stomatawiderstandes, die sich aus den molekularen Diffusionskoeffizienten für Wasserdampf ( $D_{\text{H}_2\text{O}}$ ) und des Spurengases ( $D_{\text{A}}$ ) zusammensetzt (Wesely 1989):

$$R_{\text{stom},\text{A}} = R_{\text{stom},\text{H}_2\text{O}} \cdot \frac{D_{\text{H}_2\text{O}}}{D_{\text{A}}}$$

mit  $D_{\text{H}_2\text{O}} = 21,9 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$

$$D_{\text{NH}_3} = 20,3 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$$

Die Deposition von Spurengasen auf externen Pflanzenoberflächen wird durch den Oberflächenwiderstand  $R_{\text{ext},\text{A}}$  beschrieben. Dieser ist abhängig von der Oberflächenfeuchte, der Oberflächentemperatur sowie vom Oberflächen-pH-Wert. Für  $\text{NH}_3$  bietet sich zur Berechnung dieses Widerstandes die Parametrisierung von Sutton et al. (1995) an:

$$R_{\text{ext},\text{NH}_3} = 2 \cdot e^{\frac{100 - RH}{12}}$$

mit  $RH$  rel. Luftfeuchte

Der Mesophyllwiderstand, der der chemischen Zersetzung des Spurengases innerhalb der Stomata Rechnung trägt, wird nach Wesely (1989) aus der Henry-Konstanten und einem stoffabhängigen Reaktivitätsfaktor berechnet:

$$R_{\text{mes},\text{A}} = \left( \frac{k_{\text{H}}}{3000} + 100 \cdot f_{0,\text{A}} \right)^{-1}$$

mit  $k_{\text{H}}$  Henry-Konstante (für  $\text{NH}_3$ :  $k_{\text{H}} = 2 \cdot 10^4 \text{ mol atm}^{-1}$ )  
 $f_{0,\text{A}}$  Aktivitätsfaktor (für  $\text{NH}_3$ :  $f_{0,\text{NH}_3} = 0$ )

Damit berechnet sich der Mesophyllwiderstand für  $\text{NH}_3$  zu:

$$R_{\text{mes},\text{NH}_3} = 0,15 \text{ s m}^{-1}$$

Die Deposition eines Spurengases auf die Bodenoberfläche wird durch Reaktionswiderstand  $R_{\text{Boden},\text{A}}$  charakterisiert. Dieser hängt sowohl von der Wasserlöslichkeit als auch von der Reaktivität des Spurengases ab. Der Widerstand ergibt sich nach Wesely (1989) zu

$$R_{\text{Boden},\text{A}} = \left( \frac{k_{\text{H}}}{10^5 \cdot R_{\text{Boden},\text{SO}_2}} + \frac{f_{0,\text{A}}}{R_{\text{Boden},\text{O}_3}} \right)^{-1},$$

wobei nach Gao et al. (1993)

$$R_{\text{Boden},\text{SO}_2} = 500 \text{ s m}^{-1}$$

$$R_{\text{Boden},\text{O}_3} = 200 \text{ s m}^{-1}$$

zu setzen ist. Damit ergibt sich der Bodenwiderstand für  $\text{NH}_3$  zu

$$R_{\text{Boden},\text{NH}_3} = 2500 \text{ s m}^{-1}$$

Die Durchlässigkeit der Cuticula für Wasserdampf bzw. für Spurengase wird nach Kerstiens et al. (1992) bestimmt:

$$R_{\text{cut},\text{A}} = 10^{-b \cdot t_{\text{b},\text{A}} + a}$$

mit  $b$  Konstante (-0,0116 K<sup>-1</sup>)  
 $t_{\text{b},\text{A}}$  Siedepunkt des Gases A in °C  
 $a$  Konstante (6,12)

### 5.1.6 Stomatärer Kompensationspunkt für Ammoniak

Für die Berechnung der vertikalen Flüsse werden Kompensationspunkte benötigt. Um die vertikalen Flüsse der Spurengase zu berechnen, ist die Kenntnis der jeweiligen Kompensationspunkte notwendig. Bei Salpetersäure ( $\text{HNO}_3$ ), salpetriger Säure ( $\text{HNO}_2$ ) und Schwefeldioxid ( $\text{SO}_2$ ) kann aufgrund fehlender Quellen im Bestand der Kompensationspunkt gleich Null gesetzt werden.

Bei  $\text{NH}_3$  können jedoch aufgrund von Emissionen aus dem Bestand bidirektionale Flüsse auftreten. In der Modellierung wird daher auf die lufttemperaturabhängige Berechnung des stomatären Kompensationspunktes für  $\text{NH}_3$  ( $\rho_{\text{cstom, NH}_3}$ ) nach Sorteberg und Hov (1996) zurückgegriffen:

$$\rho_{\text{cstom, NH}_3} = 10^{\frac{a-b}{T_s}} \cdot \Gamma$$

mit  $\rho_{\text{cstom, NH}_3}$  stomatärer Kompensationspunkt für  $\text{NH}_3$

$a$  Konstante (11,834)  
 $b$  Konstante (4207,63 K)  
 $T_s$  Bestandestemperatur  
 $\Gamma$  Ammonium-Protonen-Konzentrations-Verhältnis im Apoplasten

wobei

$$\Gamma = \frac{c_{\text{NH}_4^+}}{c_{\text{H}^+}} = \frac{c_{\text{NH}_4^+}}{10^{-\text{pH}}}$$

Aus der obigen Gleichung geht hervor, dass der stomatäre Kompensationspunkt neben der Temperatur noch wesentlich vom zellulären Stickstoff-Status und pH-Wert des Bestandes bestimmt wird. Aus Mangel an direkten Messungen des  $\text{NH}_4^+$ - $\text{H}^+$ -Verhältnisses im Apoplasten am Standort Augustendorf wurden die Verhältnisse, des ebenfalls hoch mit N belasteten holländischen Speulder-Forstes als übertragbar angenommen ( $\Gamma = 8500 \text{ mol mol}^{-1}$ ) und für die Modellrechnungen verwendet (Privatmitteilungen J.W. Erisman, ECN Petten, E. Nemitz, CEH Edinburgh).

### 5.1.7 Bestandes-Kompensationspunkt für Ammoniak

Unter Berücksichtigung, dass die Pflanzenoberflächen  $\text{NH}_3$ , das aus den Stomata abgegeben wurde, ab- oder adsorbieren können, ergibt sich der Bestandeskompensationspunkt  $\rho_{\text{ccan, NH}_3}$  (Sutton und Fowler 1993) zu:

$$\rho_{\text{ccan, NH}_3} = \frac{\rho_{\text{NH}_3}}{R_{\text{ah}} + R_{\text{b, NH}_3}} + \frac{\rho_{\text{cstom, NH}_3}}{R_{\text{stom, NH}_3}} \cdot \frac{1}{\left( \frac{1}{R_{\text{ah}} + R_{\text{b, NH}_3}} + \frac{1}{R_{\text{stom, NH}_3}} + \frac{1}{R_{\text{ext, NH}_3}} \right)^{-1}}$$

### 5.2 Vertikale Flüsse von Schwebstaub-Partikeln

Nach Erisman et al. (1997) lassen sich Depositionen ( $F_{\text{aero}}$ ) von Schwebstäuben aus deren Konzentrationen ( $\rho_{\text{aero}}$ ) und Depositionsgeschwindigkeiten  $v_d$  berechnen:

$$F_{\text{aero}} = v_d \cdot \rho_{\text{part}}$$

Die Depositionsgeschwindigkeit  $v_d$  kann nach der folgenden Beziehung abgeschätzt werden:

$$v_d = \left( \frac{1}{v_{\text{DS}}} + R_{\text{ah}} \right)^{-1}$$

mit  $v_{\text{DS}}$  Standard-Depositionsgeschwindigkeit

Die Standard-Depositionsgeschwindigkeit  $v_{\text{DS}}$  wird aus der Schubspannungsgeschwindigkeit und der Windgeschwindigkeit mit Hilfe einer stoffspezifischen Korrekturfunktion und der relativen Luftfeuchte errechnet, wie sie in Erisman et al. (1997) tabelliert ist. Es wird hierbei zwischen trockenen und feuchten Akzeptorsystemen sowie zwischen Spezies unterschieden. Insbesondere ist die unterschiedliche typische Korngrößenverteilung für  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{NO}_3^-$  und  $\text{SO}_4^{2-}$ -haltige Aerosole zu berücksichtigen (vgl. z.B. Kleeman und Cass 1998, Mehlmann und Warneck 1995).

### 5.3 Mikrometeorologische Bestimmung von Bestandeshöhe, Verschiebungshöhe und Rauhigkeitslänge

Aus den Impulsflussdaten ( $F_m$ ), die mit Hilfe des Ultraschallanemometers gewonnen wurden, lassen sich die den Bestand charakterisierenden Parameter Bestandeshöhe  $h$ , Verschiebungshöhe  $d$  und Rauhigkeitslänge für den Impulsfluss  $z_{0m}$  aus dem logarithmischen Höhenprofil ableiten. Für neutrale Schichtung wird gemeinhin angenommen:

$$d = 0,63 \text{ } h$$

$$z_{0m} = 0,1 \text{ } h$$

Dann ergibt sich

$$h = \frac{z_m}{0,1 \cdot \exp\left(\frac{-\kappa \cdot u}{\sqrt{F_m}}\right) + 0,63}$$

mit  $F_m$  Impulsfluss (aus Messung mit Ultraschallanemometer)

Die sich hieraus rein rechnerisch ergebende Bestandeshöhe  $h$  lag im Mittel bei ca. 15 m, während das Impuls- bzw. Spurengassenkenniveau ( $d + z_{0m}$  bzw.  $d + z_{0A}$ ) bei 10,5 m über dem Boden lag.

#### 5.4 Berechnung der trockenen Deposition von Stickstoffdioxid

Stickstoffdioxid ( $\text{NO}_2$ ) ist ein vergleichsweise reaktionsträges Gas, dessen mittlere Depositionsgeschwindigkeit  $v_D$  etwa  $0,1 \text{ cm s}^{-1} < v_D < 0,2 \text{ cm s}^{-1}$  beträgt (z.B. Johannsson 1987, Hov et al. 1987, Ibrom 1993). D.h., aus  $1 \mu\text{g m}^{-3} \text{NO}_2$  werden im Mittel 0,1 bis 0,2 kg  $\text{ha}^{-1} \text{a}^{-1}$  N deponiert.

Wegen der vergleichsweise geringen Flüsse werden die Jahresflüsse mit diesen Werten geschätzt.

#### 5.5 Schließung von Datenlücken bei meteorologischen Parametern zur Flussbestimmung

Durch bauliche Verzögerungen konnten die meteorologischen Messungen am Messturm in 25 m Höhe (siehe Dämmgen et al. 2005) erst ab April 2002 kontinuierlich durchgeführt werden, während die Konzentrationsmessungen bereits seit September 2001 erfolgten. Zur Schließung der sich ergebenden Datenlücke wurden meteorologische Messungen zur Windgeschwindigkeit, Lufttemperatur, relativen Luftfeuchte und Globalstrahlung über der Freifläche in 10 m bzw. 2 m über Grund herangezogen. Da hier ebenfalls von September bis Dezember 2001 große Messausfälle zu verzeichnen waren, konnte nur eine 3monatige Messlücke von Januar bis März 2002 geschlossen werden.

Die Übertragung der Messungen am 10 m-Turm der Freifläche auf den 25-m-Turm über Wald wurde für die meteorologischen Größen aus Korrelations- bzw. Regressionsanalysen für einen definierten Zeitraum (Juni 2003 mit  $n < 1440$  Datensätzen) geschlossen.

##### 5.4.1 Lufttemperaturen

Die Lufttemperaturen auf der Freifläche und am Turm sind in Abbildung 5.3 einander gegenübergestellt.

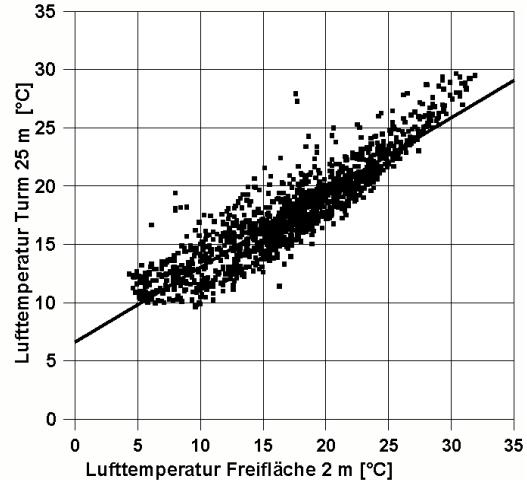


Abbildung 5.3  
Zusammenhang zwischen Lufttemperaturmessungen auf der Freifläche ( $h = 2 \text{ m}$ ) und am Turm ( $h = 25 \text{ m}$ )

Es ergab sich der folgende lineare Zusammenhang:

$$t_{25m} = t_{2m} \cdot 0,64 + 6,67$$

$$R^2 = 0,82$$

mit  $t_{2m}$  Lufttemperatur in 2 m Messhöhe [ $^{\circ}\text{C}$ ]  
 $t_{25m}$  Lufttemperatur in 25 m Messhöhe [ $^{\circ}\text{C}$ ]

##### 5.4.2 Windgeschwindigkeiten

Die Windgeschwindigkeiten über der Freifläche und am Turm sind in Abbildung 5.4 miteinander verglichen:

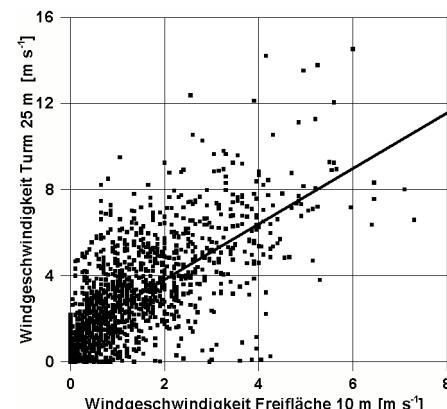


Abbildung 5.4  
Zusammenhang zwischen Windgeschwindigkeiten auf der Freifläche ( $h = 10 \text{ m}$ ) und am Turm ( $h = 25 \text{ m}$ )

Für den Vergleich der Windgeschwindigkeiten ergab sich der in Abbildung 5.4 dargestellte Zusammenhang mit folgender Regressionsbeziehung:

$$u_{25m} = u_{10m} \cdot 1,29 + 1,25$$

$$R^2 = 0,50$$

mit  $u_{10m}$  Windgeschwindigkeit in 10 m Messhöhe  $[m s^{-1}]$   
 $u_{25m}$  Windgeschwindigkeit in 25 m Messhöhe  $[m s^{-1}]$

#### 5.4.3 Relative Luftfeuchte

Bei der relativen Luftfeuchte konnte folgender Zusammenhang (vgl. Abbildung 5.5) gefunden werden:

$$RH_{25m} = RH_{2m} \cdot 0,62 + 22,40$$

$$R^2 = 0,77$$

mit  $RH_{2m}$  rel. Feuchte in 2 m Messhöhe [%]  
 $RH_{25m}$  rel. Feuchte in 25 m Messhöhe [%]

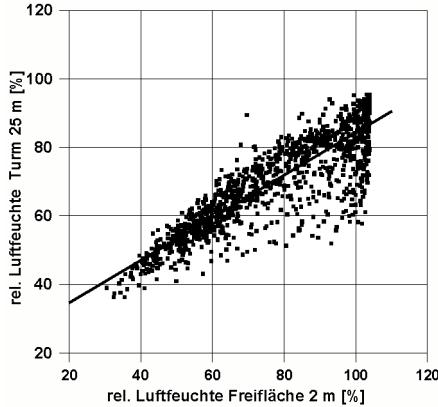


Abbildung 5.5  
Zusammenhang zwischen Luftfeuchtemessungen auf der Freifläche ( $h = 2 \text{ m}$ ) und am Turm ( $h = 25 \text{ m}$ )

#### 5.4.4 Globalstrahlung und Nettostrahlung

Für die Globalstrahlung wurde folgende Beziehung abgeleitet (Abbildung 5.6):

$$R_{g25m} = R_{g2m} \cdot 0,73 + 54,00$$

$$R^2 = 0,78$$

mit  $R_{g2m}$  Globalstrahlung in 2 m Messhöhe  $[W m^{-2}]$   
 $R_{g25m}$  Globalstrahlung in 25 m Messhöhe  $[W m^{-2}]$

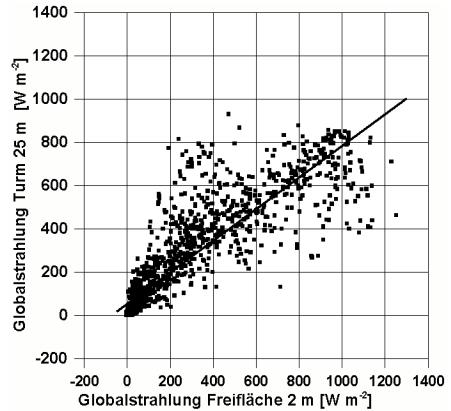


Abbildung 5.6  
Zusammenhang zwischen Globalstrahlungsmessungen auf der Freifläche ( $h = 2 \text{ m}$ ) und am Turm ( $h = 25 \text{ m}$ )

Die Nettostrahlung wurde auf der Freifläche nicht gemessen, so dass eine Beziehung aus der Globalstrahlung (Abbildung 5.6) abgeleitet wurde:

$$R_{net25m} = R_{g25m} \cdot 0,85 + 0,00$$

$$R^2 = 1,00$$

mit  $R_{g25m}$  Globalstrahlung in 25 m Messhöhe  $[W m^{-2}]$   
 $R_{net25m}$  Nettostrahlung in 25 m Messhöhe  $[W m^{-2}]$

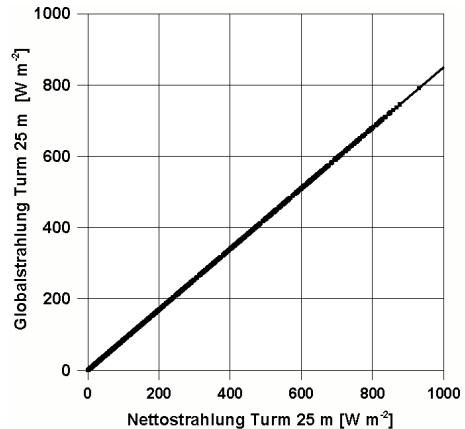


Abbildung 5.6  
Zusammenhang zwischen Nettostrahlung und Globalstrahlung am Turm ( $h = 25 \text{ m}$ )

#### 5.4.5 Datenlücken durch Messausfälle

In der restlichen Untersuchungszeit traten nur vereinzelt Datenlücken durch Messausfälle im Zeitbereich von Stunden auf. Diese wurden bei der Bearbeitung der Datensätze programmtechnisch erfasst und durch ein einfaches Interpolationsverfahren geschlossen.

## 5.5 Modellierung des Bodenwasserhaushalts mit dem Wasserhaushaltmodell SIMPEL

Die Anpassung eines Wasserhaushaltmodells auf den Hauptuntersuchungsstandort verfolgt das Ziel, einerseits Wasserflussraten zur Berechnung der Stoffaustreiche zur Verfügung zu stellen, andererseits für das Widerstandsmodell zur Depositionsschätzung Vergleichsdaten zur Modellierung des latenten Wärmeflusses zu liefern. Innerhalb des ANSWER-Experiments wurde das Modell SIMPEL eingesetzt, das bereits auf mehreren Monitoringflächen aus dem deutschen Level II-Messnetz angewendet wurde (Hörmann 1997, Hörmann et al. 2003). SIMPEL ist ein einfaches Einschicht-Speichermodell, welcher als Durchlaufspeicher mit Überlauf konzipiert ist (Abbildung 5.7). Wesentliche Parameter zur Steuerung des Bodenwasserhaushalts sind die Feldkapazität, der permanenten Welkepunkt, die Wurzeltiefe, einen die Durchlässigkeit beschreibenden Parameter und der kritische Wassergehalt ( $\theta_{\text{krit}}$ ), unterhalb dessen die Bäume die Transpiration einschränken. Das Interzeptionsmodul wurde für die vorliegende Anwendung ausgeschaltet, da die Interzeption aus der Messung von Freilandniederschlag und Kronentraufe bekannt ist.

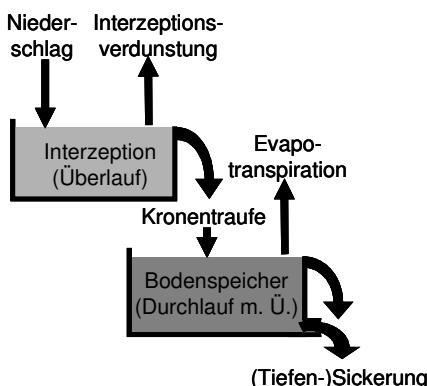


Abbildung 5.7:  
Das Speichermodell SIMPEL (schematisch, verändert nach Hörmann 1997)

Aus den mehreren vorhandenen Verdunstungsmodellen wurde eine gegenüber dem oben genannten Ansatz vereinfachte Version des Penman-Monteith-Modells gewählt.

Das Modell wurde anhand von direkt gemessenen Bodenwassergehalten (TDR) in Augustendorf aus den Jahren 2002/2003 kalibriert (Abbildung 5.8). Für die Messstandorte Sandkrug und Holdorf dienten hierzu die in 2 Bodentiefen gemessenen Saugspannungen. Als Kalibriergröße wurde nur  $\theta_{\text{krit}}$  verwendet. Der Vergleich von gemessenen und simulierten Wassergehalten im Speicherkompartiment ergibt mit Ausnahme des

zweiten Halbjahres 2003, in dem das Modell die Dynamik der Speicheränderungen nur in gedämpfter Form wiedergibt, eine zufriedenstellende Übereinstimmung (Abbildung 5.8).

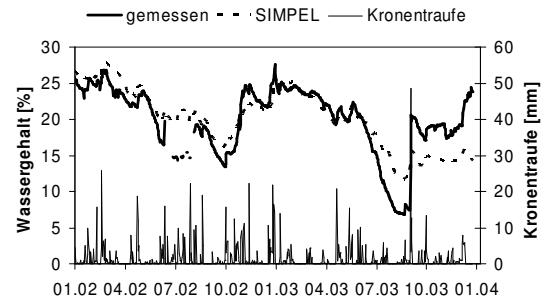


Abbildung 5.8  
Mit SIMPEL modellierte Bodenwassergehalte (SIMPEL) sowie gemessene Bodenwassergehalte (gemessen) und Kronentraufe für den Standort AUKIW1 im Zeitraum 01/2002 – 12/2003.

## 5.6 Kronenraumbilanzmodelle

Die mittels offener Sammler untersuchten Bestandesniederschläge sind lediglich Teilflüsse der N-Verbindungen, die über die Atmosphäre in Waldökosysteme gelangen. N-Flüsse, die bereits im Kronenraum vom Bestand adsorbiert werden bleiben hingegen unberücksichtigt. Kronenraumbilanzmodelle versuchen diese Prozesse mittels verschiedener Konzepte abzubilden. Im Rahmen dieser Untersuchung werden die Modelle von Ulrich (1994) und Draaijers (Draaijers und Erisman 1995) eingesetzt. Beide Modelle beruhen auf dem Vergleich von Stoffflüssen mit dem Freilandniederschlag und der Kronentraufe (bzw. Bestandesniederschlag).

### 5.6.1 Das Kronenraumbilanzmodell nach Ulrich

In dem Ansatz von Ulrich (1994) wird die Interzeptionsdeposition ( $ID_A$ ) für Spezies A, die nicht aufgenommen oder ausgewaschen werden, aus der Differenz von Bestandesniederschlag ( $BN_A$ ) und Freilandniederschlag (Niederschlagsdeposition  $ND_A$ ) geschätzt. Die Interzeptionsdeposition  $ID_A$  entspricht der Summe von trockener partikulärer ( $ID_{\text{part, A}}$ ) und gasförmiger Deposition ( $ID_{\text{gas, A}}$ ). Die Gesamtdeposition ( $GD_A$ ) ist die Summe von Niederschlagsdeposition und Interzeptionsdeposition.

$$GD_A = ND_A + ID_A$$

$$ID_A = ID_{\text{part, A}} + ID_{\text{gas, A}}$$

$$ID_A = BN_A - ND_A \quad A = \text{Na, Cl, SO}_4$$

Die partikuläre Deposition ( $ID_{\text{part, A}}$ ) wird unter der Annahme, dass die Partikelgrößenverteilung für alle Stoffe ähnlich ist, aus dem Verhältnis von Interzeptionsdeposition und Niederschlagsdeposition von Na geschätzt:

$$f_{\text{Na}} = \frac{ID_{\text{Na}}}{ND_{\text{Na}}}$$

$$ID_{\text{part,A}} = f_{\text{Na}} \cdot ND_{\text{A}}$$

A = H, K, Mg, Ca, Mn, Al, Fe, NH<sub>4</sub>, Cl, SO<sub>4</sub>, NO<sub>3</sub>

Es wird angenommen, dass keine gasförmige Deposition von Metall-Kationen stattfindet.

$$ID_{\text{gas, A}} = 0$$

A = Na, K, Mg, Ca, Mn, Al, Fe

Die gasförmige Deposition von SO<sub>2</sub>, HCl, HNO<sub>3</sub> und NH<sub>3</sub> wird aus der Differenz von Interzeptionsdeposition und partikulärer Deposition geschätzt:

$$ID_{\text{gas,A}} = ID_{\text{A}} - ID_{\text{part,A}} = BN_{\text{A}} - ND_{\text{A}} - ID_{\text{part,A}}$$

A = NH<sub>4</sub>, Cl, SO<sub>4</sub>, NO<sub>3</sub>

Die gasförmige Deposition von SO<sub>2</sub>, HCl und HNO<sub>3</sub> bewirkt einen äquivalenten Eintrag, die Deposition von NH<sub>4</sub> eine Konsumtion von Protonen:

$$ID_{\text{gas,H}} = ID_{\text{gas,SO2}} + ID_{\text{gas,Cl}} + ID_{\text{gas,NO3}} - ID_{\text{gas,NH4}}$$

Wenn die partikuläre Deposition von NH<sub>4</sub> und NO<sub>3</sub> größer als die Differenz  $BN_{\text{A}} - ND_{\text{A}}$  ist, kann keine gasförmige Deposition berechnet werden.

Die Differenz zwischen Bestandesniederschlag und Gesamtdeposition wird als Kronenraumaustausch ( $CE_{\text{A}}$ ) interpretiert. Positive Werte bedeuten Auswaschung aus dem Kronenraum (Leaching), negative Werte Aufnahme im Kronenraum:

$$CE_{\text{A}} = BN_{\text{A}} - GD_{\text{A}} = BN_{\text{A}} - ND_{\text{A}} - ID_{\text{A}}$$

Aus dem Berechnungsschema ergibt sich, dass für NH<sub>4</sub> und NO<sub>3</sub> entweder gasförmige Deposition (wenn  $ID_{\text{part}} < BN_{\text{B}} - ND_{\text{B}}$ ) oder Kronenraumaufnahme (wenn  $ID_{\text{part}} > BN_{\text{B}} - ND_{\text{B}}$ ) berechnet werden kann. Da beide Prozesse gleichzeitig auftreten können, stellt das Ulrich-Modell in jedem Fall eine Unterschätzung der Gesamtdeposition dar.

## 5.6.2 Das Draaijers-Modell

Das Modell von Draaijers (Draaijers und Erisman 1995) stellt eine Modifikation des Ulrich-Modells hinsichtlich der NH<sub>4</sub>-Deposition dar. Nach dem Modell kann der Kronenraumaustausch der basischen Kationen (K, Mg, Ca) auf zwei Prozesse zurückgeführt werden:

- Leaching in Verbindung mit der Exkretion schwacher Säuren (weak acids, wa)
- Kationenaustausch gegen NH<sub>4</sub><sup>+</sup> und H<sup>+</sup>

$$CE_{\text{K+Mg+Ca}} = CE_{\text{wa}} - CE_{\text{H+NH4}}$$

Die Menge der schwachen Säuren (wa) kann aus der Ionenbilanz oder über empirische Modelle (z.B. Oliver et al. 1983) geschätzt werden. Die Interzeptionsdeposition von schwachen Säuren ( $ID_{\text{wa}}$ ) wird als gleich groß wie die Niederschlagsdeposition ( $ND_{\text{wa}}$ ) geschätzt. Damit ergibt sich für  $CE_{\text{wa}}$ :

$$CE_{\text{wa}} = BN_{\text{wa}} - 2 ND_{\text{wa}}$$

Der Anteil des Leachings basischer Kationen, der auf die Exkretion schwacher Säuren zurückgeführt werden kann, wird als Exkretionsfaktor ( $EF$ ) definiert:

$$EF = \frac{CE_{\text{wa}}}{CE_{\text{K+Mg+Ca}}}$$

Damit ergibt sich für die Aufnahme von NH<sub>4</sub><sup>+</sup> und H<sup>+</sup>:

$$\begin{aligned} -CE_{\text{H+NH4}} &= CE_{\text{K+Mg+Ca}} - CE_{\text{wa}} \\ &= CE_{\text{K+Mg+Ca}} \cdot (1 - EF) \end{aligned}$$

Die Anteile von H<sup>+</sup> und NH<sub>4</sub><sup>+</sup> am Austauschprozess werden von Draaijers und Erisman (1995) unter der Annahme geschätzt, dass H<sup>+</sup> eine 6fach so hohe Austauscheffizienz wie NH<sub>4</sub><sup>+</sup> besitzt (relative Effektivität der NH<sub>4</sub><sup>+</sup>/H<sup>+</sup>-Aufnahme, sog. Draaijers-Faktor). Diese Annahme beruht auf empirischen Untersuchungen an einem Douglassienbestand in den Niederlanden (van der Maas et al. 1991, zit. nach Draaijers und Erisman 1995).

$$-CE_{\text{H}} = -\frac{CE_{\text{H+NH4}}}{1 + \frac{1}{6} \cdot \left( \frac{BN_{\text{H}}}{BN_{\text{NH4}}} + \frac{1}{2} \cdot \frac{ND_{\text{H}}}{ND_{\text{NH4}}} \right)}$$

$$-CE_{\text{NH4}} = -CE_{\text{H+NH4}} - CE_{\text{H}}$$

Damit kann die Gesamtdeposition von  $\text{NH}_4^+$  und  $\text{H}^+$  geschätzt werden:

$$GD_A = BN_A - CE_A - ND_A$$

$$A = \text{H, NH}_4$$

Die Gültigkeit des bisher verwendeten Wertes für die relative Aufnahmeeffektivität sollte aber im Rahmen dieser Untersuchung geprüft werden. Es wird vermutet, dass der Faktor unter anderem auch von Baumart, Ernährungszustand, Jahreszeit abhängig ist.

## 5.7 Literatur

- Brutsaert W (1984) Evaporation into the atmosphere. 2. Aufl.. Dordrecht, Reidel.
- Cellier P, Brunet Y (1992) Flux-gradient relationships above tall plant canopies. Agric Forest Meteorol 58, 93-117.
- Dämmgen U, Schaaf S, Horváth B, Meesenburg H, Mohr K (2005) Methoden zur Bestimmung von Stoffflüssen und -konzentrationen im ANSWER-Projekt. Landbauforsch Völkenrode SH XXX, YYY-ZZZ.
- Draaijers GPJ (1999) Canopy Budget Models applicable for use within the Intensive Monitoring Programme. In: FIMCI Manual IV Measurement of Deposition and Air Pollution (Annex 5)
- Draaijers GPJ, Erisman JW (1995) A canopy budget model to assess atmospheric deposition from throughfall measurements. Water Air Soil Pollut 85, 2253-2258.
- Erisman JW, van Pul A, Wyers P (1994) Parameterization of surface resistance for the quantification of atmospheric deposition of acidifying pollutants and ozone. Atmos Environ 28, 2595-2607.
- Erisman JW, Draaijers GPJ, Duyzer J, Hofschreuder P, van Leeuwen N, Römer F, Ruijgrok W, Wyers P, Gallagher M (1997) Particle deposition to forests – summary of results and application. Atmos Environ 31, 321-332.
- Gao W, Wesely M, Doskey PV (1993) Numerical modeling of the turbulent diffusion and chemistry of  $\text{NO}_x$ ,  $\text{O}_3$ , isoprene, and other reactive trace gases in and above a forest canopy. J Geophys Res - Atmosphere 98, 18339-18353.
- Falge E, Reth S, Brüggemann N, Butterbach-Bahl K, Goldberg V, Oltchev A, Schaaf S, Spindler G, Stiller B, Queck R, Köstner B, Bernhofer C (2004) Comparison of surface energy exchange models in Vertiko. Ecol Modelling, eingereicht.
- Grünhage L, Haenel D (1997) PLATIN (Plant-Atmosphere Interaction) I: A model of plant-atmosphere interaction for estimating absorbed doses of gaseous air pollutants. Environ Pollut 98, 37-50.
- Haenel H-D (1993) Surface-layer profile evaluation using a generalization of Robinson's method for determination of  $d$  and  $z_0$ . Boundary Layer Meteorol 65, 55-67.
- Haenel H-D (1996) Bestimmung von  $F_h$  und  $F_m$  aus Windgeschwindigkeits- und Temperaturprofil mit Hilfe des Profilauswertungsprogramms FLUX. In: Auswirkungen dynamischer Veränderungen der Luftzusammensetzung und des Klimas auf terrestrische Ökosysteme in Hessen. II. Umweltbeobachtungs- und Klimafolgenforschungsstation Linden: Jahresbericht 1995. Arbeits- und Umweltschutz (Schr-Reihe Hess Landesanst für Umwelt) 220, 142-156.
- Hicks BB, Baldocchi DD, Meyers TP, Hosker RP, Matt DR (1987) A preliminary multiple resistance routine for deriving dry deposition velocities from measured quantities. Water Air Soil Pollut 36, 311-330.
- Hörmann G (1997) SIMPEL – Ein einfaches, benutzerfreundliches Bodenwassermodell zum Einsatz in der Ausbildung. Dt Gewässerkundl Mitt 41, 67-72.
- Hörmann G, Scherzer J, Suckow F, Wegehenkel M, Müller J, Lukes M, Hammel K, Meesenburg H (2003) Modellierung der Interzeption in verschiedenen Wasserhaushaltmodellen. In: BMVEL (Hrsg.) 2003: Wasserhaushalt von Waldökosystemen: Methodenleitfaden zur Bestimmung der Wasserhaushaltkomponenten auf Level II-Flächen. Bonn
- Hov O, Allegrini I, Beilke S, Cox RA, Eliassen A, Elshout AJJ, Gravenhorst G, Penkett SA, Stern R (1987) Evaluation of atmospheric processes leading to acid deposition in Europe. Air Pollution Research Reports. Boca Raton, CEC.
- Ibrom A (1993) Die Deposition und die Pflanzenauswaschung von Pflanzennährstoffen in einem Fichtenbestand im Solling. Ber. Forschungszentrum Waldökosysteme Göttingen, Reihe A, Bd. 105.
- Jarvis PG (1976) The interpretation of the variations in leaf water potential and stomatal conductance found in canopies in the field. Phil Trans Roy Soc (London) 273, 593-610.
- Johansson, C. (1987) Pine forest: a negligible sink for atmospheric  $\text{NO}_2$  in rural Sweden. Tellus 39b, 426-438.
- Kerstiens G, Federholzner R, Lendzian KJ (1992) Dry deposition and cuticular uptake of pollutant gases. Agric Ecosyst Environ 42, 239-253.
- Kleeman MJ, Cass GR (1998) Source contributions to the size and composition distribution of urban particulate air pollution. Atmos Environ 32, 2803-2816.
- Löpmeier F-J (1983) Agrarmeteorologisches Modell zur Berechnung der aktuellen Verdunstung. (AMBAV). Beiträge zur Agrarmeteorologie Nr. 7/83. Agrarmeteorologische Forschung, Braunschweig.
- Meesenburg H, Mohr K (2005) Die Untersuchungsstandorte im ANSWER-Projekt. Landbauforsch Völkenrode SH XX, YY-ZZ.
- Meesenburg H, Mohr K, Dämmgen U, Schaaf S, Meiwes KJ, Horváth B (2005) Stickstoff-Einträge und -Bilanzen in den Wäldern des ANSWER-Projekts – eine Synthese. Landbauforsch Völkenrode SH XX, YY-ZZ.
- Mehlmann A, Warneck P (1995) Atmospheric gaseous  $\text{HNO}_3$ , particulate nitrate, and aerosol size distributions of major ionic species at a rural site in western Germany. Atmos Environ 29, 2359-2373.
- Mohr K, Meesenburg H, Dämmgen U (2005a) Die Stickstoff-Belastung von Waldökosystemen –

- Wirkungen, Wirkungspfade, offene Fragen, Gesamtkonzept. Landbauforsch Völkenrode SH XXX, YY-ZZ.
- Mohr K, Schaaf S, Horváth B, Meesenburg H, Dämmgen U (2005b) Stoff- und Energieflüsse der im ANSWER-Projekt untersuchten Waldbestände. Landbauforsch Völkenrode SH XX, YY-ZZ.
- Monin AS, Obhukov AM (1954) Basic laws of turbulent mixing in the atmosphere near the ground. Tr Akad Nauk, SSSR Geophys Inst 24 (151), 163-187.
- Monteith JL (1965) Evaporation and environment. In: Fogg, G.E. (Hrsg.): The State and Movement of Water in Living Organisms. Proc. XIX Symp. Soc. Exp. Biol., Cambridge UP, S. 205-234.
- Mozurkewich M (1993) The dissociation constant of ammonium nitrate and its dependence on temperature, relative humidity and particle size. *Atmos Environ* 27A, 261-270.
- Oliver BG, Thurman EM, Malcolm RL (1983) The contribution of humic substances to the acidity of colored natural waters. *Geochim Cosmochim Acta* 47, 2031-2035.
- Schaaf S, Dämmgen U, Mohr K, Meesenburg H (2005) Witterung, Spurengas- und Schwebstaub-Inhaltsstoff-Konzentrationen in der Umgebungsluft und in den Beständen des ANSWER-Projekts. Landbauforsch Völkenrode SH XX, YY-ZZ.
- Sellers PJ, Mintz Y, Sud YC, Dalcher A (1985) A Simple Biosphere Model (SiB) for Use within General Circulation Models. *J Atmos Sci* 43, 505-531.
- Stewart JB (1988) Modelling surface conductance of pine forest. *Agric Forest Meteorol* 43, 17-39.
- Stull RB (1994) An introduction to boundary layer meteorology. Dordrecht, Kluwer.
- Sutton MA, Fowler D (1993) A model for inferring bidirectional fluxes of ammonia over plant canopies. *Proc. WMO Conf. On the Measurement and Modelling of Atmospheric Composition Changes Including Pollution Transport. WMO / GAW-91.* 179-182. Geneva, World Meteorological Organization.
- Sutton MA, Schjørring JK, Wyers GP (1995) Plant atmosphere exchange of ammonia. *Phil Transact Roy Soc (London) Ser. A* 351, 261-278
- Ulrich B (1994) Nutrient and acid/base budget of central European forest ecosystems. In: Hüittermann A, Godbold DL (Hrsg.) Effects of acid rain on forest processes. New York, Wiley, 1-50.
- Wesely ML (1989) Parametrization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models. *Atmos Environ* 23, 1293-1304.

## 6 Witterung, Spurengas- und Schwebstaub-Inhaltsstoff-Konzentrationen in der Umgebungsluft und in den Beständen des ANSWER-Projekts

S. Schaaf<sup>1</sup>, U. Dämmgen<sup>1</sup>, K. Mohr<sup>2</sup>, H. Meesenburg<sup>3</sup>

### 6.1 Witterung im Weser-Ems-Gebiet

Monatliche Mittel der am Standort gemessenen meteorologischen Größen lassen eine Bewertung im Hinblick auf die zeitliche und örtliche Repräsentativität der Konzentrationsmessungen und Flussbestimmungen zu. Im folgenden sollen daher die Klimaparameter Lufttemperatur und Niederschlag, wie sie innerhalb des ANSWER-Projekts<sup>4</sup> am Standort Augustendorf im Untersuchungszeitraum aufgezeichnet wurden, beschrieben und mit langjährigen Mitteln der Station Friesoythe-Edewechterdamm (Quelle: Deutscher Wetterdienst DWD), stellvertretend für das Klima des Weser-Ems-Gebietes, verglichen werden.

Die Abbildungen 6.1 und 6.2 zeigen den Verlauf der Lufttemperatur und Niederschlagsmenge sowie deren langjährige Mittel. Hieraus folgt, dass die beiden Versuchsjahre als untypisch im Hinblick auf die Lufttemperatur und Niederschlagstätigkeit, 2002 als warm-feuchtes Jahr, 2003 als warm-trockenes Jahr zu charakterisieren sind.

Für das gesamte Untersuchungsgebiet lässt sich das Witterungsgeschehen wie folgt charakterisieren: Der Temperaturverlauf in den Jahren 2002 und 2003 zeichnet sich durch sehr warme Sommer und einen überdurchschnittlich warmen Winter 2001/2002 aus (Abbildung 6.1). Lediglich die Monate Oktober und November 2002 und Februar und Oktober 2003 waren kälter als das langjährige Mittel. Mit 10,4°C und 10,0°C lagen die Jahresmitteltemperaturen um 1,7 bis 2,1 K über dem langjährigen Mittel.

Das Versuchsjahr 2002 wird durch seine große Niederschlagstätigkeit mit hohen Regenfällen in den Sommermonaten Juni und August und im Oktober bestimmt (Abbildung 6.2). Im Vergleich zum langjährigen Mittel wurden 2002 etwa 100 mm mehr Niederschlag gemessen. Dagegen war das Jahr 2003 im gesamten Bundesgebiet durch anhaltende Trockenheit gekennzeichnet, was sich auch an den Versuchsstandorten, hier jedoch in stark abgeschwächter Form, zeigte.

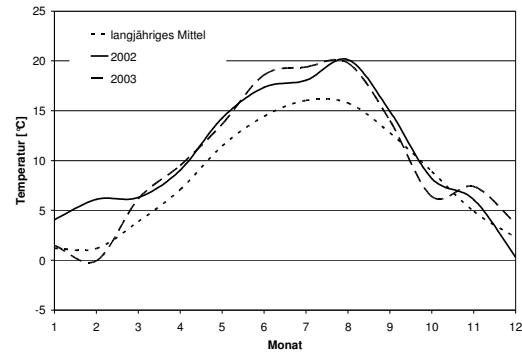


Abbildung 6.1:  
Vergleich langjähriger mittlerer Monatstemperaturen (DWD-Station Friesoythe-Edewechterdamm 1949-2003) und der entsprechenden Temperaturen der Jahre 2002 und 2003.

<sup>1</sup> Bundesforschungsanstalt für Landwirtschaft, Institut für Agrarökologie, Bundesallee 50, 38116 Braunschweig, stefan.schaaf@fal.de

<sup>2</sup> Landwirtschaftskammer Weser-Ems, Mars-la-Tour-Str. 9-13, 26121 Oldenburg

<sup>3</sup> Niedersächsische Forstliche Versuchsanstalt, Grätzelstr. 2, 37079 Göttingen

<sup>4</sup> Zum Konzept des ANSWER-Projekts siehe Mohr et al. (2005a) und Dämmgen et al. (2005a), zu den Standorten Meesenburg und Mohr (2005), zu den verwendeten Messverfahren und Modellen Dämmgen et al. (2005b) und Schaaf und Meesenburg (2005), zu den Ergebnissen Schaaf et al. (2005), Mohr et al. (2005b) sowie Meesenburg et al. (2005).

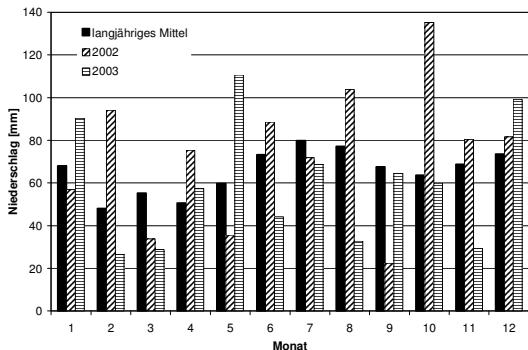


Abbildung 6.2:  
Vergleich langjähriger Niederschläge (DWD-Station Friesoythe-Edewechterdamm 1949-2003) und der Niederschläge der Jahre 2002 und 2003.

So waren Frühjahr 2003 noch relativ und der Herbst 2003 durchschnittlich feucht, während der Sommer, insbesondere der Monat August, mit ca. 60 % geringeren Niederschlägen zu trocken war. Im Vergleich zum langjährigen Mittel von 785 mm a<sup>-1</sup> wurden für das gesamte Jahr 2003 allerdings nur eine etwa 70 mm (entsprechend ca. 10%) geringere Niederschlagsmenge gemessen als im Durchschnitt. Deutlich größer war das Niederschlagsdefizit 2003 an den Standorten Herrenholz und Holdorf (-25 %) und in Sandkrug (-20 %).

## 6.2 Konzentrationen von Ammoniak-, Stickstoffdioxid-, Schwefeldioxid- und Ozon-Konzentrationen in Augustendorf und Herrenholz

Im Hinblick auf die mögliche Übertragbarkeit der in Augustendorf bestimmten Flüsse wurden am Standort Herrenholz mit IVL-Passiv-Sammlern mittlere Konzentrationen auf der Freifläche von NH<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub> und O<sub>3</sub> bestimmt und mit den entsprechenden Konzentrationen in Augustendorf verglichen.

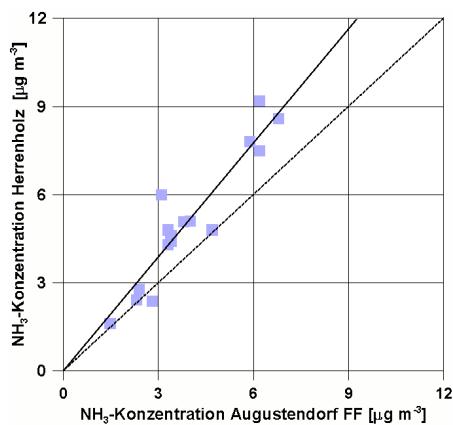


Abbildung 6.3:  
Vergleich von Monatsmitteln der NH<sub>3</sub>-Konzentrationen in Augustendorf und Herrenholz.

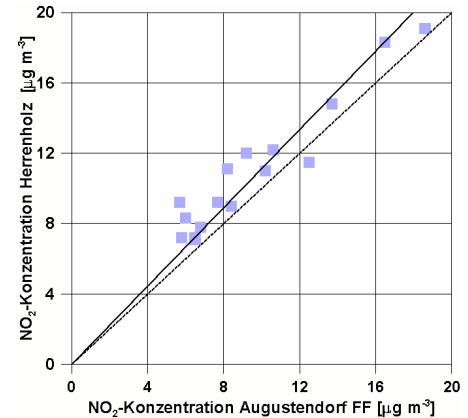


Abbildung 6.4:  
Vergleich von Monatsmitteln der NO<sub>2</sub>-Konzentrationen in Augustendorf und Herrenholz.

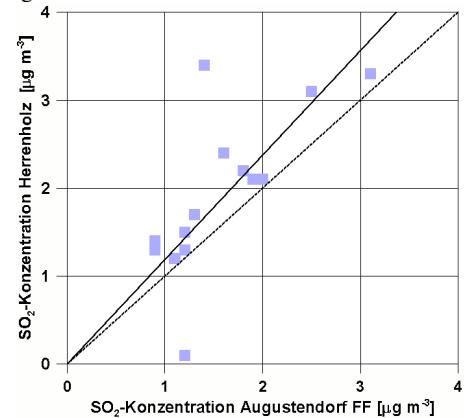


Abbildung 6.5:  
Vergleich von Monatsmitteln der SO<sub>2</sub>-Konzentrationen in Augustendorf und Herrenholz.

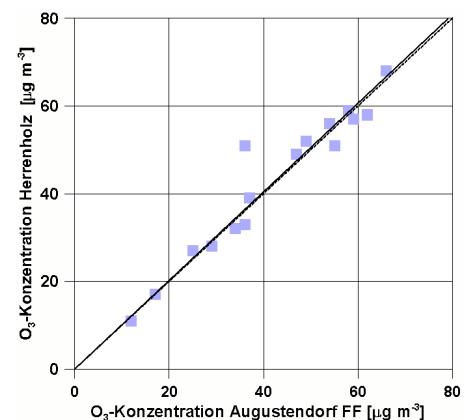


Abbildung 6.6:  
Vergleich von Monatsmitteln der O<sub>3</sub>-Konzentrationen in Augustendorf und Herrenholz.

Alle betrachteten Konzentrationen (mit Ausnahme von SO<sub>2</sub>) sind hoch miteinander korreliert; die Steigung b der Ausgleichsgeraden ist nahe bei

1:  $\text{NH}_3$ :  $R^2 = 0,87$ ,  $b = 1,29$ ;  $\text{NO}_2$ :  $R^2 = 0,87$ ,  $b = 1,11$ ;  $\text{SO}_2$ :  $R^2 = 0,51$ ,  $b = 1,19$ ;  $\text{O}_3$ :  $R^2 = 0,93$ ;  $b = 1,01$  (vgl. Abbildungen 6.3 bis 6.6). Für Ammoniak ergibt sich hieraus eine durchschnittlich um etwa 30 % höhere Belastung in Herrenholz, während die Unterschiede zwischen den Konzentrationen der anderen Luftinhaltsstoffe deutlich geringer sind.

### 6.3 Messungen der $\text{NH}_3$ -Konzentrationen mit Passivsammlern in der Umgebungsluft an den Messstellen Augustendorf, Holdorf und Sandkrug

An den Messstandorten Augustendorf, Holdorf und Sandkrug wurden die  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen mit Passivsammlern in unterschiedlichen Höhen über dem Bestand und im Bestand gemessen. Die Ergebnisse dieser fast 34 Monate dauernden Messungen (9.6.2001 bis 6.4.2004) sind in den Abbildungen 6.7 und 6.8 dargestellt. Der Mittelwert betrug über den Beständen in Holdorf  $8,6 \mu\text{g m}^{-3}$   $\text{NH}_3$  sowie in Sandkrug  $5,7 \mu\text{g m}^{-3}$   $\text{NH}_3$ . In Augustendorf betragen die unter vergleichbaren Bedingungen wie in Holdorf und Sandkrug, jedoch in einem kürzeren Messzeitraum (9.4.02 bis 2.9.03, Abbildung 6.9) gemessenen  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen über dem Bestand im Mittel  $8,2 \mu\text{g m}^{-3}$ .

Im Kronenraum traten deutlich geringere  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen auf. In Holdorf lagen sie mit  $4,7 \mu\text{g m}^{-3}$  im Mittel 45 % unter den Außenluftkonzentrationen. In Sandkrug und Augustendorf reduzierten sich die  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen im Kronenraum lediglich um 22 bzw. 19 %. Möglicherweise sind hierfür Unterschiede der Kronenraumsstruktur zwischen den Standorten verantwortlich.

An den Zeitreihen wird die hohe zeitliche Variabilität der 2-Wochen-Mittelwerte ersichtlich. In Perioden der Düngerausbringung wurden in Holdorf häufiger Außenluftkonzentrationen von über  $15 \mu\text{g m}^{-3}$   $\text{NH}_3$ , in Sandkrug solche von  $10 \mu\text{g m}^{-3}$   $\text{NH}_3$  festgestellt. Maximalwerte von über  $25 \mu\text{g m}^{-3}$  im 2-Wochen-Mittel wurden innerhalb der 2-jährigen Messperiode an dem emittentennahmen Messstandort Standort Holdorf dreimal, in Sandkrug dagegen nur einmal festgestellt. Die horizontalen Unterschiede waren in diesen Perioden am höchsten. Innerhalb der kürzeren Messperiode in Augustendorf traten Konzentrations spitzen von über  $15 \mu\text{g m}^{-3}$  nur wenige Male zwischen März und April 2003 auf.

In den Sommer- und insbesondere in den Wintermonaten gingen die Immissionskonzentrationen deutlich, in Holdorf auf Werte um  $5 \mu\text{g m}^{-3}$ , in Sandkrug um  $3 \mu\text{g m}^{-3}$   $\text{NH}_3$  zurück. Das niedrigere Niveau und die geringere horizontale Diffe-

renzierung lässt auf entsprechend geringere Abscheideraten im Kronenraum schließen.

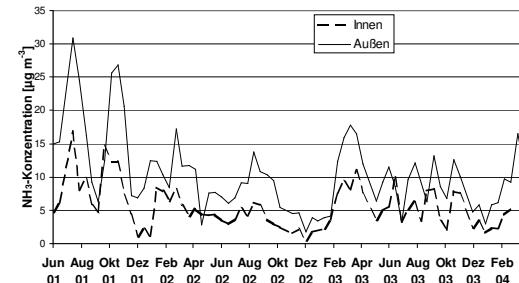


Abbildung 6.7:  
2-Wochen-Mittel der  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen in der Luft innerhalb der Bestände (innen) und ca. 2 m über den Beständen (außen) in Holdorf

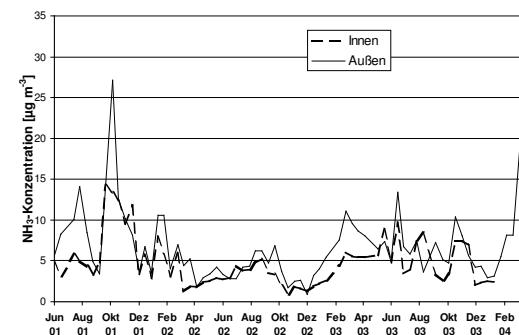


Abbildung 6.8:  
2-Wochen-Mittel der  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen in der Luft innerhalb der Bestände (innen) und ca. 2 m über den Beständen (außen) in Sandkrug

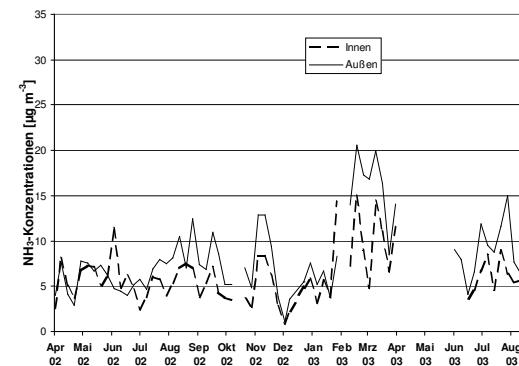


Abbildung 6.9:  
2-Wochen-Mittel der  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen in der Luft innerhalb der Bestände (innen) und ca. 2 m über den Beständen (außen) in Augustendorf

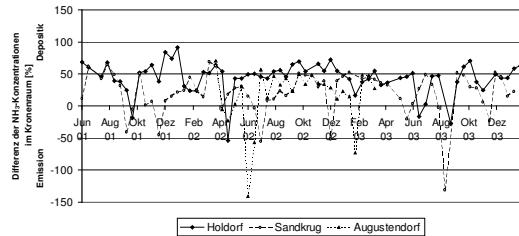


Abbildung 6.10:  
Prozentuale Abweichung der  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen über dem Bestand gegenüber den  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen im Bestand.

Regionale Unterschiede der  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen sind nicht nur Folgen unterschiedlicher Emissionen, sondern deuten auf voneinander abweichende  $\text{NH}_3$ -Flüsse in den Beständen hin. Abbildung 6.10 zeigt, dass in der überwiegenden Zeit die  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen über allen Beständen höher als im Kronenraum lagen, somit ein deutlich abwärts gerichteter  $\text{NH}_3$ -Fluss vorlag.  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen über dem Bestand, die unter denen im Bestand liegen, deuten auf eine maßgebliche  $\text{NH}_3$ -Emission aus dem Bestand hin. In Holdorf trat diese Situation in den 24 Untersuchungsmonaten viermal, in Sandkrug siebenmal auf. In Augustendorf wurde mit 3 prägnanten Emissionsphasen innerhalb der 17-monatigen Messperiode eine ähnliche Häufung wie in Holdorf festgestellt. Stärkere Emissionen wurden durch Unterschreitungen der Außenluftkonzentrationen um 130 bis 140 % gegenüber den Konzentrationen im Bestand in Sandkrug und Augustendorf festgestellt (Abbildung 6.10). Demgegenüber lagen die  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen im Bestand in Holdorf generell deutlich unter den Werten in der Außenluft. Dies ist vermutlich auch auf eine einheitlichere Oberflächenstruktur dieses Kiefernbestandes zurückzuführen, wodurch der Luftaustausch geringer als in Augustendorf und Sandkrug sein dürfte.

Die zwischen Januar 2002 bis Oktober 2003 an 3 Standorten (Augustendorf, Holdorf, Sandkrug) gleichzeitig gemessenen  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen gibt Abbildung 6.11 wieder. Wennleich die Messhöhen z.T. deutlich voneinander abweichen, wird das Belastungsniveau in räumlich und zeitlicher Ausprägung deutlich erkennbar.

Zeitweilig hohe  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen von über  $12 \mu\text{g m}^{-3}$  im 4-Wochen-Mittel wurden an Standorten Augustendorf und Holdorf gemessen. Über den gesamten Vergleichszeitraum waren die mittleren  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen mit 8,5 bzw. 8,8  $\mu\text{g m}^{-3}$  hier nahezu gleich.

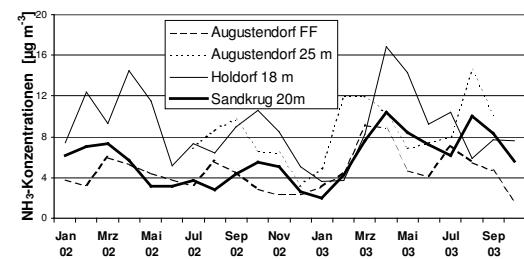


Abbildung 6.11:  
4-Wochen-Mittel der  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen in der Luft an drei Messtandorten

Auf der Freifläche in Augustendorf war das Belastungsniveau in der Messhöhe von 5,3 m mit 4,6  $\mu\text{g m}^{-3}$  im Mittel deutlich niedriger. Am Standort Sandkrug lagen die  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen in einer Messhöhe von ca. 20 m in vergleichbarer Größenordnung ( $5,8 \mu\text{g m}^{-3}$ ). Hier spielt vermutlich die geringere Anzahl von tierhaltenden Betrieben in der näheren Umgebung eine entscheidende Rolle.

In Augustendorf wurden Konzentrationsmessungen mit IVL-Passiv-Sammeln in ca. 4 m Höhe und mit Blatter/Neftel-Sammeln in ca. 2 m über dem Bestand vorgenommen. Die IVL-Sammeln wurden im vierwöchigen Rhythmus beprobt, die Blatter/Neftel-Sammeln im wöchentlichen Rhythmus. Der Wechsel erfolgte wie bei den Denudern dienstags, so dass die Expositionszeiträume (mit Ausnahme der Stunden des Wechsels, bei denen die Denuder nicht laufen) übereinstimmen. In Kronenhöhe befanden sich IVL-Sammeln in 15 m Höhe am Turm und Blatter/Neftel-Sammeln in gleicher Höhe zwischen Turm und Stamm einer benachbarten Kiefer.

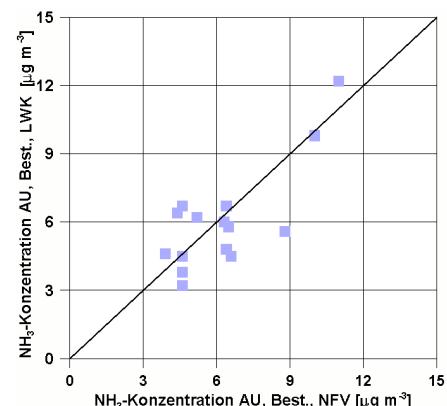


Abbildung 6.12:  
Vergleich von Monatsmitteln der  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen im Bestand in Stammnähe und am Turm, gemessen mit IVL-Sammeln (NFV) und Blatter/Neftel-Sammeln (LWK)

Die Zusammenhänge zwischen den Konzentrationen werden in Abbildung 6.12 veranschaulicht.

Die beiden Sammler spiegeln unterschiedliche Abstände zur wirksamen Senke wider. Bedenkt man, dass der typische Fehler dieser Messungen in der Größenordnung von  $0,5 \mu\text{g m}^{-3}$  liegt, so ist die Übereinstimmung akzeptabel.

#### 6.4 Untersuchungen zur Repräsentativität der Konzentrationsmessungen über der Freifläche im Hinblick auf die Verhältnisse über und im Bestand

Die Messungen über der „Freifläche“ sollten dazu dienen, relevante Konzentrationen für die Berechnung der Flüsse zwischen Bestand und Atmosphäre zu gewinnen. Ursprünglich war angenommen worden, dass eine Messhöhe von etwa 5,5 m einer Höhe von etwa 2 bis 3 m über  $d + z_0$  des auf der „Freifläche“ wachsenden, offenen und jungen Kiefernbestandes entspricht. Dies sollte experimentell belegt werden.

Ein Vergleich von über und im Bestand gemessenen Konzentrationen mit den über der Freifläche gemessenen zeigt, dass die Messungen am Turm im Bestand in 15 m Höhe und die Denudermessungen in der Freifläche in 5,3 m Höhe recht gut übereinstimmen, die Messungen oberhalb der Bestände (etwa 10 m über  $d + z_0$ ) zwar in der gleichen Größenordnung sind, jedoch im Einzelfall deutlich voneinander abweichen können (Abbildung 6.13 und 6.14). (Der als x angegebene Wert in Abbildung 6.13 wird als Ausreißer angesehen.)

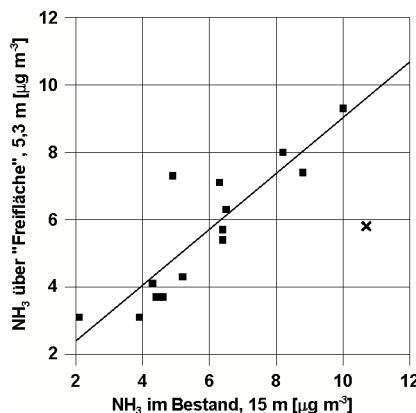


Abbildung 6.13:  
Im Bestand gemessene NH<sub>3</sub>-Konzentrationen (IVL-Passiv-Sammler) und mit Denudern über der Freifläche gemessene Konzentrationen. Monatsmittel. Die Regression berücksichtigt den Ausreißer (Februar 2003) nicht.

Die im Bestand durchgeführten Messungen wurden mit Konzentrationsprofilen verglichen. Hieraus sollte eine Information über die Lage der Messhöhe im Bezug auf  $d$  und  $z_0$  erhalten werden.

Für das Profil ergaben  $d = 2 \text{ m}$  und  $z_0 = 0,3 \text{ m}$  die höchsten Korrelationskoeffizienten, wenn man die Konzentrationen gegen die normierte Höhe  $z_{\text{norm}}$  aufträgt, wobei

$$z_{\text{norm}} = \ln \frac{z - d}{z_0}$$

ist.

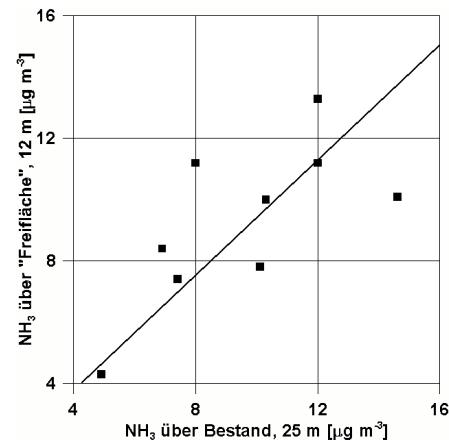


Abbildung 6.14:  
Über dem Bestand und über der Freifläche gemessene NH<sub>3</sub>-Konzentrationen (beide mit IVL-Passiv-Sammlern) Monatsmittel.

Durch graphische Auswertung von Darstellungen in Abbildungen 6.15 und 6.16 wird deutlich, dass die Messhöhe im Wald 2,5 bis 4 m über  $d + z_0$  liegen kann.

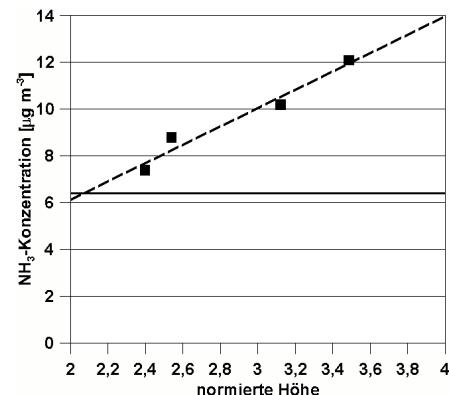


Abbildung 6.15:  
Einordnung der Konzentrationsmessung im Bestand (Mast,  $z = 15 \text{ m}$ ,  $\rho_{\text{NH}3} = 6,4 \mu\text{g m}^{-3}$ ) in das Profil oberhalb der „Freifläche“. Der normierten Höhe des Schnittpunktes der Regressionsgeraden entspricht ein  $z = 4,5 \text{ m}$  bzw. von  $d + z_0 + 2,2 \text{ m}$  (Juli 2003).

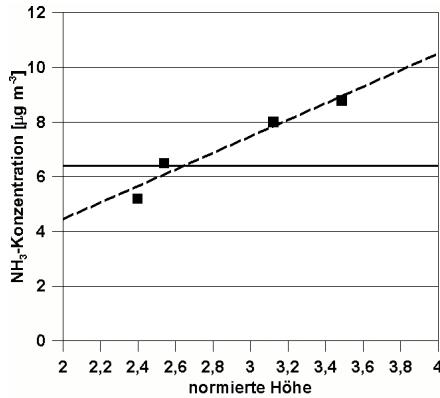


Abbildung 6.16:

Einordnung der Konzentrationsmessung im Bestand (Mast,  $z = 15$  m,  $\rho_{\text{NH}_3} = 6,4 \mu\text{g m}^{-3}$ ) in das Profil oberhalb der „Freifläche“. Der normierten Höhe des Schnittpunktes der Regressionsgeraden entspricht ein  $z = 6,5$  m bzw. von  $d + z_0 + 4,2$  m (Juni 2003).

#### 6.4.1 Regionaler Vergleich

Die zeitliche und die räumlich Repräsentativität der gemessenen Konzentrationen ist zu untersuchen.

Konzentrationsmessungen über längere Zeiträume wurden in Holdorf und Sandkrug durchgeführt. Sie wurden allerdings mit anderen Messmethoden durchgeführt und sind nur bedingt vergleichbar.

##### 6.4.1.1 Nasschemische Messungen der $\text{NH}_x$ -Konzentrationen in der Umgebungsluft an den Messstellen Holdorf und Sandkrug

Die Ergebnisse der bereits seit 1996 auf nasschemischem Wege mit Hilfe von Impingern durchgeführten Messungen der  $\text{NH}_x$ -Konzentrationen in der Luft über den Beständen Holdorf und Sandkrug sind in Abbildung 6.17 dargestellt. Sie zeigt das erwartete Bild mit Konzentrationsmaxima im Frühjahr. Bis zum Projektbeginn 2001 war ein leicht rückläufiger Trend festzustellen.

Das unterschiedliche Konzentrationsniveau der beiden Messstellen ist erkennbar. Der Mittelwert der zwischen 1996 und 2001 gemessenen  $\text{NH}_x$ -Konzentrationen beträgt für Holdorf 5,9 und für Sandkrug  $3,6 \mu\text{g m}^{-3}$ .

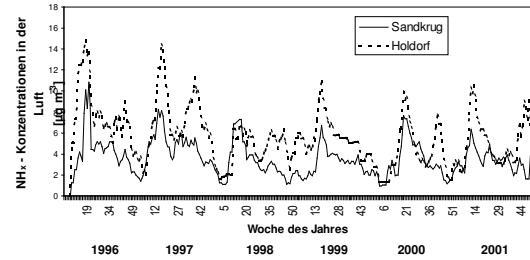


Abbildung 6.17:

Verlauf der  $\text{NH}_x$ -N-Konzentrationen in der Luft über den Kiefernbeständen in Holdorf und Sandkrug.

Der bereits bei den  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen festgestellte 2-gipflige Verlauf wird in jedem Jahresgang der  $\text{NH}_x$ -Konzentrationen mehr oder minder deutlich. Lediglich im nasskalten Jahr 1998 kam dieser durch die langfristige Bodenverwässerung, die damit verbundene Zeitverzögerung bei der Gülleausbringung und die reduzierte  $\text{NH}_3$ -Freisetzung deutlich weniger zum Ausdruck. Nach der messtechnischen Umstellung im April 2002 lagen die gemessenen  $\text{NH}_x$ -Konzentrationen mit  $14,6 \mu\text{g m}^{-3}$  N in Holdorf und  $9,8 \mu\text{g m}^{-3}$  N in Sandkrug deutlich über den Vorjahreswerten (Abbildung 6.18).

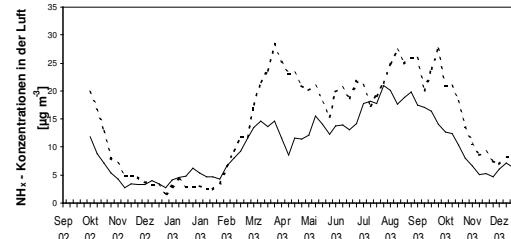


Abbildung 6.18:

Verlauf der  $\text{NH}_x$ -Konzentrationen in der Luft über den Kiefernbeständen in Holdorf und Sandkrug.

Das Impinger-Verfahren ist kein wohldefiniertes Verfahren. Es ist zwar anzunehmen, dass die Differenz zu den parallel gemessenen  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen aus dem zusätzlich erfassten Anteil von partikulärem  $\text{NH}_4$  herröhrt; ob diese Annahme quantitativ belastbar ist, soll ebenfalls untersucht werden. Der Vergleich von  $\text{NH}_3$ -N-Konzentrationen (Passiv-Sammler) und  $\text{NH}_x$ -N-Konzentrationen (Impinger) in Holdorf und Sandkrug (Abbildungen 6.19 und 6.20, vgl. Abbildung 4.27 und 4.28) macht deutlich, dass die Annahme qualitativ zutrifft. Sie lässt ebenfalls erkennen, dass die  $\text{NH}_3$ -Belastung in Sandkrug geringer, die Schwebstaub-N-Belastung aber offensichtlich deutlich höher sein sollte.

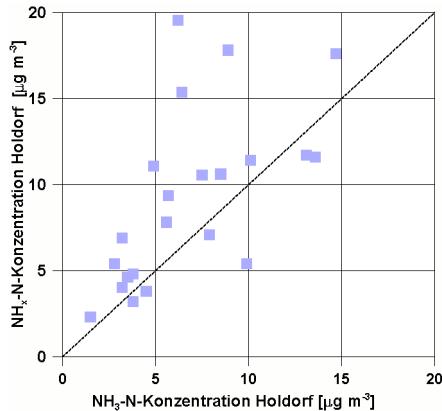


Abbildung 6.19:  
Vergleich von Monatsmitteln der NH<sub>3</sub>-N- und NH<sub>x</sub>-N-Konzentrationen in Holdorf

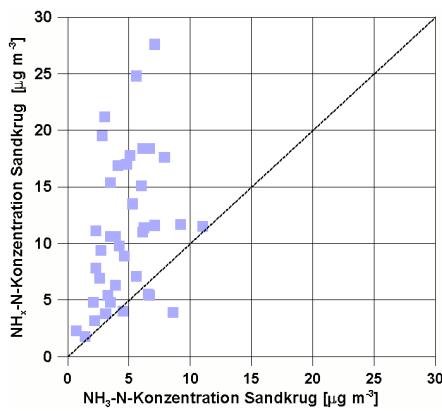


Abbildung 6.20:  
Vergleich von Monatsmitteln der NH<sub>3</sub>-N- und NH<sub>x</sub>-N-Konzentrationen in Sandkrug

Nimmt man an, dass die Differenz von NH<sub>x</sub>-N-Konzentrationen (Impinger) und von NH<sub>3</sub>-N-Konzentrationen (Passiv-Sammler) ein Maß für die NH<sub>4</sub>-N-Konzentration im Schwebstaub ist, so müsste bei größerräumig vergleichbaren Schwebstaub-Konzentrationen ein Zusammenhang mit den Messwerten in Augustendorf (Denuder-Filter) erkennbar sein. Abb. 6.21 macht deutlich, dass dieser Weg nicht gangbar ist: Die Differenz kann in einem Ausmaß negativ sein, das mit Messfehlern nicht mehr zu beschreiben ist; ein Zusammenhang mit den Daten aus Augustendorf ist weder für Holdorf noch für Sandkug zu erkennen.

Dagegen lässt sich beim Vergleich der mit Passiv-Sammlern erhaltenen Konzentrationen über dem Wald (Abbildungen 6.22 und 6.29) erkennen, dass es angemessen ist, für Holdorf von

mit Augustendorf vergleichbaren Belastungen auszugehen; in Sandkrug ist die NH<sub>3</sub>-Belastung größtenteils halb so groß wie in Augustendorf. Die relativ gute Korrelation deutet darauf hin, dass bei gleichen Quelltypen offenbar unterschiedliche Quellstärken in der näheren Umgebung vorliegen. Dies ist im Einklang mit dem räumlichen Muster der Emissionsinventare (Döhler et al. 2002).

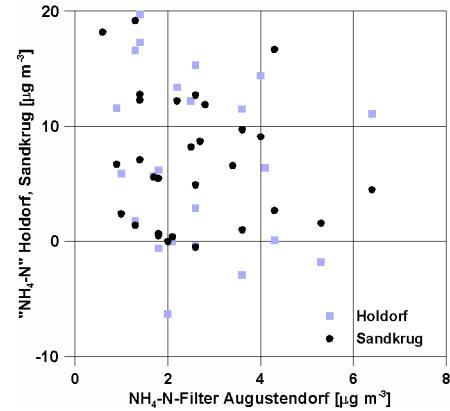


Abbildung 6.21:  
Vergleich von Monatsmitteln der NH<sub>4</sub>-N-Konzentrationen in Augustendorf (Denuder-Filter-Messungen) mit den Differenzen aus NH<sub>x</sub>-Messungen (Impinger) und NH<sub>3</sub>-Messungen (Passiv) in Holdorf und Sandkrug

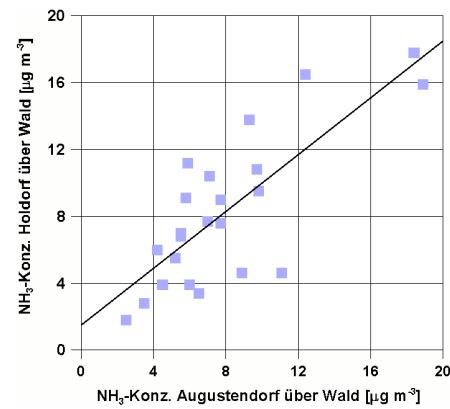


Abbildung 6.22:  
Vergleich von Monatsmitteln der NH<sub>3</sub>-Konzentrationen über Wald in Augustendorf und Holdorf (Passiv-Sammler)

Tabelle 6.1:

Monatsmittel der Konzentrationen von Spurengasen und Schwebstaub-Inhaltsstoffen, Augustendorf, Freifläche. Messhöhe 5,3 m, Mittelwerte aus Tag- und Nachtmessungen berechnet aus Wochendaten. In  $\mu\text{g m}^{-3}$  der angegebenen Spezies.

Jahr	Monat	Gase					Schwebstaub-Bestandteile				
		$\text{NH}_3$	$\text{HNO}_2$	$\text{HNO}_3$	$\text{SO}_2$	$\text{HCl}$	$\text{NH}_4\text{-N}$	$\text{NO}_3\text{-N}$	$\text{SO}_4\text{-S}$	$\text{Cl}$	$\text{Na}$
2001	8	5,25	0,22	1,35	1,78		1,84	0,56	1,41	0,51	
	9	3,31	0,18	0,41	0,85	0,19	1,02	0,49	0,70	0,87	0,37
	10	5,68	0,74	0,45	1,72		4,14	2,46	2,36	1,04	0,68
	11	3,09	0,70	0,73	1,61	1,02	1,63	1,04	0,81	1,22	0,75
	12	2,83	0,73	0,69	1,26	0,47	2,86	1,57	1,35	0,90	0,25
	1	3,80	1,42	0,66	2,13	0,46	3,05	1,75	1,58	1,82	
2002	2	3,26	0,32	0,58	1,71		1,13	0,75	0,80	1,51	
	3	5,98	0,29	0,48	1,81	0,32	3,24	1,64	1,43	2,12	
	4	5,36	0,29	0,52	2,03	0,33	4,26	2,42	2,02	0,84	
	5	4,39	0,30	0,69	1,62	0,79	3,24	1,30	1,80	0,75	
	6	3,82	0,38	1,02	1,51	0,67	3,51	0,63	1,52	0,66	
	7	3,22	0,28	0,57	1,26	0,48	1,74	0,59	1,26	0,85	
	8	5,59	0,42	0,80	1,50	0,24	2,45	0,85	1,60	0,80	
	9	4,55	0,40	0,41	1,25	0,18	1,54	0,66	1,05	0,73	
	10	2,93	0,41	0,25	1,04	0,32	1,78	0,93	0,82	0,86	
	11	2,37	0,63	0,25	0,72	0,24	3,45	1,77	1,28	1,39	
	12	2,35	1,31	0,50	2,58	0,43	5,56	1,63	2,13	1,32	
2003	1	3,07	1,22	0,61	3,89	0,30	3,32	1,81	1,33	2,49	
	2	4,44	0,75	0,53	1,81	0,18	5,80	3,03	2,91	1,15	
	3	9,11	0,63	0,67	2,44	0,38	6,30	3,77	2,32	1,71	
	4	8,85	0,20	0,30	1,17	0,18	1,80	1,06	0,70	1,19	
	5	4,69	0,29	0,61	1,71	0,14	2,43	1,20	1,29	0,96	0,39
	6	4,16	0,33	1,10	1,18	0,33	1,64	0,74	1,05	1,13	0,18
	7	7,11	0,38	2,02	1,07	0,31	1,69	0,62	1,72	0,62	
	8	5,50	0,57	0,74	1,55	0,41	1,33	0,64	1,09	0,53	
	9	4,71	0,66	0,77	1,90	0,48	2,80	1,34	1,28	0,83	
	10	1,64	0,31	0,09	0,60	0,12	0,73	0,55	0,49	0,28	

Tabelle 6.2:

Monatsmittel der Konzentrationen von Spurengasen, Augustendorf, Messungen mit Passiv-Sammeln. Freifläche und Turm. Konzentrationen in  $\mu\text{g m}^{-3}$  der angegebenen Spezies.

Monat	Augustendorf Freifläche				Turm 15 m				Turm 25 m			
	$\text{NH}_3$	$\text{NO}_2$	$\text{O}_3$	$\text{SO}_2$	$\text{NH}_3$	$\text{NO}_2$	$\text{O}_3$	$\text{SO}_2$	$\text{NH}_3$	$\text{NO}_2$	$\text{O}_3$	$\text{SO}_2$
2002	1	3,1	21,8	31,2	1,8							
	2	3,5	12,4	49,4	1,6							
	3	5,9	8,7	49,1	1,5							
	4	10,3	7,9	53	1	6,3	8,9	60,5	1,4	9,4	9,1	65,1
	5	3,4	6,5	55	0,1	5	7,7	59	1,4	6,2	7,8	64
	6	3	5,1	53,1	2,1	4,5	7,1	68,7	1,6	7	7,2	66,5
	7	3,3	5,8	47,2	1,1	4,5	6,3	60,5	1,6	6,9	6,8	64,7
	8	3,1	5,7	36,0	0,9	6,3	7,9	58,3	2,0	8,7	8,4	68,3
	9	3,8	8,2	36,0	0,9	6,5	9,8	49,4	1,4	9,7	10,4	52,6
	10	2,8	10,6	28,5	1,1	4,3	14,2	32,4	1,6	6,6	16,0	37,6
	11	2,3	12,5	11,8	1,2	4,4	18,9	19,0	1,5	6,4	21,6	17,9
	12	1,5	13,7	16,5	3,1	2,1	16,5	17,2	3,4	3,2	18,1	21,1
2003	1	2,4	16,5	34,2	2,0	3,9	18,0	34,1	2,2	4,9	17,7	36,2
	2	5,9	18,6	24,8	2,5	10,7	21,3	28,9	3,3	12,0	21,3	31,6
	3	6,8	9,2	49,0	1,8	10,0	11,0	63,0	2,5	12,0	11,0	63,0
	4	6,2	7,7	65,6	1,9	8,2	8,8	74,9	2,4	10,3	8,6	80,4
	5	3,3	6,0	54,4	1,2	4,9	7,3	62,5	1,5	6,9	7,2	74,2
	6	3,4	6,5	59,2	1,3	6,4	6,7	71,4	1,8	7,4	6,8	74,3
	7	4,0	6,8	58,4	1,2	6,4	7,7	66,9	1,6	8,0	7,5	74,8
	8	6,2	8,4	61,5	1,6	8,8	8,9	72,9	2,0	14,6	9,0	78,5
	9	4,7	10,2	36,9	1,4	11,0	12,3	52,2	2,3	10,1	12,6	60,4
	10	2,1	12,6	26,4	1	3,7	16,3	31,3	1,6	6,2	17,6	36
	11	3,8	18,7	11,2	1,4	10	21,2	13,6	2	6,7	23,1	16
	12	2,1	17,4	23,9	1,5	4,1	19,6	32,5	2	5,9	20,8	27,2

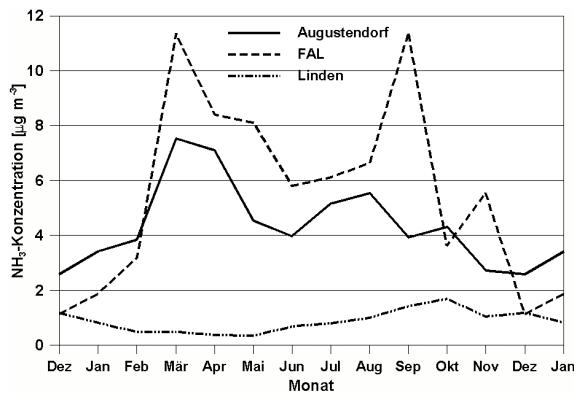


Abbildung 6.23:  
Mittlere Jahresgänge der NH<sub>3</sub>-Konzentrationen an unterschiedlichen Standorten. Zu Einzelheiten siehe Text.

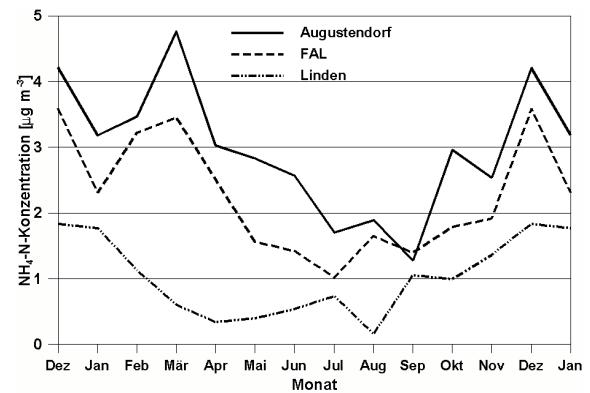


Abbildung 6.26:  
Mittlere Jahresgänge der NH<sub>4</sub>-N-Konzentrationen an unterschiedlichen Standorten. Zu Einzelheiten siehe Text.

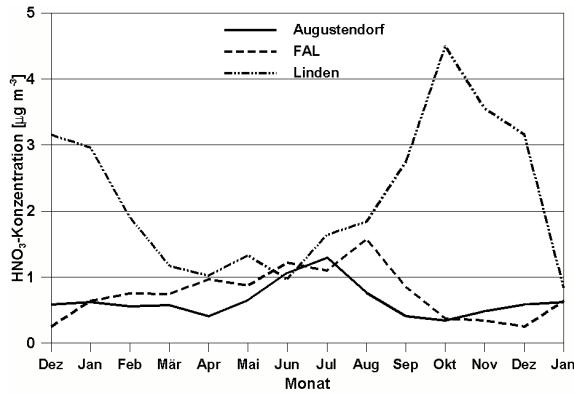


Abbildung 6.24:  
Mittlere Jahresgänge der HNO<sub>3</sub>-Konzentrationen an unterschiedlichen Standorten. Zu Einzelheiten siehe Text.

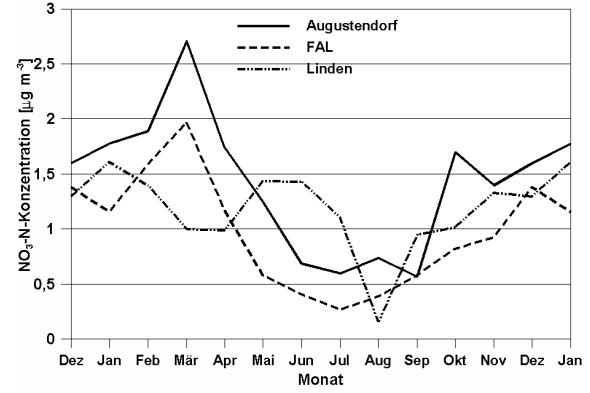


Abbildung 6.27:  
Mittlere Jahresgänge der NO<sub>3</sub>-N-Konzentrationen an unterschiedlichen Standorten. Zu Einzelheiten siehe Text.

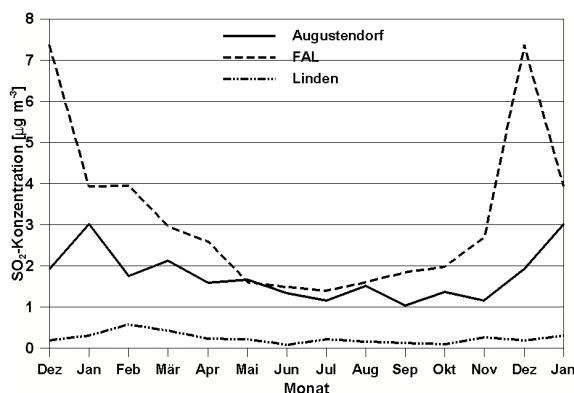


Abbildung 6.25:  
Mittlere Jahresgänge der SO<sub>2</sub>-Konzentrationen an unterschiedlichen Standorten. Zu Einzelheiten siehe Text.

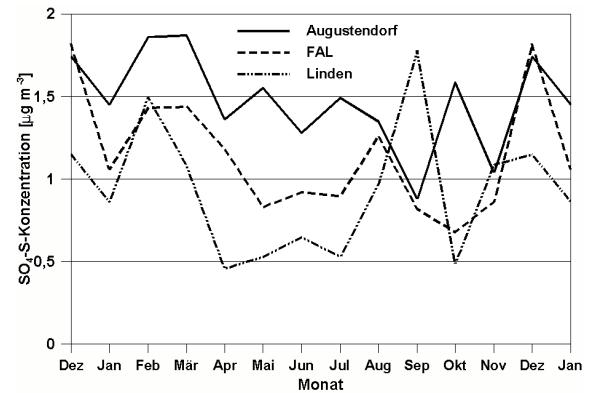


Abbildung 6.28:  
Mittlere Jahresgänge der SO<sub>4</sub>-S-Konzentrationen an unterschiedlichen Standorten. Zu Einzelheiten siehe Text.

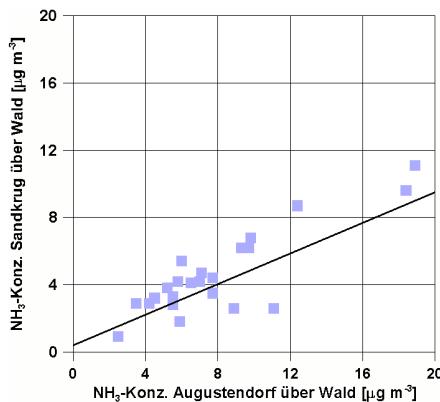


Abbildung 6.29:  
Vergleich von Monatsmitteln der NH<sub>3</sub>-Konzentrationen über Wald in Augustendorf und Holdorf (Passiv-Sammler)

#### 6.4.1.2 Ammoniak-Konzentrationen am Standort Bösel

Im Jahr 2002 wurde zwischen dem Niedersächsischen Landesamt für Ökologie (NLÖ), LWK-WE und FAL vereinbart, am Standort Bösel des NLÖ (etwa 20 km NO von Augustendorf) Vergleichsmessungen von NH<sub>3</sub>-Konzentrationen durchzuführen. Neben den im ANSWER-Projekt eingesetzten Passiv-Sammeln setzt NLÖ ein in Erprobung befindliches Konverter-Gerät ein. Die Messungen mit den Passiv-Sammeln begannen im August 2002. Das Konvertergerät arbeitet seit Juni 2002 im wesentlichen zufriedenstellend.

Die erheblichen Unterschiede zwischen den NH<sub>3</sub>-Konzentrationen in bzw. über dem Wald (Augustendorf) und über landwirtschaftlichen Nutzflächen gehen beispielhaft aus Abbildung 6.30 hervor.

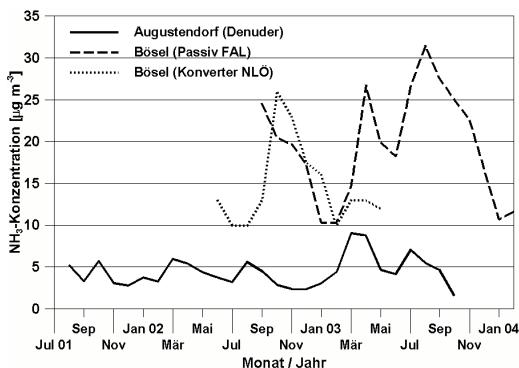


Abbildung 6.30:  
NH<sub>3</sub>-Konzentrationen über dem Wald, Denuder-Filter-Daten, und in der Umgebungsluft bei Bösel, Passiv-Sammler-Daten FAL. Konverter-Daten aus Bächlin et al. (2003).

#### 6.4.2 Überregionaler Vergleich

Die Daten aus den beiden vollständigen Messjahren 2002 und 2003 sind in Tabelle 6.1 zusammengestellt. Sie werden zunächst mit gleichartigen Datensätzen verglichen (Abbildungen 6.23 bis 6.28). Hierzu dienen folgende Messstellen:

- FAL, westlich von Braunschweig: eigene laufende Messungen
- Linden in der Nähe von Gießen, eigene laufende Messungen
- Rotenkamp, östlich von Braunschweig: Zimmerling et al. (1996b)
- Müncheberg, zwischen Berlin und Frankfurt/O., und Britz, nordöstlich von Eberswalde: Zimmerling et al. (2000), Zimmerling und Dämmgen (2002).

Die bei Dämmgen und Sutton (2001) zusammengestellten mittleren Konzentrationsdaten für NH<sub>3</sub> und NH<sub>4</sub>-N im Schwebstaub lassen erkennen, dass die Atmosphäre über dem Kiefernbestand von Augustendorf der einer durch intensive Viehhaltung geprägten Situation in der Nähe der Tierhaltungsanlagen selbst entspricht. Hierauf weist auch der Vergleich der Daten mit denen von Braunschweig (FAL) hin. Als typische Konzentrationen über Wäldern sind eher solche im Bereich von 1 µg m<sup>-3</sup> anzusehen.

Die Konzentrationen der Säure HNO<sub>3</sub> sind außerordentlich gering. Sie entsprechen denen der FAL; beide sind durch jedoch das hohe NH<sub>3</sub>-Angebot geprägt und entsprechen größtenteils der jeweiligen Gleichgewichtskonzentration. Der Jahresgang folgt der Strahlungsintensität nicht.

Die Konzentrationen des Säurebildners SO<sub>2</sub> entsprechen denen der FAL. Sie sind sehr gering. Die Abbildung 6.25 veranschaulicht den Erfolg der Maßnahmen zur Luftreinhaltung im vergangenen Jahrzehnt (Zu Zeitreihen für Konzentrationen im Raum Braunschweig vgl. Grünhage et al. 1988).

Die in der gesamten Region Nordwest-Niedersachsen erhöhten NH<sub>3</sub>-Emissionen führen offenbar zu hohen Konzentrationen von Sekundärstäuben, deren wesentliche Bestandteile NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> und (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> sind. Diese Aerosole sind jedoch nicht mehr – wie noch vor einem Jahrzehnt – vornehmlich durch (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> geprägt, sondern eher durch NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>: Der wasserlösliche Massenanteil am Schwebstaub (PM<sub>2,5</sub>) bestand in den Monaten Januar bis März zu etwa 50 % aus NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>, zu etwa 30 % aus (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> und zu 20 % aus NaCl.

#### 6.4.3 Messungen an Schwebstaub-Inhaltsstoffen am Standort Bösel

Im Rahmen eines Projektes führte das Niedersächsische Landesamt für Ökologie (NLÖ) am Standort Bösel vom 1.1.02 bis zum 1.4.03 Untersuchungen zur Belastung der Umgebungsluft mit Schwebstäuben PM10 durch (Bächlin et al. 2003). Hierbei wurden auch Staubinhaltsstoffe analysiert. Ein Vergleich zwischen den in Augustendorf mit Denuder-Filter-Sammeln bestimmten Daten für einen Teil des Schwebstaubs (den wasserlöslichen Teil mit  $\text{NH}_4$ ,  $\text{NO}_3$ ,  $\text{SO}_4$ ,  $\text{Cl}$  und  $\text{Na}$ , genannt {PM 2.5}) ergab im wesentlichen eine gute Übereinstimmung: Die Zusammensetzung des löslichen Teils ist angesichts der Entfernung und der Tatsache, dass in Bösel PM10, in Augustendorf aber PM2.5 erfasst wurden, im Mittel gut vergleichbar (Abbildung 6.31).

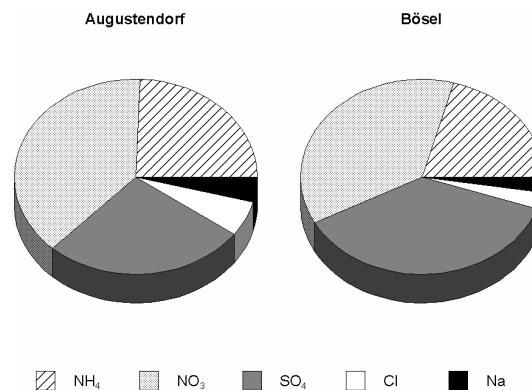


Abbildung 6.31  
Zusammensetzung der Schwebstäube in Augustendorf (Denuder-Filter-Sammler, PM 2.5, und Bösel, PM 10). Mittelwert (April 02 bis März 03)

Auffällig ist der größere Anteil an  $\text{NH}_4\text{NO}_3$  in Augustendorf, ebenso der größere  $\text{NaCl}$ -Anteil. Nahezu 50 Gewichts-% der in Bösel gemessenen Stäube entfallen auf die hier beschriebene lösliche anorganische Fraktion.

Die während der Zeit von März 2002 bis Oktober 2003 parallel gemessenen Staubinhaltsstoff-Konzentrationen {PM 2.5} und die gravimetrischen Staubkonzentrationen PM 10 in Bösel korrelieren recht gut miteinander (Abbildung 6.32). Bächlin et al. (2003) berichten keine Zeitreihen von Analysen der Inhaltsstoffe, so dass sich weitgehende Vergleiche verbieten. Es erscheint in jedem Fall bemerkenswert, dass deutlich erkennbar ist, in welchem Maße eine Reduktion von  $\text{NH}_3$ -Emissionen zur Verringerung der Belastung der Umgebungsluft mit Schwebstäuben beitragen könnte.

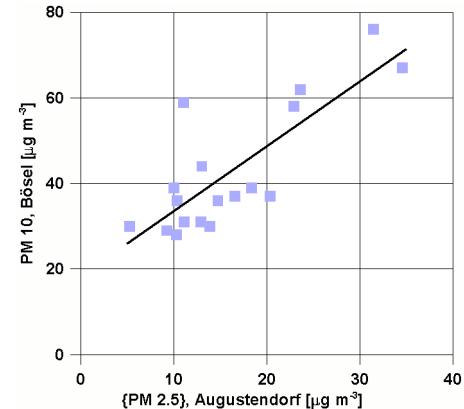


Abbildung 6.32:  
Zusammenhang zwischen dem löslichen Anteil der N- und S-Spezies sowie von Na und Cl am Schwebstaub {PM 2.5} in Augustendorf und der Schwebstaub-Konzentration (PM 10) in Bösel.

#### 6.5 Literatur

- Bächlin W, Lohmeyer A, Kuhlbach T, Dreiseidler A, Baumbach G, Giesen K-P, Heits B, Müller WJ, Klasmeier E, Schmidt H (2003) Aerosolbudget in einem landwirtschaftlich geprägten Gebiet in Niedersachsen. Schlussbericht Projekt 1890 des Niedersächsischen Landesamtes für Ökologie, Hannover. Ingenieurbüro Lohmeyer, Radebeul, 107 S.
- Dämmgen U, Mohr K, Meesenburg H (2005a) Die Bestimmung von Flüssen reaktiver Stickstoff-Spezies in hoch mit Stickstoff belasteten Waldökosystemen – methodische Grundlagen, Randbedingungen und Konzept der Messungen und Modellierungen im ANSWER-Projekt. Landbauforsch Völkenrode SH XXX, YY-ZZ.
- Dämmgen U, Schaaf S, Horváth B, Meesenburg H, Mohr K (2005b) Methoden zur Bestimmung von Stoffflüssen und -konzentrationen im ANSWER-Projekt. Landbauforsch Völkenrode SH XXX, YY-ZZ.
- Dämmgen U, Sutton MA (2001) Die Umwelt-Wirkungen von Ammoniak-Emissionen. In Ktbl (Hrsg.): Messmethoden für Ammoniak-Emissionen. Ktbl, Darmstadt, S. 14-25.
- Grünhage L, Dämmgen U, Jäger H-J (1988) Auswirkungen luftgetragener Stoffe auf Vegetation und Boden von Grünlandökosystemen. II. Die Entwicklung der Konzentrationen ausgewählter Luftinhaltsstoffe in Südostniedersachsen in den vergangenen zwei Jahrzehnten. Landbauforsch Völkenrode 38, 196-210.
- Meesenburg H, Mohr K (2005) Die Untersuchungsstandorte im ANSWER-Projekt. Landbauforsch Völkenrode SH XX, YY-ZZ.
- Meesenburg H, Mohr K, Dämmgen U, Schaaf S, Meiwes KJ, Horváth B (2005) Stickstoff-Einträge und -Bilanzen in den Wäldern des ANSWER-Projekts – eine Synthese. Landbauforsch Völkenrode SH XX, YY-ZZ.
- Mohr K, Meesenburg H, Dämmgen U (2005a) Die Stickstoff-Belastung von Waldökosystemen –

- Wirkungen, Wirkungspfade, offene Fragen, Gesamtkonzept. Landbauforsch Völkenrode SH XXX, YY-ZZ.
- Schaaf S, Meesenburg H (2005) Modellierung der Stoffflüsse in Waldbeständen im ANSWER-Projekt. Landbauforsch Völkenrode SH XX, YY-ZZ.
- Zimmerling R, Dämmgen U (2002) Concentrations of Air-Borne Acidifying and Eutrophying Species in the Schorfheide Nature Reserve in Brandenburg, Germany. *J Appl Bot* 76, 52-61
- Zimmerling R, Dämmgen U, Behrens U (2000) Konzentrationen versauernd und eutrophierend wirkender Spurengase und Aerosol-Bestandteile in Nordost-Brandenburg. Landbauforsch Völkenrode SH 213, 43-93.
- Zimmerling R, Dämmgen U, Küsters A, Wolff D (1996b) Konzentrationen von Luftinhaltsstoffen. II. non-criteria pollutants (N-, S- und Cl-Spezies). Landbauforsch Völkenrode SH 170, 222-273.

## 7 Stoff- und Energieflüsse der im ANSWER-Projekt untersuchten Waldbestände

K. Mohr<sup>1</sup>, S. Schaaf<sup>2</sup>, B. Horváth<sup>3</sup>, H. Meesenburg<sup>3</sup>, U. Dämmgen<sup>1</sup>

### 7.1 Energiebilanz am Standort Augustendorf

Die Ermittlung von Stoffflüssen in oder aus dem Bestand an dem Versuchsstandort setzt die Kenntnis der einzelnen Komponenten der Energiebilanz (Schaaf und Meesenburg 2004) voraus. Insbesondere ist die Messung bzw. Simulation des latenten Wärmestroms  $\lambda E$ , aus der sich der Bestandeswiderstand für Wasserdampf und für die einzelnen Spurengase ableiten lässt, von entscheidender Bedeutung bei der Quantifizierung der Stoffflüsse.

Im ANSWER-Projekt<sup>4</sup> waren direkte Messungen der latenten Wärme nicht verfügbar, so dass diese über die Penman-Monteith-Näherung im Modell parametrisiert werden musste. Die Anpassung und Qualitätssicherung der modellierten latenten Wärme konnte über einen Restgliedvergleich mit Hilfe der Energiebilanzgleichung geschehen, wobei die Nettostrahlung und der sensible Wärmestrom aus direkten Messgrößen zugänglich waren. Der Bodenwärmestrom wurde parametrisiert.

Abbildung 7.1 zeigt die mit dem Modell berechneten Monatsmittel der einzelnen Komponenten von Januar 2002 bis Oktober 2003 auf der Versuchsfläche Augustendorf. Deutlich erkennbar ist der strahlungsabhängige Verlauf der einzelnen Komponenten mit Maxima in den Sommermonaten. Der latente Wärmestrom wird bei ausreichendem Strahlungsangebot für Evaporation und Transpiration im wesentlichen von den Niederschlagsverhältnissen (siehe Schaaf et al. 2005a, Abbildung 6.2) bestimmt und liegt in den niederschlagsreichen Sommermonaten des Jahres 2002 deutlich

über dem fühlbaren Wärmestrom, während zu deutlich trockeneren Zeiten, vor allem im niederschlagsarmen Monat August des Jahres 2003, der größte Anteil der verfügbaren Energie im fühlbaren Wärmestrom zu finden ist. Der Bodenwärmestrom spielt im Vergleich zu den restlichen Komponenten nur eine untergeordnete Rolle im Energiehaushalt der Fläche.

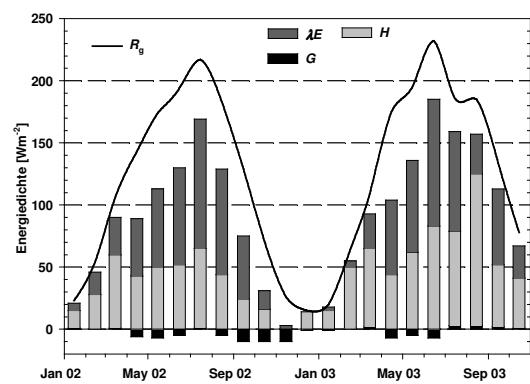


Abbildung 7.1:  
Monatsmittel der modellierten Energiebilanzkomponenten ( $\lambda E$  = Latenter Wärmestrom,  $H$  = fühlbarer Wärmestrom und  $G$  = Bodenwärmestrom) und der gemessenen Globalstrahlung ( $R_g$ ), Januar 2002 bis Oktober 2003, Augustendorf.

Aus der Kenntnis der latenten Wärmeströme erfolgt die Berechnung der Verdunstung bzw. Evapotranspiration für das Ökosystem (Abbildung 7.2). Es zeigen sich mit Ausnahme des sehr trockenen August 2003 nur geringfügige Unterschiede

<sup>1</sup> Landwirtschaftskammer Weser-Ems, Mars-la-Tour-Str. 9-13, 26121 Oldenburg, k.mohr@lwk-we.de

<sup>2</sup> Bundesforschungsanstalt für Landwirtschaft, Institut für Agrarökologie, Bundesallee 50, 38116 Braunschweig

<sup>3</sup> Niedersächsische Forstliche Versuchsanstalt, Grätzelstr. 2, 37079 Göttingen

<sup>4</sup> Zum Konzept des ANSWER-Projekts siehe Mohr et al. (2005) und Dämmgen et al. (2005a), zu den Standorten Meesenburg und Mohr (2005), zu den verwendeten Messverfahren und Modellen Dämmgen et al. (2005b) und Schaaf und Meesenburg (2005).

im Jahresvergleich der monatlichen Verdunstungen.

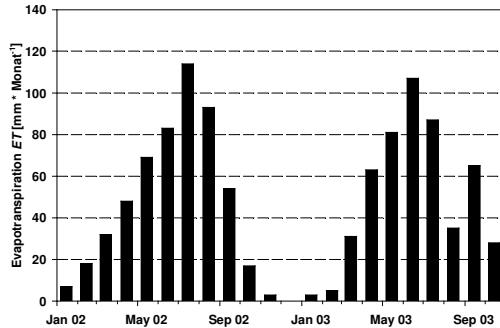


Abbildung 7.2:  
Modellierte monatliche Verdunstungsraten ( $ET$ ) für den Untersuchungszeitraum von Januar 2002 bis Oktober 2003 am Standort Augustendorf.

Im Mittel beträgt die Verdunstungsrate etwa  $520 \text{ mm a}^{-1}$ , was ungefähr 75 % des Jahresniederschlages entspricht.

Im Vergleich zu der mit PLATIN ermittelten Verdunstung liegt die mit dem Bodenwasserhaushaltmodell SIMPEL berechnete Verdunstung mit ca.  $690 \text{ mm a}^{-1}$  wesentlich höher (Abbildung 7.3). Insbesondere in den Wintermonaten ergeben sich deutlich höhere Verdunstungsraten, die vorwiegend als Interzeptionsverdunstung auftreten. Die modellierte Interzeption stimmt relativ gut mit der gemessenen überein. Daher kann angenommen werden, dass PLATIN die Gesamtverdunstung im Winter unterschätzt. Andererseits liegen die mit SIMPEL geschätzten Evapotranspirationsraten deutlich über den ermittelten Raten für vergleichbare Waldökosysteme: SIMPEL berechnet für den Standort Augustendorf eine mittlere Evapotranspiration für 2002 und 2003 von  $425 \text{ mm a}^{-1}$ . Van der Salm et al. (2004) berechneten mit einem auf der Richards-Gleichung beruhenden Wasserhaushaltmodell für 51 europäische Kiefernökosysteme mittlere Evapotranspirationsraten (Transpiration und Bodenevaporation). Die hierbei geschätzte Gesamtverdunstung für Kiefernökosysteme liegt mit  $520 \text{ mm a}^{-1}$  jedoch genau so hoch wie die mit PLATIN für Augustendorf berechnete Verdunstung. Es wird deshalb davon ausgegangen, dass SIMPEL die Verdunstung überschätzt und die PLATIN-Verdunstung die zutreffendere ist.

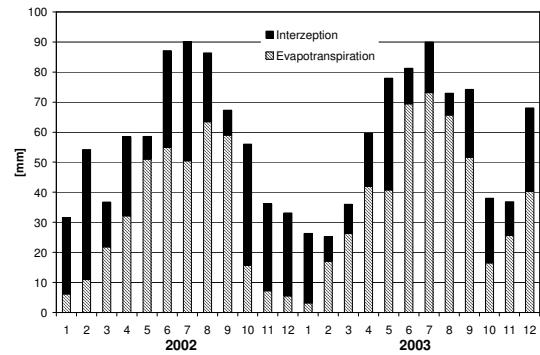


Abbildung 7.3:  
Mit SIMPEL modellierte monatliche Verdunstungsraten (Interzeption und Evapotranspiration) für den Untersuchungszeitraum von Januar 2002 bis Dezember 2003 am Standort Augustendorf.

## 7.2 Stoffkonzentrationen und -Flüsse aus der Gasphase am Standort Augustendorf

Zur Bestimmung der trockenen Spurengasflüsse von  $\text{NH}_3$ ,  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{HNO}_2$  und  $\text{SO}_2$  wurde das in Schaaf und Meesenburg (2005) beschriebene Widerstandsmodell benutzt. Die Berechnungen wurden auf Halbstundenbasis durchgeführt. Im folgenden werden die monatlich kumulierten trockenen Depositionen der Versuchsjahre 2002 und 2003 dargestellt.

### 7.2.1 Ammoniak

Abbildung 7.4 zeigt den Verlauf der  $\text{NH}_3$ -N-Einträge aus der trockenen Deposition und die gemessene  $\text{NH}_3$ -Konzentration während des Untersuchungszeitraumes auf der Versuchsfläche in Augustendorf. Deutlich erkennbar sind die Unterschiede im Konzentrations- und Depositionsverlauf der beiden Versuchsjahre: So zeichnet sich das ausgeprägte Maximum des Frühjahrs 2003 nur ansatzweise im Vorjahr ab. Eine Zuordnung der Ursache der hier deutlich geringeren Depositionen und Konzentrationen kann aus mangelnder Kenntnis der umgebenden landwirtschaftlichen Quellstärken an dieser Stelle nicht geschehen.

Die Minima der Depositionen werden in den Sommermonaten (Juli 2002 und Juni 2003) erreicht, die zum einen durch geringe  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen und zum anderen durch temperaturbedingte höhere Kompensationspunkte erklärt werden können.

Der durchschnittliche jährliche Gesamteintrag von  $\text{NH}_3$ -N ergibt sich zu etwa  $16 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  N bei einer mittleren  $\text{NH}_3$ -Konzentration von ca.  $4,5 \mu\text{g m}^{-3}$ .

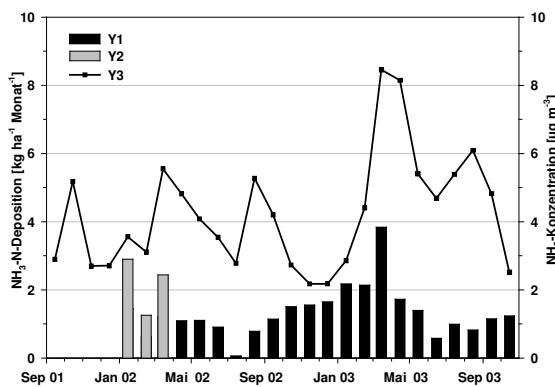


Abbildung 7.4:  
Monatliche  $\text{NH}_3$ -N-Depositionen (Y1: aus Messungen über der Versuchsfläche bestimmt; Y2: aus Messungen über der Freifläche geschlossen) und  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen (Y3). Augustendorf, Januar 2002 bis Oktober 2003.

### 7.2.2 Salpetersäure

Der Konzentrations- und modellierte Depositionsverlauf für  $\text{HNO}_3$  ist in der Abbildung 7.5 dargestellt. Dabei ist im Sommer 2003 ein deutliches Maximum der Depositionen zu finden, das durch die vermehrte Einstrahlung und die hohen  $\text{HNO}_3$ -Konzentrationen gedeutet werden kann.

Der durchschnittliche jährliche Gesamteintrag an  $\text{HNO}_3$ -N bei einer mittleren  $\text{HNO}_3$ -Konzentration am Standort von ca.  $0,6 \mu\text{g m}^{-3}$  in der Außenluft, ergibt hier eine Deposition von etwa  $3,0 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1} \text{ N}$ .

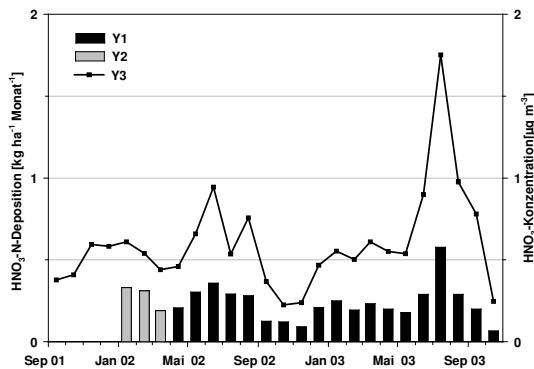


Abbildung 7.5:  
Monatliche  $\text{HNO}_3$ -N-Depositionen (Y1: aus Messungen über der Versuchsfläche bestimmt; Y2: aus Messungen über der Freifläche geschlossen) und  $\text{HNO}_3$ -Konzentrationen (Y3). Augustendorf, Januar 2002 bis Oktober 2003.

### 7.2.2 Salpetersäure

In der Abbildung 7.6 sind der Konzentrations- und modellierte Depositionsverlauf für  $\text{HNO}_2$  darge-

stellt. Maxima ergeben sich hier in den Wintermonaten, da aufgrund des geringeren Strahlungsangebotes vermehrt atmosphärisches  $\text{HNO}_2$  gebildet werden kann.

Insgesamt ergeben sich mittlere jährliche Einträge von  $\text{HNO}_2$ -N von etwa  $0,8 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1} \text{ N}$  bei einer mittleren Außenluftkonzentration von ca.  $0,5 \mu\text{g m}^{-3}$ .

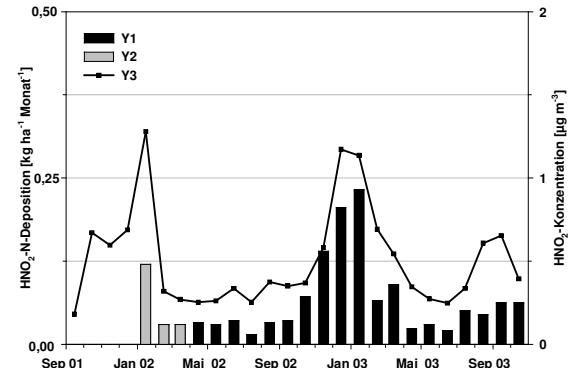


Abbildung 7.6:  
Monatliche  $\text{HNO}_2$ -N-Depositionen (Y1: aus Messungen über der Versuchsfläche bestimmt; Y2: aus Messungen über der Freifläche geschlossen) und  $\text{HNO}_2$ -Konzentrationen (Y3). Augustendorf, Januar 2002 bis Oktober 2003.

### 7.2.3 Stickstoffdioxid

Am Standort Augustendorf wurde im Jahr 2002 eine mittlere Konzentration von  $9,6 \mu\text{g m}^{-3}$   $\text{NO}_2$  und im Folgejahr eine durchschnittliche Konzentration von  $10,7 \mu\text{g m}^{-3}$  gemessen (Messturm,  $h = 15 \text{ m}$ ). Wie bei Dämmgen et al. (2005b) beschrieben, kann bei einer durchschnittlichen  $\text{NO}_2$ -Konzentration von  $10 \mu\text{g m}^{-3}$  von einem jährlichen Gesamteintrag bei etwa  $1$  bis  $2 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1} \text{ N}$  ausgegangen werden.

### 7.2.3 Schwefeldioxid

Konzentrations- und modellierter Depositionsverlauf für  $\text{SO}_2$  kann der Abbildung 7.7 entnommen werden. Die größten Depositionen treten generell aufgrund des vermehrten Heizens während der Wintermonate auf. Dabei sind die Depositionsmaxima durch den recht strengen Winter 2002/2003 (siehe Schaaf et al. 2005, Kapitel 6.1) erklärbar.

Im Durchschnitt betrug der Gesamteintrag an  $\text{SO}_2$ -S etwa  $4,2 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1} \text{ S}$ , die mittleren  $\text{SO}_2$ -Belastung am Standort von ca.  $1,6 \mu\text{g m}^{-3}$ .

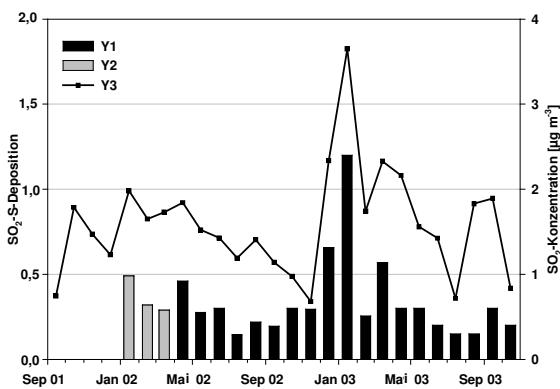


Abbildung 7.7:  
Monatliche SO<sub>2</sub>-S-Depositionen (Y1: aus Messungen über der Versuchsfläche bestimmt; Y2: aus Messungen über der Freifläche geschlossen) und SO<sub>2</sub>-Konzentrationen (Y3), Januar 2002 bis Oktober 2003, Augustendorf.

### 7.3 Konzentrationen und Flüsse von Schwebstaub-Inhaltsstoffen

Wie in Schaaf und Meesenburg (2005) beschrieben, ist die Deposition von Schwebstäuben und ihren Inhaltsstoffen eine Funktion der Oberflächenfeuchte und des atmosphärischen Widerstands. Die Berechnungen wurden für Halbstundenintervalle durchgeführt.

#### 7.3.1 Ammonium

Der zeitliche Verlauf der Konzentrationen und modellierte Depositionen von NH<sub>4</sub>-N ist in Abbildung 7.8 wiederzufinden. Die Depositionen weisen einen ähnlichen Verlauf wie die NH<sub>3</sub>-Depositionen (Abbildung 7.4) auf.

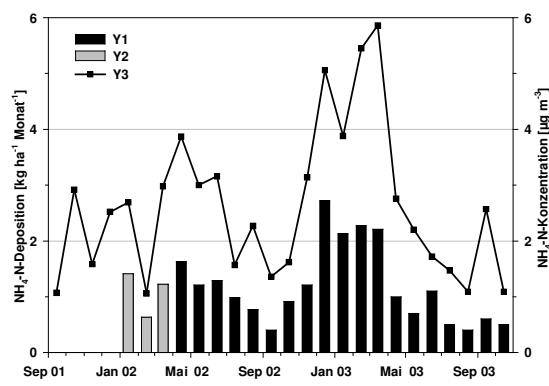


Abbildung 7.8:  
Monatliche NH<sub>4</sub>-N-Depositionen (Y1: aus Messungen über der Versuchsfläche bestimmt; Y2: aus Messungen über der Freifläche geschlossen) und -Konzentrationen (Y3). Augustendorf, Januar 2002 bis Oktober 2003.

Bei einer mittleren NH<sub>4</sub>-N-Konzentration von 2,7 µg m<sup>-3</sup> beträgt der jährliche Gesamteintrag an NH<sub>4</sub>-N etwa 14,0 kg ha<sup>-1</sup> a<sup>-1</sup> N.

#### 7.3.2 Nitrat

Die Konzentrationen- und modellierten Depositionen für NO<sub>3</sub>-N im Untersuchungszeitraum sind in der Abbildung 7.9 wiederzufinden. In den Winter- und Frühjahrmonaten sind sowohl die Nitrat-Konzentrationen als auch die Depositionen am ausgeprägtesten, wobei dieser Effekt im Versuchsjahr 2003 deutlicher hervortritt.

Der durchschnittliche jährliche Gesamteintrag an NO<sub>3</sub>-N beträgt etwa 8,2 kg ha<sup>-1</sup> a<sup>-1</sup> N bei einer mittleren NO<sub>3</sub>-Konzentration von ca. 1,3 µg m<sup>-3</sup>.

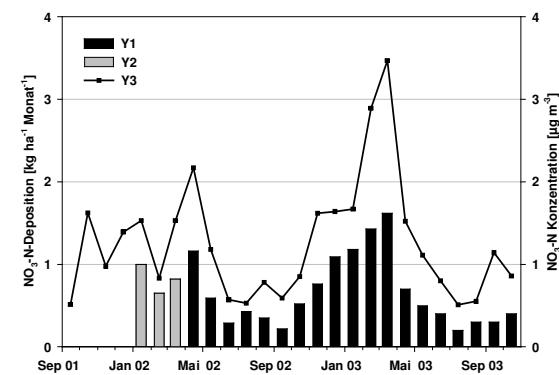


Abbildung 7.9:  
NO<sub>3</sub>-N-Deposition (Y1: aus Messungen über der Versuchsfläche bestimmt; Y2: aus Messungen über der Freifläche geschlossen) und -Konzentration (Y3). Augustendorf, Januar 2002 bis Oktober 2003.

#### 7.3.3 Sulfat

Die Konzentrationen- und modellierten Depositionen für SO<sub>4</sub>-S sind in der Abbildung 7.10 dargestellt. Der zeitliche Verlauf der Depositionen entspricht hier weitgehend dem der Außenluftkonzentrationen.

Als durchschnittlicher jährlicher Gesamteintrag ergeben sich 7,1 kg ha<sup>-1</sup> a<sup>-1</sup> SO<sub>4</sub>-S bei einer mittleren SO<sub>4</sub>-S-Belastung von 1,4 µg m<sup>-3</sup>.

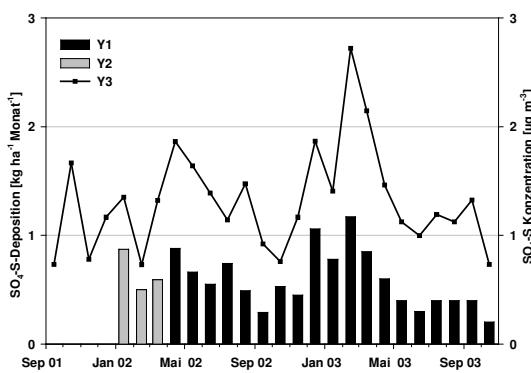


Abbildung 7.10:

Monatliche SO<sub>4</sub>-S-Depositionen (Y1: aus Messungen über der Versuchsfläche bestimmt; Y2: aus Messungen über der Freifläche geschlossen) und -Konzentrationen (Y3). Augustendorf, Januar 2002 bis Oktober 2003.

### 7.3.4 Chlorid

Der jahreszeitliche Verlauf von Konzentrationen und Depositionen von Cl sind in der Abbildung 7.11 dargestellt. Deutlich erkennbar sind die Maxima in den Wintermonaten sowohl in der Konzentration als auch in der Deposition.

Es ergeben sich mittlere jährliche Einträge von 13,5 kg ha<sup>-1</sup> a<sup>-1</sup> Cl bei einer mittleren Cl-Konzentration von ca. 1,1 µg m<sup>-3</sup>.

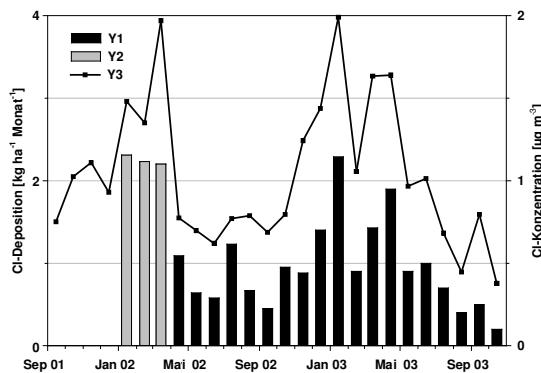


Abbildung 7.11:

Monatliche Cl-Depositionen (Y1: aus Messungen über der Versuchsfläche bestimmt; Y2: aus Messungen über der Freifläche geschlossen) und -Konzentrationen (Y3). Augustendorf, Januar 2002 bis Oktober 2003.

### 7.3.5 Natrium

Zur Bestimmung der Na-Einträge kann aufgrund fehlender Konzentrationsdaten keine direkte Modellierung der Schwebstaub-Deposition vorgenommen werden.

Als Alternative kommt die Bestimmung der Na-Deposition aus dem Chlorid-Eintrag zur Anwendung: Unter der Voraussetzung etwa equimo-

larer Verhältnisse (siehe Dämmgen et al. 2005), d.h. dass das Na-Aerosol ausschließlich als Kochsalz (NaCl) deponiert wird, und unter der Annahme gleicher Depositionsgeschwindigkeiten des Natrium- und Chlorid-Aerosols, kann der Na-Eintrag direkt aus den Cl-Depositionen geschlossen werden. Der jährliche Gesamteintrag an Na bei einer mittleren Na-Belastung am Standort von ca. 0,7 µg m<sup>-3</sup> in der Außenluft ergibt sich durchschnittlich zu etwa 8,8 kg ha<sup>-1</sup> a<sup>-1</sup> Na. Legt man ein Na-Cl-Verhältnis von etwa 0,85 mol mol<sup>-1</sup> wie im Meerwasser zugrunde, so ergibt sich ein Eintrag von etwa 7,6 kg ha<sup>-1</sup> a<sup>-1</sup> Na.

## 7.4 Trockene Deposition

Die Summe der mikrometeorologisch bestimmten trockenen N- und S-Einträge für die Jahre 2002 und 2003 gehen aus den Tabellen 7.1 und 7.2a hervor. Zur Vervollständigung der Datensätze wurden für die fehlenden monatlichen Gas- und Schwebstaub-Flüsse November und Dezember des Versuchsjahrs 2003 mittlere Depositionsraten angenommen.

Während die Einträge im Hinblick auf die S-Spezies für die beiden Versuchsjahre nahezu gleich sind (ca. 11 kg ha<sup>-1</sup> a<sup>-1</sup> S), unterscheiden sich die N-Einträge um etwa 16 %, was wir auf erhöhte NH<sub>3</sub>-Konzentrationen Anfang des Jahres 2003 zurückführen. Für den Standort Augustendorf wurde ein mittlerer N-Eintrag von 44 kg ha<sup>-1</sup> a<sup>-1</sup> N aus Gasen und Stäuben bestimmt.

Tabelle 7.1:

Trockene Deposition [kg ha<sup>-1</sup> a<sup>-1</sup> N] der N-Spezies für die Versuchsjahre 2002 und 2003 am Standort Augustendorf (berechnet aus mikrometeorologischen Messungen).

	2002	2003
NH <sub>3</sub> -N	13,1	19,3
NH <sub>4</sub> -N	14,4	13,7
NO <sub>3</sub> -N	7,9	8,4
HNO <sub>3</sub> -N	2,8	3,0
NO <sub>2</sub> -N	1,4	1,6
HNO <sub>2</sub> -N	0,8	0,8
N <sub>trocken</sub>	<b>40,4</b>	<b>46,8</b>

Für die S-Spezies und Na sind den mikrometeorologisch bestimmten Einträgen die nach Ulrich (1994) berechneten gegenüber gestellt (Tabelle 7.2b).

Tabelle 7.2a:

Trockene Deposition [ $\text{kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  S] der S-Spezies für die Versuchsjahre 2002 und 2003 am Standort Augustendorf (berechnet aus **makrometeorologischen** Messungen).

	2002	2003
$\text{SO}_2\text{-S}$	3,9	4,4
$\text{SO}_4\text{-S}$	7,6	6,6
<b>S<sub>trocken</sub></b>	<b>11,5</b>	<b>11,0</b>

Tabelle 7.2b:

Trockene Deposition [ $\text{kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ ] der gasförmig und partikulär deponierten S-Spezies sowie der partikulären Na-Deposition ( $\text{Na}_{\text{part}}$ ), berechnet nach Ulrich (1994) für die Versuchsjahre 2002 und 2003 am Standort Augustendorf.

	2002	2003
$\text{S}_{\text{gas}}$	-0,9	3,1
$\text{S}_{\text{part}}$	5,0	2,1
<b>Gesamt-S</b>	<b>4,2</b>	<b>5,2</b>
<b>Na<sub>part</sub></b>	<b>7,4</b>	<b>4,9</b>

Die Unterschiede sind erheblich und lassen sich durch andere S-Flüsse (z.B. über Streufall) erklären (vgl. Kap. 7.4.2 und Meesenburg et al. 2005).

#### 7.4.1 Depositionsgeschwindigkeiten

In Tabelle 7.3 sind die Jahresmittel der Depositionsgeschwindigkeiten für die untersuchten Gase und Schwebstaub-Bestandteile dargestellt. Als Datengrundlage dienten hierbei Monatsmittel der Depositionsgeschwindigkeiten.

Tabelle 7.3:

Mittlere Depositionsgeschwindigkeit  $v_d$  der Gase und Schwebstaub am Versuchsort Augustendorf für den Zeitraum 01-02 bis 10-03.

	$v_d$ [cm s <sup>-1</sup> ]
$\text{NH}_3$	1,55
$\text{HNO}_2$	1,55
$\text{HNO}_3$	6,91
$\text{NO}_2$	0,15
$\text{SO}_2$	1,58
HCl	6,90
$\text{NH}_4\text{-N}$	1,64
$\text{NO}_3\text{-N}$	2,00
$\text{SO}_4\text{-S}$	1,67
Cl	3,88

Die in Tabelle 7.3 wiedergegebenen Depositionsgeschwindigkeiten decken sich im wesentlichen mit den für Nadelwälder in der Literatur angegebenen.<sup>5</sup>

<sup>5</sup>  $\text{NH}_3$  über Fichte: Andersen et al. 1993, Andersen et al. 1999, Peters und Bruckner-Schatt 1995;  $\text{NH}_3$  über Douglasie: Wyers et al. 1992;  $\text{NH}_3$  über Koniferen:

#### 7.4.2 Fehlerschätzung für die trockene Deposition von Gasen und Schwebstäuben

Für eine angemessene Fehlereinschätzung der simulierten Gas-Flüsse bzw. Schwebstaub-Einträge sind direkte Messverfahren bzw. der Vergleich zu Simulationen anderer Modelle notwendig.

Im norddeutschen Raum kann aus den Cl-Depositionen auf die entsprechenden Na-Depositionen geschlossen werden (s. Kapitel 7.3.5), die am Standort bei etwa 7,5 bis 9  $\text{kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  Na anzusiedeln sind. Dies entspricht im Rahmen der Messgenauigkeit dem Unterschied zwischen Bestandes-Deposition und Freiland-Deposition (siehe Tabellen 7.2a und 7.2b). Somit scheinen die Modellierungen in den richtigen Größenordnungen zu liegen.

Unterschiede zeigen sich beim Vergleich der Stoffeinträge der S-Spezies: Die bei etwa 11  $\text{kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  deponierte S-Menge ist mehr als doppelt so hoch wie die Differenz aus Bestandes- und Freilandniederschlag (siehe Tabellen 7.2a und 7.2b).

Zur Bewertung der modellierten Flüsse der Gase werden mehrere Fehler betrachtet:

(1) Bei den Modellierungen können sowohl Ungenauigkeiten in der Bestimmung der Bestandesparameter wie der Bestandeshöhe  $h$  und den hieraus abgeleiteten Rauhigkeitsparametern  $z_{0m}$  und  $d$  als auch die Bestimmung der Konzentrationen mittels Denudern und Passiv-Sammlern zu Fehleinschätzungen der modellierten Flüsse beitragen.

Um eine quantitative Einschätzung dieser Einflussfaktoren vorzunehmen wurden für die Spezies  $\text{NH}_3\text{-N}$  und  $\text{NH}_4\text{-N}$ -Modellierungen unter veränderten Eingangsparametern, die die Fehlerschranken der genannten Parameter berücksichtigten sollten, durchgeführt. Hierbei zeigte sich bei einer Fehlkalkulation der Bestandeshöhe von etwa 1 m ( $\approx 7\%$ ) eine monatliche Flussvariation bei  $\text{NH}_3\text{-N}$  von  $< 3\%$ , während bei  $\text{NH}_4\text{-N}$  der Fehler sich auf maximal 10 % beläuft.

(2) Eine weitere mögliche Fehlerquelle kann bei der Ableitung der Konzentrationsmesshöhe am

Duyzer et al. 1992; vgl. auch Andersen und Hovmand 1999;  $\text{HNO}_2$  über Koniferen: Sorteberg und Hov 1996;  $\text{HNO}_3$  über Fichte: Meixner et al. 1988, Mueller und Weatherford 1988, Peters und Bruckner-Schatt 1995;  $\text{HNO}_3$  über Koniferen: Andersen und Hovmand 1995; vgl. auch Andersen und Hovmand 1999;  $\text{SO}_2$  über Kiefer: Fowler und Cape 1983, Granat und Richter 1995.

$\text{NO}_3$  über Koniferen: Wyers und Duyzer 1997;  $\text{NH}_4$  und  $\text{NO}_3$  über Fichten: Peters und Bruckner-Schatt 1995. Insgesamt auch Zimmerling et al. (2000).

mikrometeorologischen Turm (siehe Schaaf et al. 2005b, Kapitel 6.8) entstehen. Durch Variation der Messhöhe als Eingangsparameter in der Modellsimulation konnte gezeigt werden, dass bei einer zu erwartenden maximalen Fehlkalkulation von ca. 1 m, der Einfluss auf die Gas-Flüsse geringer als 5 % einzuschätzen ist.

(3) Die Konzentrationsmessfehler der Passiv-Sammler sind im Bereich 0,1 bis 0,5  $\mu\text{g m}^{-3}$  (Kirchner et al. 1999). Zu den Fehlern der Denunder-Messungen siehe Dämmgen et al. (2005b) (Kapitel 4.2.4). Für eine Schätzung des maximalen Fehlers auf die Flussbestimmung wird ein Fehler der Konzentrationsmessung für alle N-Spezies um jeweils 0,5  $\mu\text{g m}^{-3}$  angesetzt. Es zeigten sich hierbei lediglich geringfügige Schwankungen der monatlichen  $\text{NH}_3\text{-N}$ -Depositionen mit maximal 2 %, während die  $\text{NH}_4\text{-N}$ -Depositionen mit einem maximalen Fehler von 6 % behaftet sind.<sup>6</sup>

(4) Die Vernachlässigung der Thermolyse von deponiertem  $\text{NH}_4\text{NO}_3$  stellt eine zusätzliche Fehlerquelle bei der Flussmodellierung dar: So wird nach Ashbaugh und Eldred (2004) nahezu das gesamte  $\text{NH}_4\text{NO}_3$  bei hohen Temperaturen und geringen Luftfeuchten thermolysiert. Die entstandenen Produkte ( $\text{NH}_3$  und  $\text{HNO}_3$ ) führen zu einer Erhöhung der jeweiligen Gaskonzentration in der Umgebungsluft. Sie besitzen eine so hohe Depositionsgeschwindigkeit, dass auch die Thermolyseprodukte unmittelbar nach ihrer Entstehung wieder deponiert werden.

(5) Insgesamt gehen wir von einem nur geringen Fehler (insgesamt < 5 %) bei der Flussbestimmung als Folge der Vernachlässigung der Thermolyse von  $\text{NH}_4\text{NO}_3$ , aus.

(6) Wir schätzen den Gesamtfehler der Jahressummen der jeweiligen Flüsse der betrachteten Elemente auf großenordnungsmäßig 20 %.

<sup>6</sup> Um den Einfluss der Messfehler (Präzision) auf die Flussmodellierung zu schätzen, wurden in Schaaf et al. (2005a) Untersuchungen zur Fehlerfortpflanzung unternommen. Hiernach ist im ungünstigsten Fall, d.h. unter der Annahme, dass alle Eingangsgrößen mit einem maximalen stochastischen Einzelfehlern von 10 % behaftet sind, mit resultierenden Gesamtfehlern von ca. 40 % beim Fluss auf 30-min-Basis zu rechnen. Bei Vergrößerung des Mittelungsintervalls verringert sich der Fehler. Auswertungen von entsprechenden Messergebnissen ergaben eine Verringerung auf etwa die Hälfte nach 6 h (Dämmgen und Schaaf 2002). Bei monatlichen bzw. jährlichen Flüssen kann daher von einem maximalen Fehler von großenordnungsmäßig wenigen Prozenten bei Monats- und Jahressummen ausgegangen werden. Dies ist im Einklang mit der Gaußschen Theorie der Fehlerfortpflanzung.

## 7.5 Sedimentierende Deposition in Kiefern-, Fichten-/Douglasien- und Eichenbeständen

Mit Blick auf die Repräsentativität der Ergebnisse der aufwändigen mikrometeorologischen Messungen zur Ermittlung des Stickstoff-Eintrags sowohl in zeitlicher als auch in räumlicher Hinsicht wurden konventionelle Untersuchungen der Stickstoff-Flüsse (Niederschlagsdeposition, Bestandesdepositionen) an verschiedenen Orten des Weser-Ems-Gebietes in das ANSWER-Projekt einbezogen. Diese längerfristig laufenden Untersuchungen in Augustendorf, Holdorf und Sandkrug stellten die Depositionsverhältnisse unter relativ vergleichbaren Verhältnissen von Kiefernwäldern dar. Darüber hinaus geben die 18monatigen Messungen in Chronosequenzen von Kiefern- und Fichten-/Douglasienbeständen am Messstandort Augustendorf sowie in Eichenbeständen im Herrenholz Informationen über die Depositionsverhältnisse in anderen Bestandestypen. Für die Zeit des ANSWER-Projekts wurden Frachten im Freilandniederschlag und in der Kronentraufe berechnet und diese Flüsse mit Bestandesstrukturparametern in Beziehung gesetzt. Es wurde Kronenraumbilanzierungen mit den Modellen von Ulrich (1994) und Draaijers (Draaijers und Erisman 1995) durchgeführt und Beziehungen zwischen modellierten Kronenrauminteraktionen und Nadel- bzw. Blattgehalten untersucht.

### 7.5.1 Stickstoff-Einträge an den Messstandorten Augustendorf und Herrenholz

#### 7.5.1.1 Stickstoffeinträge im Freiland

Es wurde für bestandesspezifische Untersuchungen die Messperiode von April 2002 bis März 2003 mit einer Niederschlagsmenge (Freifläche) von 810 bis 826 mm (Augustendorf, Herrenholz, Holdorf und Sandkrug) ausgewertet. Der Vergleich der Einträge mit dem Freilandniederschlag in Augustendorf (AUFN), Herrenholz (HEFN), Holdorf (HOFN) und Sandkrug (SKFN) und zeigt, dass die Ionen-Einträge an allen Standorten recht ähnlich waren (Abbildung 7.12). Dies gilt insbesondere auch für die N-Spezies. Damit kann angenommen werden, dass über weite Teile des Weser-Ems-Gebietes recht einheitliche Bedingungen für die nasse Deposition herrschen.

Das mittlere Na-Cl-Verhältnis im Freiflächen-niederschlag war in Augustendorf mit 0,94 mol mol<sup>-1</sup> und in Herrenholz mit 0,97 mol mol<sup>-1</sup> gegenüber dem Meerwasser (0,858 mol mol<sup>-1</sup>) leicht erhöht, welches auf die Anwesenheit anderer Cl-Spezies als im Seesalz (z.B.  $\text{CaCl}_2$ ,  $\text{HCl}$ ) zurückzuführen ist. Dies entspricht den Ergebnissen zur Zusammensetzung der Schwebstäube in

Dämmgen et al. (2005b). In Sandkrug entsprach das mittlere Na/Cl-Verhältnis genau dem von Meerwasser, während es in Holdorf als dem meeresfernsten Standort mit  $0,79 \text{ mol mol}^{-1}$  geringfügig unter dem von Meerwasser lag.

Die Niederschlagsdeposition auf der Freifläche aller im Analysespektrum enthaltener Kationen und Anionen betrug jeweils zwischen 1,0 und  $1,2 \text{ kmol ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  im Referenzzeitraum April 2002 bis März 2003.

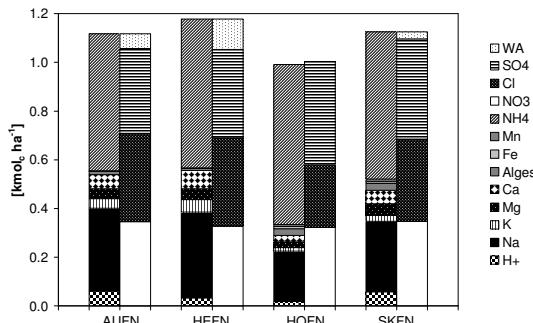


Abbildung 7.12:  
Deposition von Ionen mit dem Freilandniederschlag an den Standorten Augustendorf (AUFN), Herrenholz (HEFN), Holdorf (HOFN) und Sandkrug (SKFN) im Zeitraum 04/2002 – 03/2003.

Unter den Kationen dominierte  $\text{NH}_4$  mit einem Anteil von 50 (Augustendorf) bis 66 % (Holdorf) gefolgt von Na, dass zu 21 bis 30 % an der Kationensumme beteiligt war. Andere Kationen (Al, Fe, Mn, Ca, Mg, K) traten im Freilandniederschlag oft in Konzentrationen unter der chemischen Nachweisgrenze auf und nahmen insgesamt einen geringen Anteil an der Kationensumme ein.

Von den 4 untersuchten Anionen waren Cl,  $\text{SO}_4$  und  $\text{NO}_3$  am stärksten im Freilandniederschlag vertreten. Phosphat lag während des gesamten Untersuchungszeitraums nahezu konstant unter der chemischen Nachweisgrenze, und sein Anteil lag dadurch unter einem Prozent an der Anionensumme. Aus der Ionenbilanz ergibt sich insbesondere für Augustendorf und Herrenholz ein Überschuss an Kationen, der auf die Anwesenheit von Anionen schwächer Säuren zurückgeführt wird (WA in Abbildung 7.12).

Mit 31 bis 42 % nahm unter den Anionen im Referenzzeitraum  $\text{SO}_4$  den höchsten Anteil ein. Zusammen mit  $\text{NO}_3$  (Anteil: 28 - 33 %) entsprach die Summe etwa dem  $\text{NH}_4$ -Anteil an der Kationensumme.

### 7.5.1.2 Beziehungen zwischen Stoffflüssen in der Kronentraufe und Bestandesstruktur

Die N-Flüsse in der Kronentraufe nahmen bei allen drei Baumarten in der Tendenz mit zunehmendem Bestandesalter zu (Abbildung 7.13). Der Anteil von  $\text{NH}_4$  an den Gesamt-N ( $\text{N}_{\text{ges}}$ )-Flüssen lag generell zwischen 50 und 60 %. Bei den Fichten-/Douglasienbeständen war der Anteil von  $\text{NO}_3$  und der  $\text{N}_{\text{ges}}$ -Fracht etwas erhöht. Die Tendenz der mit zunehmendem Bestandesalter ansteigenden Stoffeinträge trifft mit Einschränkungen für die meisten Makroelemente zu (Tabelle 7.4). Hier ist ein gewisser Widerspruch zu den Ergebnissen der Interceptionsmessungen festzustellen, die gegenläufige Trends der Wasserflüsse für die verschiedenen Baumarten erkennen lassen (vgl. Kap. 7.5.1.3).

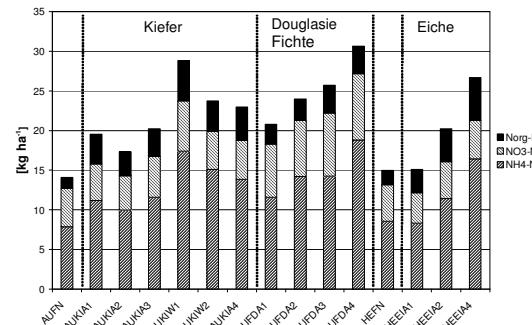


Abbildung 7.13:  
N-Frachten im Freiflächen niederschlag bzw. in der Kronentraufe der Untersuchungsflächen im Zeitraum 04/2002 – 03/2003.

In der Kronentraufe der meisten Bestände ist gegenüber dem Freiflächen niederschlag Cl relativ zu Na angereichert, was ein Hinweis auf eine Deposition von  $\text{MgCl}_2$  (wahrscheinlich) oder  $\text{NH}_4\text{Cl}$  oder  $\text{HCl}$  (weniger wahrscheinlich) sein könnte.

Tabelle 7.4:

Stoffflüsse im Freilandniederschlag in Augustendorf (AUFN) und Herrenholz (HEFN) sowie in der Kronentraufe von 13 Waldbeständen in Augustendorf (AU) Herrenholz (HE) im Zeitraum 04.2002 bis 03.2003.

Untersuchungsbestand	Fluss mm	$H^+$ $kg\ ha^{-1}$	Na $kg\ ha^{-1}$	K $kg\ ha^{-1}$	Mg $kg\ ha^{-1}$	Ca $kg\ ha^{-1}$	$NH_4\text{-N}$ $kg\ ha^{-1}$	$NO_3\text{-N}$ $kg\ ha^{-1}$	Cl $kg\ ha^{-1}$	$SO_4$ $kg\ ha^{-1}$	Nges $kg\ ha^{-1}$	Norg $kg\ ha^{-1}$
AUFN	825	0.061	7.83	1.52	0.49	1.15	7.87	4.85	12.9	5.57	14.1	1.36
AUKIA1	440	0.006	11.2	23.8	1.07	2.18	11.2	4.61	21.6	6.16	19.6	3.78
AUKIA2	418	0.005	9.97	14.2	0.85	1.44	9.97	4.32	18	5.23	17.3	3.05
AUKIA3	616	0.021	14.2	12.8	1.45	2.65	11.6	5.18	25.7	6.73	20.2	3.49
AUKIW1	571	0.011	13.7	21.2	1.32	2.67	17.4	6.37	23.6	8.82	28.8	5.08
AUKIW2	590	0.011	14.6	15.7	1.08	1.82	15.1	4.80	26.7	7.39	23.8	3.87
AUKIA4	611	0.013	15.2	14.1	1.12	2.37	13.8	4.95	27.1	7.33	23.0	4.22
AUFDA1	571	0.011	10.1	10.2	1.63	2.77	11.6	6.71	17.6	6.95	20.8	2.51
AUFDA2	511	0.005	10.8	11.6	1.22	2.13	14.2	7.11	18.3	8.00	24.0	2.68
AUFDA3	559	0.022	14.3	14.7	1.54	2.63	14.2	7.99	28.2	9.16	25.7	3.50
AUFDA4	493	0.013	14.1	17.4	1.67	3.30	18.8	8.37	29.5	11.6	30.6	3.45
HEFN	825	0.033	8.12	1.99	0.55	1.50	8.56	4.58	12.9	5.82	15.0	1.85
HEEIA1	597	0.012	7.27	19.2	2.00	2.83	8.31	3.83	13.6	6.25	15.1	2.94
HEEIA2	629	0.015	7.47	28.8	2.31	3.87	11.4	4.66	14.8	8.07	20.2	4.15
HEEIA4	609	0.008	11.5	31.5	2.18	4.15	16.4	4.86	22.1	11.5	26.6	5.41

Mögliche Beziehungen zwischen Bestandesstrukturparametern und Stoffflüssen in der Kronentraufe wurden geprüft, indem lineare Regressionsberechnungen berechnet wurden. Die Flüsse im Freilandniederschlag wurden in die Regressionsrechnungen einbezogen. Die entsprechenden Werte der Bestandesstrukturparameter wurden für die Freilandmessstellen auf null bzw. 100 % (relative diffuse Strahlung) gesetzt. Das Bestimmtheitsmaß ( $R^2$ ) wird als Maß für die Stärke des Zusammenhangs herangezogen (Tabelle 7.5).

Der stärkste Zusammenhang findet sich für die Beziehung  $NH_4$ -Flüsse in der Kronentraufe zu Derbholzvolumen ( $R^2 = 0,86$ , Tabelle 7.4, Abbildung 7.14). Zu anderen Bestandesstrukturparametern sind ebenfalls signifikante Beziehungen zu finden, doch liegt das Bestimmtheitsmaß jeweils niedriger (Tabelle 7.4). Für die geprüften Spezies ist in den meisten Fällen das Derbholzvolumen der beste Prädiktor. Ähnlich hohe Werte der erklärten Varianz ergeben sich für die Bestandesoberhöhe  $h_o$ . Hier muss berücksichtigt werden, dass die Bestandeshöhe in die Berechnung des Derbholzvolumens als maßgebliche Größe eingeht. Die Grundfläche und der mittlere Brusthöhen durchmesser ( $BHD$ ) liefern meist einen geringeren Beitrag zur erklärten Varianz. Für die mit hemisphärischen Fotos erhobenen Strahlungspa-

rameter liegen für zwei der Flächen keine Daten vor. Signifikante Beziehungen ergeben sich hier zu Ca, K, Mg und  $H^+$ . Dies sind die Ionen, für die von einer intensiven Interaktion mit der Belaubung ausgegangen werden kann (Leaching oder Pufferung). Diese Interaktionen sollten proportional zur Oberfläche sein, die durch die Parameter Überschirmungsgrad, diffuse Strahlung oder  $LAI$  beschrieben wird.

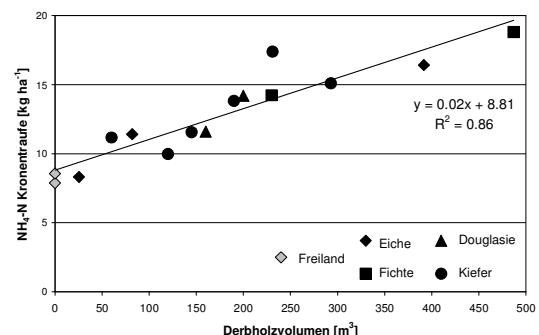


Abbildung 7.14:

$NH_4\text{-N}$ -Frachten im Freiflächen niederschlag bzw. in der Kronentraufe der Untersuchungsflächen im Zeitraum 04/2002–03/2003 in Beziehung zu den Derbholzvolumina der Bestände

Tabelle 7.5:

Bestimmtheitsmaße ( $R^2$ ) für Beziehungen zwischen Bestandesparametern und Stoffflüssen ( $\text{kmol ha}^{-1}$ ) im Freilandniederschlag bzw. in der Kronentraufe für den Zeitraum 04/2002 – 03/2003 ( $h_0$  = Oberhöhe nach Weise,  $B^\circ$  = Bestockungsgrad,  $BHD$  = mittlerer Brusthöhendurchmesser, diffuse Strahlung = relative diffuse Strahlung im Bestand,  $LAI$  = Blattflächenindex, \* = signifikant  $p \leq 0,05$ , \*\* = signifikant  $p \leq 0,01$ ).

	Oberhöhe $h_0$	Derbholz- volumen	Grundfläche	$B^\circ$	$BHD$	diffuse Strahlung	Überschir- mung	$LAI$
n =	15	15	15	15	15	13	13	13
$N_{\text{ges}}$	0,80**	0,82**	0,54**	0,19	0,69**	0,28	0,17	0,12
$\text{NH}_4$	0,80**	0,86**	0,54**	0,18	0,74**	0,24	0,15	0,10
$\text{NO}_3$	0,26	0,36*	0,20	0,01	0,10	0,11	0,05	0,08
$\text{N}_{\text{org}}$	0,55**	0,32*	0,32*	0,33*	0,64**	0,35*	0,27	0,10
Na	0,48**	0,46**	0,37*	0,07	0,50**	0,13	0,04	0,00
$\text{SO}_4$	0,70**	0,78**	0,29*	0,10	0,60**	0,16	0,09	0,11
Ca	0,43**	0,26	0,16	0,23	0,30*	0,45*	0,40*	0,38*
K	0,31*	0,16	0,27*	0,48**	0,30*	0,63**	0,60**	0,41*
Mg	0,32*	0,15	0,16	0,36*	0,18	0,58**	0,57**	0,58**
Cl	0,55**	0,57**	0,47**	0,11	0,52**	0,18	0,06	0,01
$\text{H}^+$	0,34*	0,18	0,59**	0,74**	0,26	0,76**	0,74**	0,59**
TC	0,33*	0,19	0,44**	0,43**	0,39*	0,38*	0,31*	0,12

Bei der vorliegenden Untersuchung lassen sich bisher kaum baumartenspezifische Unterschiede feststellen. Im Gegensatz dazu wurden in verschiedenen anderen Untersuchungen deutliche Unterschiede zwischen verschiedenen Baumarten festgestellt (Meesenburg et al. 1995, Rothe et al. 2002). Hierbei muss berücksichtigt werden, dass die Eichenbestände in Herrenholz etwa 30 km entfernt zu den Kiefern- bzw. Fichten-/Douglasienbeständen gelegen sind. Für eine Vergleichbarkeit mit den Depositionsbedingungen in Augustendorf spricht die gute Übereinstimmung der Freilandeinträge der N-Spezies. Dagegen kann aufgrund der um ca. 30 % höheren  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen der Umgebungsluft in Herrenholz (Schaaf et al., 2005b) eine höhere gasförmige  $\text{NH}_3$ -Deposition erwartet werden. Damit könnte möglicherweise die Übereinstimmung der Beziehungen zu bestandesstrukturellen Parametern zwischen einerseits Eiche und andererseits Kiefer sowie Fichte/Douglasie nur scheinbar vorliegen.

Als unabhängigen Test für die regionale Gültigkeit der gefundenen Beziehungen können die Untersuchungsstandorte in Holdorf und Sandkrug herangezogen werden. Auch hier sind wiederum die Freilandeinträge gut vergleichbar mit denen in Augustendorf und Herrenholz (Abbildung 7.12). Die Kronentraufeflüsse der N-Spezies in Holdorf und Sandkrug reihen sich ebenfalls gut in die gefundenen Beziehungen ein (Abbildung 7.15), obwohl auch in Holdorf und Sandkrug gegenüber Augustendorf unterschiedliche  $\text{NH}_4$ -Konzentrationen in der Umgebungsluft festgestellt wurden (Schaaf et al., 2005b). Da sowohl in Augustendorf als auch in Holdorf und Sandkrug

Kiefernbestände untersucht wurden, kann somit nicht ohne weiteres ein Zusammenhang zwischen  $\text{NH}_4$ -Konzentrationen in der Umgebungsluft und N-Flüssen in der Kronentraufe hergestellt werden.

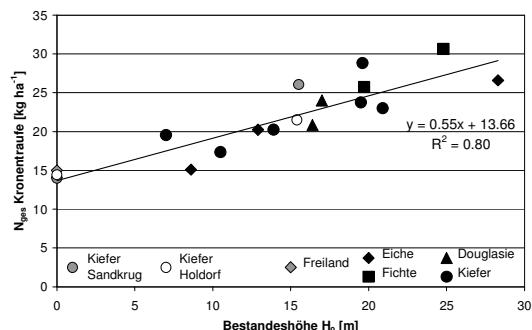


Abbildung 7.15:  
 $N_{\text{ges}}$ -Frachten im Freiflächen niederschlag bzw. in der Kronentraufe der Untersuchungsflächen im Zeitraum 04/2002 – 03/2003 in Beziehung zur Oberhöhe  $h_0$  der Bestände. Die Daten der Untersuchungsflächen Holdorf und Sandkrug wurden nicht in die Regressionsbeziehung einbezogen.

Etwas unerwartet ergeben sich für die Stoffe, die als weitgehend inert angesehen werden und für die die Bäume daher nur als Abscheidungsfläche dienen, nicht die engsten Beziehungen zu den Bestandesstrukturen, sondern für  $N_{\text{ges}}$  und  $\text{NH}_4$ . Von diesen Stoffen wird erwartet, dass sie intensive Interaktionen (insb. Aufnahme) mit den Bäumen eingehen. Dies könnte darauf zurückzuführen sein, dass ein hoher Anteil der trockenen Deposition dieser N-Komponenten von den Bestandesstrukturen gesteuert wird.

Die Bedeutung der Bestandeshöhe als Prädiktor könnte darauf hindeuten, dass der Bestandesrauhigkeit, welche von den erhobenen Strukturparametern vermutlich am besten durch die Bestandeshöhe beschrieben wird, beim Depositionsprozess ein größeres Gewicht zukommt als Parameter, die eher die spezifische Oberfläche des Bestandes beschreiben. Dies wird auch bei der Modellierung der trockenen Deposition von N und anderen Luftinhaltsstoffen mit dem Widerstandsmodell IDEM berücksichtigt, in denen die Rauhigkeitslänge mit der Bestandeshöhe parametrisiert wird (Gauger et al. 2002). Weitere bestandesspezifische Parameter finden mit Ausnahme der Unterscheidung zwischen Laubwald, Mischwald und Nadelwald in IDEM keine Berücksichtigung.

Die N-Flüsse in der Kronentraufe der untersuchten Bestände zeigten eine deutliche Beziehung zu verschiedenen Strukturparametern der Bestände. Der gefundene Zusammenhang zwischen bestandesstrukturellen Parametern und dem N-Eintrag eignet sich als Transferfunktion zur Regionalisierung der Deposition, da die Parameter (z.B. Baumhöhe, Grundfläche, Derbholzvolumen) einfach zu erheben sind und z.T. im Rahmen der Forsteinrichtung flächendeckend erhoben werden. Zunächst ist die gefundene Beziehung nur für eine begrenzte Region gültig. Die Übertragung der Ergebnisse auf größere Räume muss noch geprüft werden.

#### 7.5.1.3 Niederschlagsinterzeption in Abhängigkeit der Bestandesstruktur

Niederschlag, der in Waldbestände gelangt, wird im Kronenraum z.T. zurückgehalten und verdunstet in die Atmosphäre. Die Niederschlagsinterzeption ist abhängig von der Speicherkapazität der verschiedenen Baumkompartimente. Die Speicherkapazität wird wiederum wesentlich von der Oberfläche der Baumkompartimente bestimmt. Die Oberfläche der Bäume ist auch für die Interzeption von Gasen und Partikeln eine wichtige Größe. Daher wird hier die Niederschlagsinterzeption als Indikator für die mögliche trockene Deposition in den verschiedenen Untersuchungsbeständen verwendet.

Die mittlere Interzeption in den Untersuchungsbeständen liegt im Untersuchungszeitraum zwischen 26 und 55 % der Freiflächen niederschlagsmenge und umfasst damit eine recht große Spanne (Abbildung 7.16). Die höchsten Interzeptionsraten wurden in den jungen Kiefernbeständen AUKIA1 und AUKIA2, die niedrigsten im Kiefernbestand AUKIA4 und in den Eichenbeständen HEEIA1 und HEEIA2 gemessen. Damit ergibt sich bei der Baumart Kiefer mit zunehmendem Alter eine Verringerung der Interzeption. Dies

begründet sich in der waldbaulichen Behandlung von Kiefernbeständen, die mit zunehmendem Alter immer mehr aufgelichtet werden und findet auch in den bisher vorliegenden Messergebnissen des Überschirmungsgrades seine Bestätigung. Etwas aus der Reihe fällt der Bestand AUKIA3, der unmittelbar vor Beginn der Messungen durchforstet wurde und daher viele Bestandeslücken aufweist.

Bei den Fichten-/Douglasienbeständen ergibt sich mit zunehmender Strukturstufe eine zunehmende Interzeption. Der Bestand AUFDA4 hatte die höchste Interzeption dieser Baumartengruppe von ca. 43 %. Eine entsprechende Reihung ist beim Überschirmungsgrad nicht zu erkennen.

Bei den Eichenbeständen wurde eine geringe mittlere Interzeption von 26 bis 27 % ermittelt. Eine deutliche Differenzierung ergibt sich nicht.

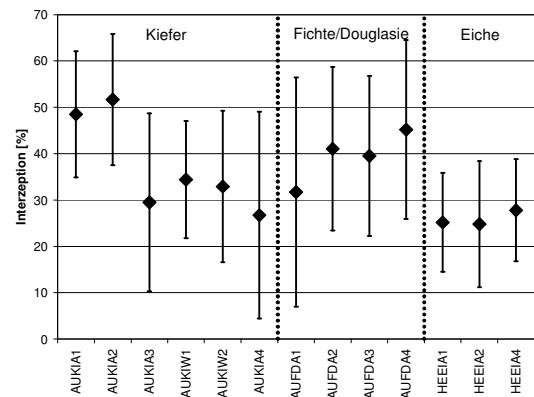


Abbildung 7.16:  
Mittlere Niederschlagsinterzeption der Untersuchungsflächen im Zeitraum 04/2002 – 03/2003.

Auf der Ebene der Untersuchungsflächen wurde geprüft, ob die mit den einzelnen Niederschlagssammeln erfasste Niederschlagsmenge eine Beziehung zur lokalen Überschirmung hat. Bei den bisher mittels hemisphärischer Fotografien erfassten Kiefernflächen konnte nur für einige Untersuchungsperioden ein Zusammenhang festgestellt werden. Bei den Fichten-/Douglasienflächen AUFDA1, AUFDA2 und AUFDA4 sowie den Kiefernflächen AUKIW1 und AUKIA4 ergibt sich für nahezu alle Sammelperioden ein signifikanter linearer Zusammenhang ( $p \leq 0,05$ ) zwischen lokalem Überschirmungsgrad und Interzeption (Abbildung 7.17). Besonders eng ist die Beziehung bei kleinen Niederschlagsmengen.

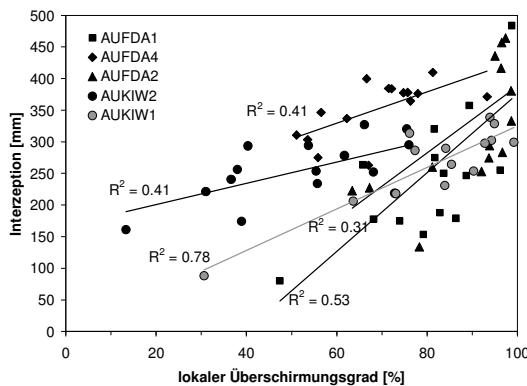


Abbildung 7.17:

Interzeption (mm) in Beziehung zum lokalen Überschirmungsgrad für verschiedene Untersuchungsflächen im Zeitraum 04/2002 – 03/2003.

Bisher nicht zu erklären ist die Beobachtung, dass bei den Baumarten Kiefer und Fichte/Douglasie offenbar auf unterschiedlichen räumlichen Skalen Beziehungen zwischen Überschirmung und Interzeption bestehen. Während sich bei der Kiefer auf der räumlichen Skala des gesamten Untersuchungsgebietes ein Zusammenhang ergibt, findet er sich bei Fichte/Douglasie innerhalb der Untersuchungsbestände Augustendorfs

#### 7.5.1.4 Bestimmung des Draaijers-Faktors

Das Verhältnis der Aufnahmeeffizienz (sog. Draaijers-Faktor) von  $\text{NH}_4^+$ - bzw.  $\text{H}^+$ -Ionen wurde an allen Beständen außer AUKIFDA2 bestimmt (Tabelle 7.6). Die  $\text{H}^+$  bzw.  $\text{NH}_4^+$ -Aufnahme innerhalb der einzelnen Bestände war beim gleichen Konzentrationsniveau relativ ähnlich. Bei den Nadelhölzern gab es zwischen den Beständen keine signifikanten Unterschiede. Die Eichenbestände zeigten generell wesentlich höhere Aufnahmeraten. Innerhalb dieser Baumartengruppe gab es große Differenzen: die zwei jüngeren Bestände nahmen bis zu viermal so viele Ionen auf wie der Ältere. Der Draaijers-Faktor ( $DF$ ) ergibt sich aus dem Verhältnis zwischen der mittleren Protonen- und Ammonium-Aufnahme. Die Werte streuen zwischen 0,7 und 5,3.

Die Reproduzierbarkeit des Versuchs ist relativ gut, bei der  $\text{H}^+$ -Aufnahme ist sie besser als bei der  $\text{NH}_4^+$ -Aufnahme. Eine schlechtere Reproduzierbarkeit bei der  $100 \text{ } \mu\text{mol l}^{-1}$   $\text{NH}_4\text{Cl}$ -Lösung könnte auf die möglicherweise nahe beim Compensationspunkt dieser stark N-gesättigten Bestände liegende  $\text{NH}_4^+$ -Konzentration zurückzuführen sein. Wegen der großen Varianz bei der  $\text{NH}_4^+$ -Aufnahme aus der  $100\text{-}\mu\text{mol l}^{-1}$ -Lösung sind die Werte der relativen Aufnahmeeffektivität bei dieser Konzentration mit einem größeren Fehler

behaftet. Bei einer Teilprobe aus dem Bestand AUKIW2 wurde tatsächlich eine geringfügige Abgabe von  $\text{NH}_4^+$  aus den Nadeln festgestellt (Leaching).

Es wurde untersucht, welche Faktoren die Heterogenität maßgeblich verursachen. Einen signifikanten Einfluss hat die Baumart: Die relative Austauschstärke des Ammoniums ist bei der Eiche am größten ( $DF$  ist im Mittel 1,4 bei einer Konzentration der Austauschlösung von  $1000 \text{ } \mu\text{mol l}^{-1}$ ), bei der Fichte/Douglasie am kleinsten (Mittelwert 4,1 bei  $1000 \text{ } \mu\text{mol l}^{-1}$ ). Die Werte der Kiefer ( $DF$  ist im Mittel 2,4) liegen dazwischen (Abbildung 7.18). Wegen der großen Streuung sind diese Unterschiede nur bei der höheren Konzentration signifikant. Die Austauschaktivität der Ionen ist auch von der Konzentration signifikant abhängig: aus der konzentrierteren Lösung wurden relativ mehr Protonen eingetauscht. Es gab keine Kreuzwirkung zwischen der Baumart und der Lösungskonzentration, d.h. der Draaijers-Faktor nahm bei allen Baumartengruppen mit der Konzentration zu. Es gab keinen signifikanten Zusammenhang zwischen dem Draaijers-Faktor und dem Bestandesalter oder dem Nährelement-Gehalt der Nadeln bzw. Blätter.

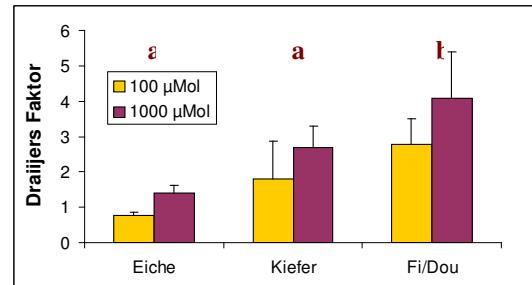


Abbildung 7.18:

Der Draaijers-Faktor  $DF$  in Abhängigkeit von Baumart und Konzentration der Austauschlösung

Das Verhältnis der Aufnahmeeffektivität (Draaijers-Faktor) liegt eher zwischen 1 und 4 im Gegensatz zu dem von van der Maas et. al. (1991) gefundenen Wert von 6. Außerdem zeigen sich baumartenspezifische Unterschiede. Damit muss insgesamt die Anwendbarkeit eines konstanten Wertes von 6 für den Draaijers-Faktor in Frage gestellt werden.

Tabelle 7.6:  
Mittelwerte der Draaijers-Faktoren (DF) bei verschiedenen Konzentrationen der Austauschlösung  
(\* Wiederholungsbeprobung).

Bestände	DF	
	100 µM	1000 µM
Douglasie Fichte	AUFDA1	3,1
	AUFDA3	3,3
	AUFDA4	1,9
Kiefer	AUKIA1	2,0
	AUKIA2	0,9
	AUKIA3	2,1
	AUKIA4	1,5
	AUKIW1	1,2
	AUKIW2	4,0
	AUKIW2*	1,0
	HEEIA1	0,8
	HEEIA2	0,8
Eiche	HEEIA4	0,7
		1,6

### 7.5.1.5 Kronenraumbilanzierungen

Die Gesamtdepositionsrationen sowie die Kronenrauminteraktionen wurden mit den Kronenraumbilanzmodellen von Ulrich (1994) und Draaijers (Draaijers und Erisman 1995) berechnet (siehe Schaaf und Meesenburg 2005).

Die Kronentraufeflüsse von Na lagen in den Eichenbeständen HEEIA1 und HEEIA2 unter den Freilandenträgen. Damit ergibt sich nach dem Kronenraumbilanzmodell von Ulrich (1994) ein negativer Na-Faktor ( $f_{Na}$ ), weshalb für diese Bestände keine partikuläre Deposition berechnet werden kann. Nach dem Kronenraumbilanzmodell von Ulrich (1994) entsprechen die Kronentraufeflüsse für Cl und  $SO_4$  der Gesamtdeposition. Für  $SO_4$  ergeben sich meist und für Cl z.T. partikuläre Depositionsraten, die größer als die Differenz zwischen Freilandniederschlag und Kronentraufe sind. Damit kann keine gasförmigen Deposition für diese Stoffe berechnet werden. Für  $NH_4$  errechnet sich für alle Bestände eine gasförmige Deposition. Für  $NO_3$  errechnet sich für die Kiefern- und Eichenbestände eine Aufnahme im Kronenraum, für die Fichten-/Douglasienbestände eine gasförmige Deposition. Die berechnete gasförmige Deposition ist besonders hoch für  $NH_4$ , weshalb sich für die meisten Bestände als Summe der gasförmigen Deposition aller Komponenten eine Konsumption von  $H^+$  ergibt. Somit ergeben sich mehrere Fälle, die in der Beschreibung des Ulrich-Modells nicht abgedeckt sind und damit die Anwendbarkeit dieses Modells insgesamt in Frage stellen.

Die Leachingraten für die Nährstoffkationen K, Mg und Ca, die mit dem Modell von Ulrich

(1994) berechnet wurden, lassen keinen gerichteten Trend in Abhängigkeit der Bestandesstruktur erkennen, obwohl die Flussraten von  $NO_3$ ,  $SO_4$  und Cl als mobile Anionen, die den Kationentransport regulieren und damit zum Kationenaustausch im Kronenraum beitragen können, einen solchen Trend aufweisen. Nur bei der Baumart Eiche fallen hohe Ca- und Mg-Leachingraten auf. Der Anteil des Nährstoffkationenleaching durch die Exkretion schwacher Säuren (excretion factor) liegt zwischen 0 und 85 %. Werte von unter 0 % treten bei negativen Ionenbilanzen auf und können durch analytische Ungenauigkeit oder nicht erfasste Kationen erklärt werden. Die Ergebnisse zeigen für die Kiefernbestände Werte über 50 %, für die Fichten-/Douglasienbestände und Eichenbestände Werte unter 50 %, so dass in den Kiefernbeständen das Leaching der Nährstoffkationen überwiegend durch die Exkretion von schwachen Säuren bewirkt wurde, in den übrigen Beständen überwiegend durch Kationenaustausch (Abbildung 7.19). Auch wenn eine relative  $H^+/NH_4$ -Aufnahmeeffektivität (DF) von 6 angenommen wird, werden die Nährstoffkationen fast ausschließlich gegen  $NH_4$  ausgetauscht, da die  $NH_4$ -Konzentrationen um 1 bis 2 Größenordnungen über den  $H^+$ -Konzentrationen lagen. Dementsprechend führt ein geringerer Wert der relativen  $H^+/NH_4$ -Aufnahmeeffektivität (wie die vorliegenden Ergebnisse nahelegen) nur zu geringen Verschiebungen der  $NH_4$ -Aufnahme (Abbildung 7.19 unten).

Die Unterschiede zwischen den Depositionen der Bestände werden nicht nur durch unterschiedliche Abscheidungsmechanismen gegenüber Gasen und Schwebstäuben, sondern auch durch unterschiedliche biochemische Reaktionen des Niederschlags mit Vegetationskompartimenten im Kronenraum hervorgerufen.

Die Ergebnisse der Kronenraumbilanzmodelle von Ulrich und Draaijers ergaben für das Draaijers-Modell z.T. deutliche höhere  $NH_4$ -Gesamtdepositionsrationen. Dabei dürfte das Ulrich-Modell eher eine konservative Schätzung darstellen. Die beiden eingesetzten Kronenraumbilanzmodelle unterscheiden sich in ihren Ergebnissen für die anderen Ionen kaum. Bei beiden Modellen werden für einzelne Parameter Werte außerhalb ihres Gültigkeitsbereiches erreicht, so dass sich ihre Anwendbarkeit für die Untersuchungsbestände insgesamt in Frage stellt.

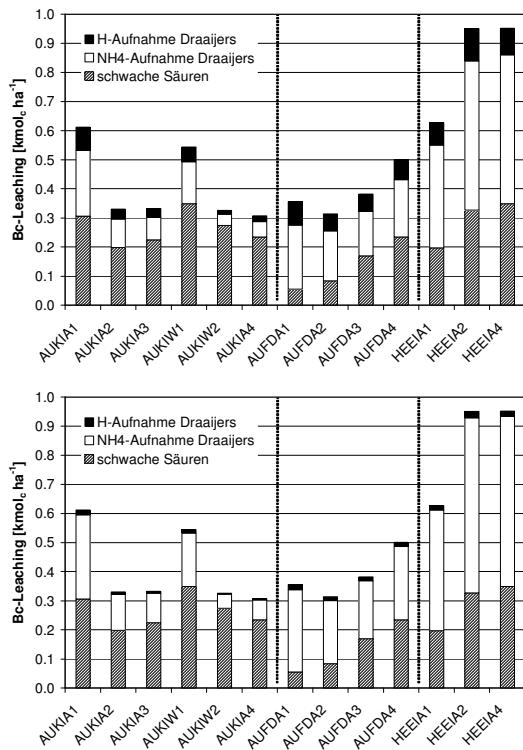


Abbildung 7.19:

Aufteilung des Nährstoffkationenleachings auf Exkretion durch schwache Säuren und Austausch gegen  $H^+$  oder  $NH_4^+$  (oben:  $DF = 6$ , unten:  $DF = 1$ )

#### 7.5.1.6 Kronenrauminteraktionen und Ernährung der Waldbestände

Die Ernährung der Waldbäume ist für das Depositionsgeschehen von Bedeutung, da sie einerseits die Vitalität der Bestände, andererseits die Austauschvorgänge im Kronenraum beeinflussen. Die Vitalität der Bestände steuert das Wachstum und damit für die Deposition wichtige Größen wie Rauhigkeit und Abscheidungssoberfläche. Für die Austauschvorgänge im Kronenraum wie Leaching oder Aufnahme ist ebenfalls der Nährelementstatus von Bedeutung, da dieser die Höhe und Richtung der Prozessraten steuert.

Alle Untersuchungsbestände zeichnen sich durch sehr hohe N-Gehalte aus (Abbildung 7.20). In den Kiefernbeständen lagen die N-Gehalte der Nadeln des 1. Nadeljahrgangs einheitlich bei 20 bis 21 mg g<sup>-1</sup> TS. Die Douglasiennadeln hatten mittlere N-Gehalte zwischen 18 und 21 mg g<sup>-1</sup> TS, die Fichten zwischen 16 und 17 mg g<sup>-1</sup> TS und die Eichen zwischen 27 und 30 mg g<sup>-1</sup> TS. Für Kiefern und Fichten werden N-Gehalte über 17 mg g<sup>-1</sup> TS als sehr hoch eingestuft (AK Standortskartierung 1996). Die N-Ernährung der Bestände kann also als sehr gut bis luxuriös bezeichnet werden.

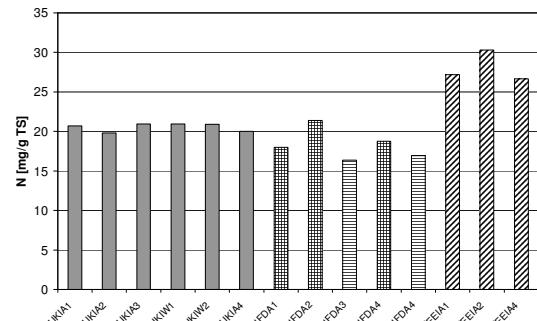


Abbildung 7.20:

N-Gehalte der Nadeln bzw. Blätter der Untersuchungsbestände (1. Nadeljahrgang; Kiefer: grau; Douglasie: kariert; Fichte: horizontal; Eiche: schräg; Probenahme: Eiche 07/2001, Nadelbäume 02/2002).

Die übrigen Makronährälemente befinden sich häufig im Bereich mittlerer Ernährung nach AK Standortskartierung (1996). Am Standort AUFDA4 sind die Fichten sogar sehr gering mit K versorgt. Die Mg-Versorgung ist auf allen Kiefernflächen gering. Hohe Ca- und Mg-Gehalte in den Eichenblättern sind sicherlich auch für die hohen Leachingraten dieser Elemente auf den Eichenstandorten verantwortlich. Der günstigere Nährstoffstatus der Böden in Herrenholz kommt in den Blattgehalten deutlich zum Ausdruck.

Aufgrund der Luxusversorgung aller Bestände mit N und der nur geringen bis mittleren Versorgung mit K liegt das N/K-Verhältnis in einem Bereich disharmonischer Ernährung (Kiefer: N/K > 2,3, BMELF 1997, Fichte: N/K > 3, Hüttl 1991, Abbildung 7.21).

Die Ernährung der Bestände scheint für die Kronenraumtauschprozesse eine bedeutende Rolle zu spielen. Dies betrifft insbesondere das Leaching von Nährstoffkationen, dürfte aber auch die Aufnahme von  $NH_4^+$  beeinflussen, wenn die Aufnahme tatsächlich in Form eines Kationenaustausches stattfindet.

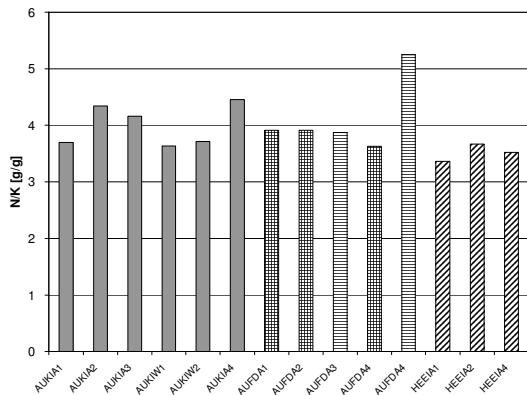


Abbildung 7.21:  
Mittlere N/K-Verhältnisse von Nadeln/Blätter der Untersuchungsbestände (1. Nadeljahrgang; Kiefer: grau; Douglasie: kariert; Fichte: horizontal; Eiche: schräg; Probenahme: Eiche 07/2001, Nadelbäume 02/2002).

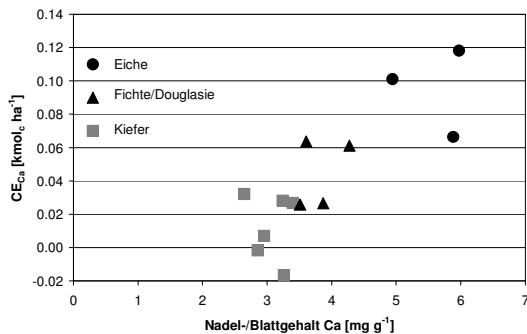


Abbildung 7.22:  
Beziehung zwischen Kronenraumaustausch (Leaching) von Ca ( $CE_{Ca}$ ) und Ca-Gehalten in Nadeln bzw. Blättern für die Untersuchungsbestände.

Das Leaching der Nährstoffkationen K, Mg, Ca und Mn war in den Eichenbeständen deutlich stärker als bei den Nadelbaumbeständen. Die absolute Menge des Kronenraumtauschs nahm in der Reihenfolge Mn, Ca, Mg und K zu. Die Leachingraten sind für diese Kationen jeweils signifikant mit den Nadel-/Blattgehalten dieser Elemente korreliert. Dieser Zusammenhang ist besonders deutlich für Mg und Ca (Abbildung 7.22). Hohe Ca- und Mg-Gehalte in den Eichenblättern und demzufolge hohe Leachingraten sind vermutlich auch auf eine bessere Nährstoffversorgung der Böden am Standort Herrenholz zurückzuführen.

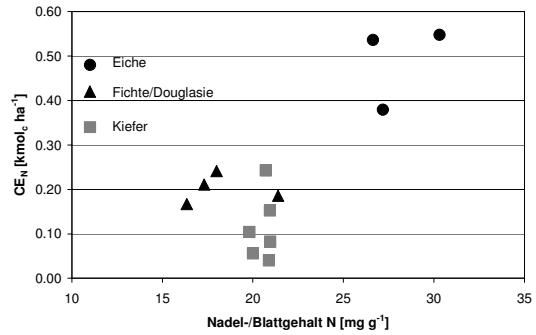


Abbildung 7.23:  
Beziehung zwischen Kronenraumaufnahme von N (CE<sub>N</sub>, berechnet mit Draaijers-Modell) und N-Gehalten in Nadeln bzw. Blättern für die Untersuchungsbestände

Eine Beziehung zwischen der N-Ernährung der Bestände und der N-Aufnahme lässt sich nur insfern herstellen, als dass sich eine deutliche Differenzierung zwischen den Baumarten zeigt. Dabei fallen die Eichenbestände durch hohe N-Blattgehalte und hohe N-Aufnahmeraten (n. Draaijers-Modell) auf (Abbildung 7.23).

### 7.5.2 Mittelfristige Trends der Stickstoff-Flüsse in der Kronentraufe am Standort Augustendorf

Die langfristig angelegten Messungen der N-Flüsse auf der Untersuchungsfläche AUKIW1 des Standortes Augustendorf sind Bestandteil des BDF- bzw. Level II-Programms und nicht Gegenstand dieses Vorhabens. Hier wird nur insoweit darauf eingegangen, wie sie relevant für die Einordnung der Ergebnisse dieses Vorhabens in regionale und zeitliche Trends sind.

Die für den Referenzzeitraum April 2002 bis März 2003 ermittelten Niederschlagsmengen im Freiland und Bestand liegen nahe beim Mittelwert für den gesamten Untersuchungszeitraum 1994 – 2003, während die N-Einträge im Freiland und Bestand im Referenzzeitraum geringer als im Mittel waren (Abbildung 7.24). Die im Referenzzeitraum niedrigeren N-Einträge sind jedoch nicht auf einen zeitlichen Trend zurückzuführen.

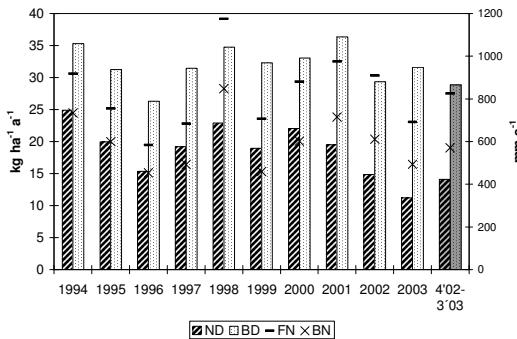


Abbildung 7.24:

Jährliche Niederschlagssummen im Freiland (FN) und Bestand (BN) sowie N-Flüsse im Freiland (ND) und im Bestand (BD) der Messstelle Augustendorf (AUKIWI1) von 1994 bis 2003 sowie im Referenzzeitraum. Refenzzeitraum April 2002-März 2003 grau hinterlegt.

### 7.5.3 Stoff-Flüsse in der Kronentraufe und mittelfristige Trends am Standort Holdorf

Die am Standort Holdorf ermittelten N-Flüsse sowie die Mengen der jährlich gefallenen Niederschläge sind in Abbildung 7.25 dargestellt.

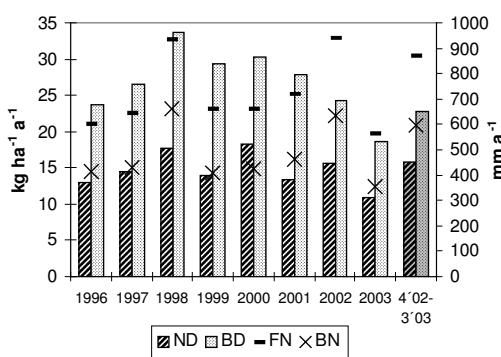


Abbildung 7.25:

Jährliche Niederschlagssummen im Freiland (FN) und Bestand (BN) sowie N-Flüsse im Freiland (ND) und im Bestand (BD) der Messstelle Holdorf von 1996 bis 2003 sowie im Referenzzeitraum. Refenzzeitraum April 2002-März 2003 grau hinterlegt.

Die für den Referenzzeitraum April 2002 bis März 2003 ermittelten Ergebnisse entsprechen wegen der hohen zeitlichen Überschneidung mit dem Jahr 2002 weitgehend den Eintragsraten dieses Kalenderjahres. In diesem Vergleichszeitraum fielen mit 873 mm allerdings ca. 150 mm mehr Niederschläge als im Mittel der 8jährigen Untersuchungsperiode. Die auf der Freifläche ermittelte Niederschlagsdeposition von N ( $\text{NH}_4\text{-N}$ ,  $\text{NO}_3\text{-N}$  und  $\text{N}_{\text{org}}$ ) betrug  $15,9 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  und lag damit geringfügig über dem 8-Jahres-Mittelwert von  $15,0 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ .

Durch die Niederschlagsinterzeption fielen während des Referenzzeitraumes im Bestand um

etwa ein Drittel geringere Niederschlagsmengen ( $596 \text{ mm a}^{-1}$ ) auf den Boden. Die reduzierten Niederschlagsmengen wurden durch die erhöhte trockene Deposition von  $\text{NH}_4\text{-N}$ ,  $\text{NO}_3\text{-N}$  und  $\text{N}_{\text{org}}$  im Bestand mehr als ausgeglichen. Zusammen mit der nassen Deposition dieser Spezies wurden insgesamt  $22,5 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  N in der Kronentraufe eingetragen.

Gegenüber den Werten längerer Messreihen lagen die N-Flüsse im Projektzeitraum 2002 – 2003 auf vergleichsweise niedrigem Niveau. Zwischen 1996 und 2003 lag das Spektrum der jährlichen N-Frachten zwischen  $10,9$  und  $18,2 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  (Mittel:  $14,7 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ ) auf der Freifläche sowie  $18,5$  und  $33,6 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  (Mittel:  $26,8 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ ) im Bestand.

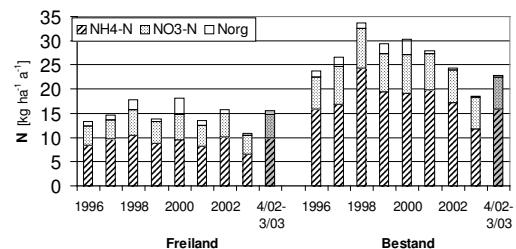


Abbildung 7.26:

Flüsse von  $\text{NH}_4\text{-N}$  und  $\text{NO}_3\text{-N}$  sowie gelöster organischer N-Verbindungen im Freiland und im Bestand der Messstelle Holdorf in den Jahren 1996-2003. Refenzzeitraum April 2002 bis März 2003 grau hinterlegt.

Der Anteil der anorganischen N-Spezies  $\text{NH}_4$  und  $\text{NO}_3$  an der N-Summe der Bulk-Deposition betrug im Referenzzeitraum  $64\%$  und  $31\%$  (Abbildung 7.26). Im Bestand stieg der  $\text{NH}_4\text{-N}$ -Anteil auf ca.  $70\%$  gegenüber  $29\%$   $\text{NO}_3\text{-N}$ . Längerfristig änderten sich diese Relationen kaum. Über gelöste organische Verbindungen wurden etwa  $2\%$  des N im Bestand bzw.  $5\%$  im Freiland in den Boden eingetragen.

Ein Zusammenhang zwischen den jährlichen Niederschlagsmengen und den N-Flüssen in der Kronentraufe war während des 8-jährigen Untersuchungszeitraumes nur schwach ausgeprägt. Während die Niederschlagsdeposition auf der Freifläche von Jahr zu Jahr schwankte und maßgeblich den Niederschlagsmengen bestimmt wurde, sank der N-Eintrag über die Kronentraufe seit 2000 kontinuierlich. Hohe Niederschlagsmengen in den Jahren 1998 und 2002 hatten auch hohe N-Flüsse in der Kronentraufe zur Folge. 2002 fielen sie allerdings deutlich niedriger aus als 4 Jahre zuvor. Die sehr niedrigen N-Einträge sowohl auf der Freifläche ( $10 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  N) als auch im Bestand ( $18 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ ) im Jahr 2003 entsprachen den um  $40\%$  weniger gefallenen Niederschlagsmengen.

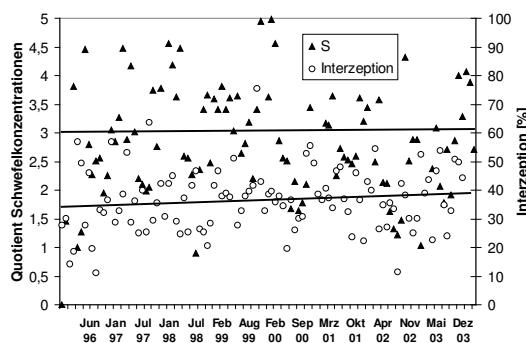


Abbildung 7.27:  
Verlauf des Quotienten aus den  $\text{SO}_4\text{-S}$ -Konzentrationen im Bestands- und im Freilandniederschlag (S, oben) sowie die Niederschlagsinterzeption (unten) in Holdorf

Die langfristige Abnahme der N-Flüsse in der Kronentraufe um ca. 20 bis 25 % ist offensichtlich nicht witterungsbedingt und auf andere Faktoren wie Veränderungen der Bestandesstruktur sowie der Immissionssituation zurückzuführen. Bestandsstrukturelle Veränderungen hätten analog zu Kap. 7.5.1.2 eine Verschiebung der Niederschlagsinterzeption zur Folge. Aus Abbildung 7.27 wird deutlich, dass die Interzeptionsverluste 1996 von 34 % auf 37 % im Jahr 2003, d.h. um ca. 8 % anstiegen. Ökophysiologische weitgehend inerte Verbindungen (Na, Cl, S) zeigen ebenfalls eine geringe Änderungen der Relationen ihrer Konzentrationen im Freiland- und Bestandesniederschlag. Für  $\text{SO}_4\text{-S}$  sank dieser Quotient um 8% von etwa 3 auf 2,7. Codeponiertes  $\text{NH}_4$  dürfte aufgrund der rückläufigen S-Deposition in vergleichbarer Größenordnung weniger deponiert worden sein. Zusammen mit den ansteigenden Interzeptionsverlusten könnte somit ein Rückgang der  $\text{NH}_4$ -Kronentraufeflüsse um ca. 16 % auf eine Veränderung der Bestandseigenschaften und der verminderten S-Belastung der Atmosphäre zurückzuführen.

Als weitere Ursache für den Rückgang der N-Einträge in der Kronentraufe ist der an diesem Standort festgestellte Abnahme der  $\text{NH}_x$ -Immissionskonzentrationen anzunehmen (Schaaf et al. 2005b). Der Waldbestand befindet sich in einem Gebiet zur Trinkwassergewinnung, in dem durch reduzierte Düngung die  $\text{NH}_3$ -Belastung lokal weiter abgenommen hat.

### 7.5.3.1 Ermittlung der Gesamtdepositionen mit Hilfe von Kronenraumbilanzierungen

Nach dem Bilanzierungsansatz von Draaijers und Erisman wurden im 8-jährigen Mittel mit  $31 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  um etwa 16 % höhere N-Einträge ermittelt als über die Kronentraufemessung (27

$\text{kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ ). Im Referenzzeitraum betrug die GD ebenfalls  $31 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ , in der Kronentraufe wurden mit nur  $22 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  um 38 % geringere N-Frachten eingetragen (Abbildung 7.28).

Die nach dem Ansatz von Ulrich berechnete Gesamtdeposition lag im Referenzzeitraum 2002/2003 auf gleichem Niveau der gemessenen Kronentraufeflüsse. Nach diesem Rechenmodell ergibt sich für die Jahre 1996, 2001 und 2003 sogar ein niedrigerer N-Input. Dies kann auf maßgebliche Abweichungen der Depositionsmechanismen von Na sowie Ammonium und Nitrat zurückzuführen sein (Gehrman et al. 2001). Die Ursache erhöhter Na-Depositionen können Bodenabwehungen landwirtschaftlicher Flächen oder aus dem Niederschlag unweit entfernter Gehölze verdriftete Na-Partikel sein. Die berechneten Depositionsraten werden in diesem Fall nach Ulrich (1994) mit der Bestandesdeposition gleich gesetzt (vgl. Kap. 7.5.1.5).

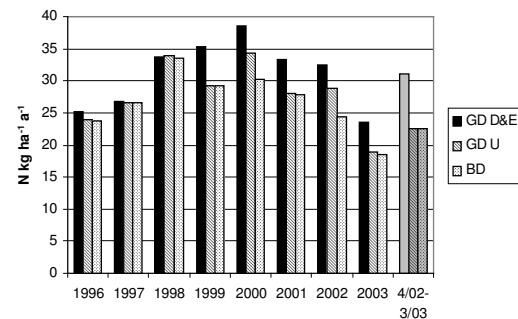


Abbildung 7.28:  
Jährliche N-Depositionsraten im Kiefernbestand Holdorf, ermittelt nach Modellansätzen von Draaijers und Erisman (1995) (GD D&E), Ulrich (1994) (GD U) und auf Grundlage von Kronentraufemessungen (BD) in den Jahren 1996-2003. Referenzzeitraum April 2002 bis März 2003 grau hinterlegt.

### 7.5.3.2 Zusammensetzung sedimentierender Luftinhaltsstoffe Stoffe im Freiflächen- und Bestandesniederschlag

In Holdorf zeigen pH-Werte von durchschnittlich 5,8 im Freiflächen niederschlag sowie 5,9 im Bestandesniederschlag, dass mit den oxidierten N- und S-Spezies produzierte Protonen im Niederschlagswasser durch die Anwesenheit von  $\text{NH}_3$  mehr als neutralisiert wurden.

Einen Hinweis auf eine Codeposition von  $\text{NH}_4\text{-N}$  mit  $\text{SO}_4\text{-S}$  und  $\text{NO}_3\text{-N}$  gibt auch der hohe statistische Zusammenhang ihrer Konzentrationen in den Niederschlägen (Abbildung 7.29). Die Korrelation ( $R^2$ ) der Konzentrationen beider Anionen mit den  $\text{NH}_4\text{-N}$ -Konzentrationen lag im üblichen Bereich von 0,8. Durch Division mit den Na-Konzentrationen, wodurch witterungsbedingte

Effekte (Aufkonzentration/Verdünnungen durch geringe/hohe Niederschläge) weniger stark zum Ausdruck kommen, erreichen die Korrelationskoeffizienten noch höhere Werte von  $R^2 = 0,94$  für die  $\text{NH}_4\text{-NO}_3$ -Beziehung und  $R^2 = 0,84$  für den Zusammenhang zwischen den Konzentrationen von  $\text{NH}_4$  und  $\text{SO}_4$ .

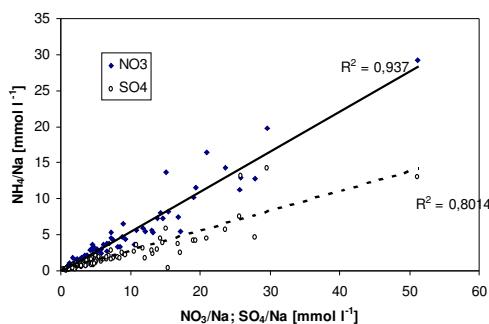


Abbildung 7.29:  
Beziehung des Quotienten  $\text{Na}/\text{NH}_4$  zu den Quotienten von  $\text{Na}/\text{NO}_3$  und  $\text{Na}/\text{SO}_4$  im Freilandniederschlag, Holdorf

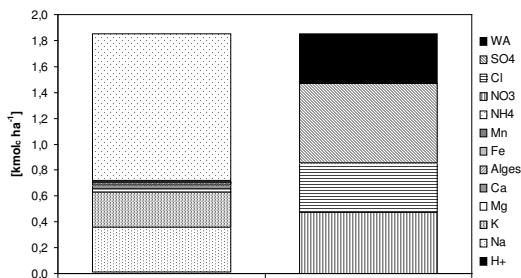


Abbildung 7.30:  
Bestandesdeposition von Kationen (linker Balken) und Anionen (rechter Balken) im Kiefernbestand Holdorf im Referenzzeitraum April 2002 bis März 2003.

Im Unterschied zum Freilandniederschlag, ist das Verhältnis der Kationen- und Anionensummen unter den anorganischen Bestandteilen im Bestandesniederschlag weniger ausgeglichen (Abbildung 7.30). Die Kationen-Deposition überstieg mit  $1,83 \text{ kmol ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  den Anionen-Eintrag um etwa  $0,4 \text{ kmol ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ . Dieses Anionen-Defizit wird nach Draajers und Erisman (1995) durch die Anwesenheit der analytisch nicht erfassten schwachen Säuren (WA) ausgeglichen. Die Anteile der  $\text{SO}_4^-$ ,  $\text{Cl}^-$ , und  $\text{NO}_3^-$ -Flüsse unterschieden sich im Bestand nur gering von denen im Freiland. Die Deposition von  $\text{SO}_4$ -S lag mit  $0,61 \text{ kmol ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  bzw. Seesalz-korrigiert mit  $0,53 \text{ kmol ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  im Bestand geringfügig über der der  $\text{Cl}^-$  und  $\text{NO}_3^-$ -Ionen.

$\text{NH}_4\text{-N}$  wurde im Referenzzeitraum in Höhe von  $1,13 \text{ kmol ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  ( $15 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1} \text{ N}$ ) in den Waldboden eingetragen und lag damit um 61 %

über der Niederschlagsdeposition, während die  $\text{NO}_3\text{-N}$ -Deposition mit  $0,47 \text{ kmol ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  (etwa  $8 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1} \text{ N}$ ) im Bestand nur um 36 % über der Niederschlagsdeposition lag. Dies beruht auf der Abscheidung von gasförmigem  $\text{NH}_3$  sowie von  $\text{NH}_4\text{-N}$  im Kronenraum, das in Verbindung sowohl mit  $\text{NO}_3\text{-N}$  als auch  $\text{SO}_4\text{-S}$  sedimentiert.

#### 7.5.4 Stoff-Flüsse in der Kronentraufe und mittelfristige Trends am Standort Sandkrug

Der jährliche N-Eintrag im Freiland betrug in Sandkrug im Referenzzeitraum April 2002 bis März 2003  $14,6 \text{ kg ha}^{-1}$ . Damit wurde das mehrjährige Mittel von  $14,1 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  geringfügig überschritten (Abbildung 7.31). Ähnlich wie bei den anderen Messstandorten, war die jährliche Variabilität des N-Eintrags auf der Freifläche relativ gering. Analog zu den jährlichen Niederschlagssummen wurden im Jahr 2003 die geringsten N-Einträge (ca.  $10 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ ) festgestellt. Die Differenz im Vergleich zur N-Deposition von 1998 ( $15 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ ) entspricht etwa den Unterschieden der gefallenen Niederschlagsmengen.

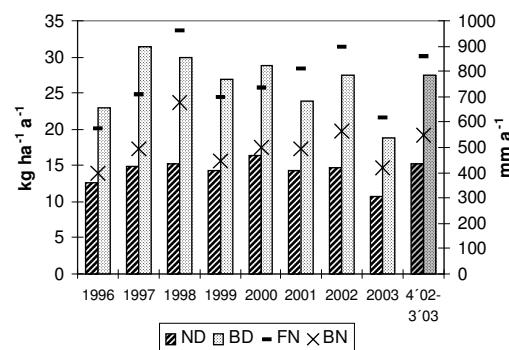


Abbildung 7.31:  
Jährliche Niederschlagsmengen und N-Flüsse im Freiland (ND) sowie im Bestand (BD) der Messstelle Sandkrug in den Jahren 1996 bis 2003. Referenzzeitraum April 2002 bis März 2003 grau hinterlegt.

Anders als im Freiland zeigte sich bei der Höhe der N-Flüsse im Kiefernbestand ein leicht abwärtsgerichteter Trend. Seit dem höchsten N-Eintrag von  $31,4 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  N im Jahr 1997 sank die N-Deposition in der Kronentraufe fast kontinuierlich um mehr als 40 %. Die hohen Niederschläge von mehr als  $900 \text{ mm a}^{-1}$  im Jahr 2002 unterbrachen diesen Trend, im trockenen Jahr 2003 setzte er sich wiederum verstärkt fort und erreichte das Minimum von  $18,8 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  N. Das 8-Jahres-Mittel von  $27 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  unterschied sich kaum von der N-Fracht, die im Referenzzeitraum April 2002 bis März 2003 festgestellt wurde ( $26 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ ).

Die Mengenanteile von  $\text{NH}_4$  und  $\text{NO}_3$  unter den N-Spezies im Bestandesniederschlag blieben relativ konstant (Abbildung 7.32) und entsprachen denen des Referenzzeitraumes (April 2002 bis März 2003). In dieser Periode lag der  $\text{NH}_4$ -N-Anteil mit 61 % im Freiflächen- bzw. 72 % im Bestandesniederschlag deutlich über dem  $\text{NO}_3$ -N-Anteil (35 % bzw. 27 %).

Größere jahresperiodische Abweichungen traten bei dem Eintrag gelöster organischer N-Spezies auf. Mit Einträgen zwischen 0,1 und 4,6  $\text{kg ha}^{-1} \text{a}^{-1}$  kann diese N-Spezies im Vergleich zu den anorganischen Verbindungen zeitweilig eine größere Rolle spielen.

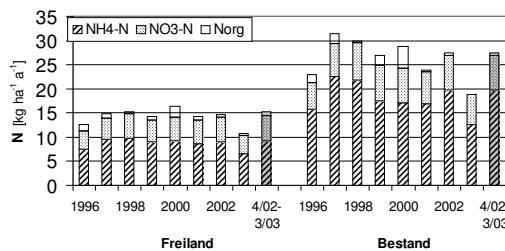


Abbildung 7.32:  
Flüsse von  $\text{NH}_4$ - und  $\text{NO}_3$ -N sowie gelöster organischer N-Verbindungen im Freiland und im Bestand der Messstelle Sandkrug in den Jahren 1996 bis 2003. Referenzzeitraum April 2002 bis März 2003 grau hinterlegt.

Der tendenzielle Rückgang der N-Flüsse in der Kronentraufe ist – unter Berücksichtigung der Schätzfehler – möglicherweise in Sandkrug auf veränderte bestandesstrukturelle Bedingungen sowie der weiterhin abnehmenden S-Immissionen zurückzuführen. Die Verluste der Niederschlagsinterzeption stiegen in 8 Jahren um ca. 10% (Abbildung 7.33) und der Quotient der S-Konzentrationen im Freiland- und Bestandesniederschlag sank um ca. 7 % von 3,0 auf 2,8.

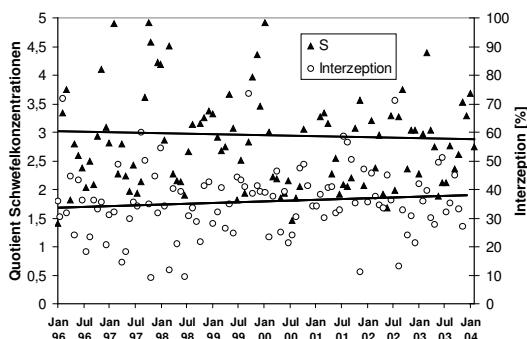


Abbildung 7.33:  
Verlauf des Quotienten aus den  $\text{SO}_4$ -S-Konzentrationen im Bestands- und im Freilandniederschlag (S, oben) sowie die Niederschlagsinterzeption (unten) in Sandkrug

#### 7.5.4.1 Ermittlung der Gesamtdepositionen mit Hilfe von Kronenraumbilanzierungen

Die errechnete Gesamtdeposition von N (GD) war im mehrjährigen Mittel nach den Modellen von Draaijers und Erisman (1995) und Ulrich (1994) mit 29 bzw. 27  $\text{kg ha}^{-1} \text{a}^{-1}$  gegenüber den gemessenen Kronentraufeflüssen von durchschnittlich 26  $\text{kg ha}^{-1} \text{a}^{-1}$  nur leicht erhöht (Abbildung 7.34).

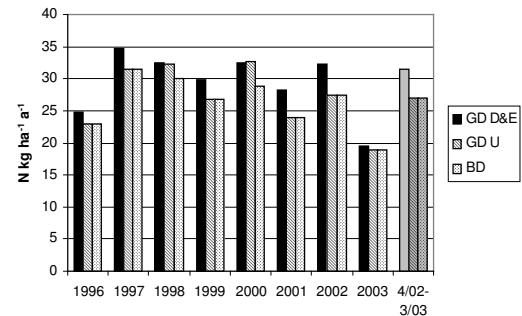


Abbildung 7.34:  
Jährliche N-Depositionsraten im Kiefernbestand, ermittelt nach Modellansätzen von Draaijers und Erisman (1995) (GD D&E), Ulrich (1994) (GD U) und auf Grundlage von Kronentraufemessungen (BD) in den Jahren 1996 bis 2003. Referenzzeitraum April 2002 bis März 2003 grau hinterlegt.

Im Vergleichszeitraum April 2002-März 2003 wurden nach dem Draaijers-Modell mit 32  $\text{kg ha}^{-1} \text{a}^{-1}$  deutlich höhere N-Flüsse als nach Ulrich und den Kronentraufeflüssen (beide 27  $\text{kg ha}^{-1} \text{a}^{-1}$ ) ermittelt.

#### 7.5.4.2 Beziehung sedimentierender Luftinhaltsstoffe Stoffe im Freiflächen- und Bestandesniederschlag

Dem engen statistischen Zusammenhang der Depositionsraten von  $\text{NH}_4$ ,  $\text{NO}_3$  und  $\text{SO}_4$  (Abbildung 7.35) zufolge wird  $\text{NH}_4\text{-N}$  überwiegend als  $\text{NH}_4\text{NO}_3$  und  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$  bzw  $\text{NH}_4\text{HSO}_4$  in den Waldboden eingetragen. Die Summe beider Anionen lag im Freiland mit 0,8  $\text{kmol ha}^{-1} \text{a}^{-1}$  etwas über bzw. mit 1,2  $\text{kmol ha}^{-1} \text{a}^{-1}$  im Kiefernbestand etwas unter dem  $\text{NH}_4\text{-N}$ -Eintrag (Abbildungen 7.12, 7.36). Im Bestand bedeutet dies, dass  $\text{NH}_4$  in anderen Bindungsformen deponiert wird. Hierzu kann  $\text{Cl}$  in Betracht kommen, dessen Deposition um 0,14  $\text{kmol ha}^{-1} \text{a}^{-1}$  über dem Na-Eintrag liegt. Auch das in der Ionenbilanz nicht berücksichtigte Hydrogencarbonat-Ion spielt mitunter eine wichtige Rolle als Begleitung von  $\text{NH}_4$ .

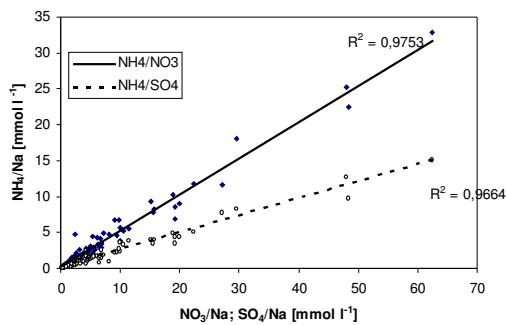


Abbildung 7.35:  
Beziehung des Quotienten Na/NH<sub>4</sub> zu den Quotienten Na/NO<sub>3</sub> und Na/SO<sub>4</sub> im Freilandniederschlag, Sandkrug

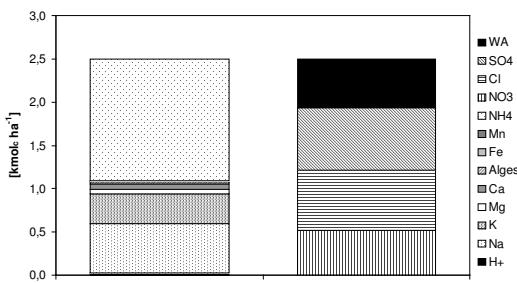


Abbildung 7.36:  
Bestandesdeposition von Kationen (linker Balken) und Anionen (rechter Balken) im Kiefernbestand Sandkrug (Referenzzeitraum: April 2002 bis März 2003)

Gegenüber Holdorf höhere Na- und Cl-Flüsse sowohl im Freiland- als auch im Bestandesniederschlag resultieren aus der etwas geringeren Entfernung zum Meer. Die NH<sub>4</sub>-N- und Na-Flüsse im Bestand lagen jeweils um 60 % und die Flüsse von Cl<sup>-</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, und NO<sub>3</sub><sup>-</sup> um jeweils etwa 38 % über den Freilandeinträgen. Demgegenüber ist bei den K-Flüssen im Bestand etwa mit dem Faktor 10 (0,27 kmol ha<sup>-1</sup> a<sup>-1</sup>) der nassen Deposition von nennenswerten Leachingraten aus dem Kronenraum auszugehen, die möglicherweise in Zusammenhang mit einer erhöhten NH<sub>4</sub>-N-Aufnahme stehen.

## 7.6 Stickstoff-Austräge aus dem System

### 7.6.1 Stickstoff-Austräge am Standort Augustendorf

Die Entwicklung der NO<sub>3</sub>-Konzentrationen in der Bodenlösung am Standort Augustendorf (AUKIW1) zeigt einen deutlichen Anstieg im Zeitraum 1994 bis 2003 (Abbildung 7.37). 2002 und 2003 lag die mittlere NO<sub>3</sub>-Konzentration in 250 cm Tiefe über dem EU-Grenzwert für Trinkwasser. Dies bedeutet, dass das oberflächennahe Grundwasser derzeit so stark belastet wird, dass es für eine Trinkwassergewinnung unbrauchbar wird,

wenn nicht zwischen der Messtiefe in 250 cm und der Grundwasseroberfläche in 7 bis 8 m erhebliche Denitrifikationsverluste auftreten.

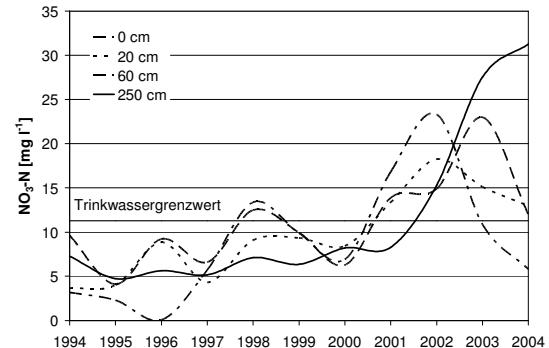


Abbildung 7.37:  
Mittlere NO<sub>3</sub>-N-Konzentrationen in der Bodenlösung am Standort Augustendorf (AUKIW1).

Die berechneten N-Austräge belaufen sich im Mittel auf etwa 27 kg ha<sup>-1</sup> a<sup>-1</sup>, wobei die interannualen Variationen aufgrund unterschiedlicher Sickerraten und N-Konzentrationen in der Bodenlösung mit 4 bis 65 kg ha<sup>-1</sup> a<sup>-1</sup> beträchtlich sind (Abbildung 7.42).

### 7.6.2 Stickstoff-Austräge am Standort Holdorf

Die am Standort Holdorf über einen längeren Zeitraum ermittelten NO<sub>3</sub>-N-Konzentrationen sind in Abbildung 7.38 dargestellt. Im Jahr 2002 betrugen sie im gewichteten Mittel 3,1 mg l<sup>-1</sup>, im darauffolgenden Jahr lagen sie mit 2,2 mg l<sup>-1</sup> NO<sub>3</sub>-N etwas darunter. Die NH<sub>4</sub>-N-Konzentrationen lagen ebenso wie bei den anderen Standorten in größeren Bodentiefen nahezu kontinuierlich unterhalb der chemischen Nachweisgrenze von 0,1 mg l<sup>-1</sup> und sind als Bilanzgröße vernachlässigbar.

Über einen längeren Zeitraum betrachtet ist im Gegensatz zu den Messergebnissen in Augustendorf ein tendenzieller Rückgang der NO<sub>3</sub>-Konzentrationen zu verzeichnen. Seit 1997 (4,9 mg l<sup>-1</sup>) haben sich die NO<sub>3</sub>-N-Konzentrationen mehr als halbiert. Der Rückgang ist möglicherweise auf den nachlassenden Effekt, der 1996 durch den Einbau der Sickerwasserkörper entstand, zurückzuführen. 1999 verstärkte sich die Konzentrationsabnahme vermutlich witterungsbedingt, da in dieser Periode auch in Augustendorf einer temporären Rückgang der NO<sub>3</sub>-Konzentrationen zu verzeichnen war. Seit 2001 haben sich die Werte der NO<sub>3</sub>-N-Konzentrationen im Bereich zwischen 2 und 3 mg l<sup>-1</sup> eingependelt.

Bedingt durch die hohen Niederschläge im Jahr 2002 (940 mm a<sup>-1</sup>) wurden etwa 17 kg ha<sup>-1</sup> a<sup>-1</sup> N über das Sickerwasser ausgetragen. Die Sik-

kerwasserrate war in diesem Zeitraum mit  $560 \text{ mm a}^{-1}$  entsprechend hoch.

2003 war dagegen gekennzeichnet von sehr geringen Niederschlags- und Sickerwassermengen. Letztere betragen in der Jahressumme etwa  $230 \text{ mm a}^{-1}$ . Gleichzeitig ebenfalls niedrige  $\text{NO}_3\text{-N}$ -Konzentrationen führten zu einem Rückgang des N-Austrags auf  $5 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ . In beiden Jahren werden offenkundig die Witterungsexreme dieser Periode deutlich. Im Mittel beider Jahre liegen die Austragsraten jedoch relativ nah beim längerfristigen Mittel der N-Austräge (1997 bis 2004) in Höhe von  $9,5 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ .

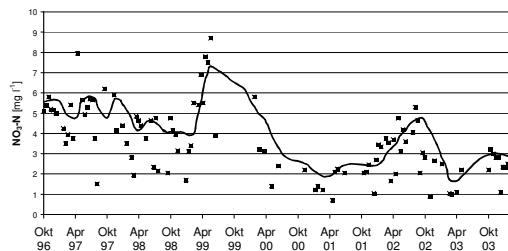


Abbildung 7.38:  
Mittlere  $\text{NO}_3\text{-N}$ -Konzentrationen in der Bodenlösung aus einer Probenentnahmetiefe von 1,2 m am Standort Holdorf

### 7.6.3 Stickstoff-Austräge am Standort Sandkrug

Die  $\text{NO}_3\text{-N}$ -Konzentrationen im Sickerwasser in 1,2 m Bodentiefe des Standortes Sandkrug lagen mit  $0,5 \text{ mg l}^{-1}$  (2002) und  $0,2 \text{ mg l}^{-1}$  (2003) im Jahresmittel auf einem Niveau, dass sich deutlich von den in Augustendorf und Holdorf gemessenen Werten unterscheidet (Abbildung 7.39). Die Abnahme der anfänglich höheren  $\text{NO}_3\text{-N}$ -Konzentrationen in den Jahren 1997 bis 1999 ist – ebenso wie in Holdorf – wahrscheinlich messtechnisch bedingt. Seit 2001 bewegen sich die  $\text{NO}_3\text{-N}$ -Konzentrationen auf einem Niveau zwischen unter  $0,1 \text{ mg l}^{-1}$  und  $1,5 \text{ mg l}^{-1}$ . Die Sickerung betrug in den beiden Untersuchungsjahren 2002 und 2003  $501 \text{ mm a}^{-1}$  bzw.  $265 \text{ mm a}^{-1}$ . Sie lag damit etwas über der für Holdorf berechneten Sickerwassermenge und im niederschlagsreichen Jahr 2002 deutlich über der in Augustendorf er-

mittelten Sickerung. In Sandkrug führte sie zu jährlichen  $\text{NO}_3\text{-N}$ -Austrägen von  $2,5$  bzw.  $0,5 \text{ kg ha}^{-1}$ . Durch im Bodenwasser gelöste N-Verbindungen erhöhten sich die Gesamtausträge in beiden Jahren jeweils um etwa 20 %.

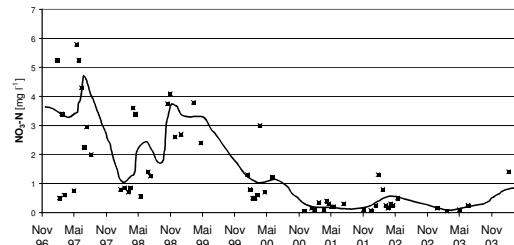


Abbildung 7.39:  
Mittlere  $\text{NO}_3\text{-N}$ -Konzentrationen in der Bodenlösung aus einer Probenentnahmetiefe von 1,2 m am Standort Sandkrug

## 7.7 Vergleich der Elementflüsse und Ökosystembilanzen der Standorte Augustendorf, Sandkrug und Holdorf

### 7.7.1 Stoffflüsse in der Kronentraufe

Die regionalen Unterschiede der Stoffflüsse und ihrer Wirkungen auf den Elementhaushalt werden durch die Gegenüberstellung der Untersuchungsergebnisse von den 3 Kiefernstandorten Augustendorf (AUKIW1), Holdorf und Sandkrug ersichtlich. Berücksichtigt sind die Daten der 2-jährigen Messperiode 2002 und 2003 (Tabelle 7.7).

Die in diesem Zeitraum gefallenen Niederschlagsmengen unterschieden sich um maximal 10 %. Die Eintragsraten einiger Elemente wichen demgegenüber erheblich voneinander ab.

Bei den Einträgen der überwiegend meerbürtigen Ionen Na und Cl wird die geringere Entfernung der Messstandorte Augustendorf und Sandkrug zur Küste deutlich. Nicht zuletzt auch aufgrund der geringeren Niederschlagsmengen war im 2-jährigen Mittel die mittlere Cl-Deposition an dem südlichsten Standort Holdorf mit  $14,3 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  halb so hoch wie in Augustendorf.

Tabelle 7.7:

Mittlere jährliche Flussraten der mittelalten Kiefernbestände Augustendorf (AUKIW1), Holdorf und Sandkrug in den Jahren 2002 und 2003. Berechnete Flüsse der Gesamt-Deposition nach Drajers und Erisman (1995) sowie der anderer Elemente nach Ulrich (1994).

	H <sub>2</sub> O	Na	K	Mg	Ca	NH <sub>4</sub> -N	NO <sub>3</sub> -N	Cl	SO <sub>4</sub> -S	N <sub>ges</sub>	N <sub>org</sub> -N
	mm	-----	-----	-----	-----	kg ha <sup>-1</sup> a <sup>-1</sup>	-----	-----	-----	-----	-----
<b>Freiland-Niederschlag</b>											
Augustendorf	792	10,1	1,5	0,7	1,4	7,1	4,4	17,0	5,4	12,9	1,5
Holdorf	754	5,4	0,6	0,4	0,9	8,3	4,4	10,6	6,0	13,3	0,6
Sandkrug	758	7,2	0,9	0,6	1,5	7,8	4,4	13,0	5,9	12,8	0,5
<b>Bestandes-Niederschlag</b>											
Augustendorf	545	16,3	20,9	1,6	3,0	18,6	7,1	30,2	9,1	30,2	4,5
Holdorf	495	8,4	9,9	0,4	0,9	14,5	6,6	14,3	9,1	21,4	0,3
Sandkrug	490	12,0	11,2	0,8	1,3	16,2	6,7	21,5	10,0	23,1	0,3
<b>Gesamtdeposition</b>											
Augustendorf	545	16,3	2,5	1,2	2,3	18,6	8,4	30,2	9,1	30,2	
Holdorf	495	8,4	0,9	0,6	1,3	15,3	7,9	14,3	9,1	24,0	
Sandkrug	490	12,0	1,5	1,0	2,5	16,2	7,5	21,5	10,0	23,1	
<b>Kronenraumaustausch</b>											
Augustendorf	248		-18,4	-0,4	-0,7	0,0	1,3			0,0	
Holdorf	259		-9,0	0,2	0,4	0,8	1,2			2,5	
Sandkrug	268		-9,8	0,3	1,2	0,0	0,8			0,0	
<b>Sickerwasseroutput</b>											
Augustendorf	297	55	3,0	11,3	15,5	0,3	55,5	91	23	60	4,0
Holdorf	396	23	4	4	6	>0,1	11	58	22	12	1,0
Sandkrug	383	60	1,5	3,5	2,7	>0,1	1,5	117	31	1,8	0,3

Tabelle 7.8:

N-Flüsse an den Standorten Augustendorf (AUKIW1, Mittel 1994-2003), Sandkrug und Holdorf (Mittel 1997-2003).

Fluss	Augus-tendorf	Sand-krug	Hol-dorf
	kg ha <sup>-1</sup> a <sup>-1</sup>		
Gesamtdeposition	34,0	26,7	27,2
(n. Ulrich 1994)			
Netto-Aufnahme	5,3	5,3	5,3
(n. Rademacher et al. 1999)			
Sickerwasseraustrag	26,9	5,0	11,9
gasförmige N-	0 - 10	0 - 10	0 - 10
Austräge			
<b>Bilanz</b>	<b>-8,2 - 1,8</b>	<b>6,4 - 16,4</b>	<b>0 - 10</b>
Streufall	61,8	65 - 70	65 - 70

Auch von K wurden in Augustendorf die höchsten Mengen in den Boden eingetragen. Das physiologisch sehr mobile Kation wird zum weitaus überwiegenden Teil aus dem Kronenraum ausgewaschen. Lediglich 5 bis 10 % stammen nach dem Rechenansatz von Ulrich (1994) aus der nassen und trockenen Deposition (Tabelle 7.7). Die Ursachen der hohen K-Flüsse sind daher ökophysiologischer Natur. K, Ca und Mg werden im Kronenraum zum Ladungsausgleich gegen NH<sub>4</sub><sup>+</sup> ausgetauscht (Langusch et al. 2003).

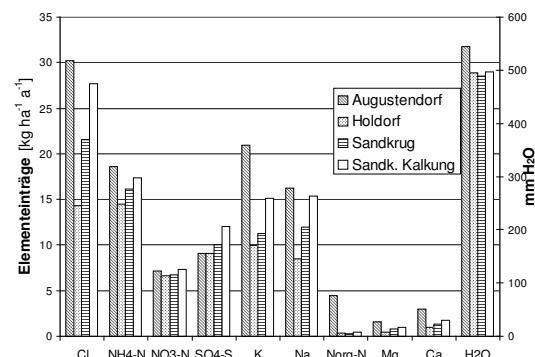


Abbildung 7.40:  
Jährliche Elementeinträge (BD) im Kiefernbestand an den Messstandorten Augustendorf, Holdorf und Sandkrug im Mittel des Zeitraumes 2002/2003.

Eine gewisse Rolle bei dem erhöhten K-Leaching spielt vermutlich die erfolgte Bodenschutzkalkung in Augustendorf. Hierauf deutet jedenfalls der Vergleich der Ergebnisse von Flussmessungen hin, die in einem benachbarten Bestand des Messstandortes Sandkrug durchgeführt werden (Abbildung 7.40). In diesem Bestand sind infolge der gesteigerten Bodenmineralisation kurz nach der Kalkung (1999) die Flussraten von K, später auch die von anderen Elementen, deutlich angestiegen. Mittlerweile liegt die Bestandesdeposition fast aller analysierter Elementen auf dem höheren Ni-

veau der in Augustendorf ermittelten Flussraten. Durch die insgesamt bessere Nährelementversorgung der gekalkten Bestände werden offensichtlich durch veränderte kronenrauminterne Interaktionen die Stoffflüsse in unterschiedlicher Weise beeinflusst. Während dieser Effekt bei K, aber auch bei den als physiologisch als inert betrachteten Elementen Cl und Na sehr auffällig ist, tritt er bei Nitrat am wenigsten in Erscheinung.

Unter den Flussraten der eutrophierenden N-Spezies traten die geringsten regionalen Unterschiede bei  $\text{NO}_3$  auf. Die Abweichungen lagen mit unter 10 % deutlich innerhalb der Fehlerschranken. Auch bei den S-Einträgen wird deutlich, dass die großräumig relativ einheitlichen Konzentrationen dieser Immissionskomponente nahezu identische Stoffeinträge an den drei Standorten herbeiführen.

In größeren Unterschieden zwischen den  $\text{NH}_4$ -Flüssen spiegeln sich die lokalen Immissionsverhältnisse der Messstandorte wider. Die vergleichsweise niedrigen  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen in der Umgebungsluft am Standort Sandkrug finden in den jährlichen N-Einträgen allerdings keine Entsprechung. Die Annahme, dass die ungünstigen Ernährungsbedingungen des Dünensand-Standortes eine nennenswerte Rolle spielt, wodurch ein geringerer Anteil des im Kronenraum aufgenommenen N aufgenommen und so über die Kronentraufe in den Boden gelangt, lässt sich anhand der Ergebnisse von Parallelmessungen im gekalten Bestand (Abbildung 7.40) nicht verifizieren. Möglicherweise liegt der relativ hohe  $\text{NH}_4$ -Kronentraufefluss auch in einer von Augustendorf und Holdorf abweichenden Atmosphärenchemie begründet.

Trotz des vergleichsweise hohen Niveaus der  $\text{NH}_4$ -Einträge in der Kronentraufe des Standortes Sandkrug besteht ein relativ großer Zusammenhang mit den  $\text{NH}_4$ -Flüssen in Holdorf und Augustendorf. Am Beispiel der 4-wöchigen Stoffflüsse der ca. 50 km voneinander entfernten Messstandorte Sandkrug und Holdorf zeigt sich, dass die atmosphärischen N-Flüsse von  $\text{NH}_4\text{-N}$  und  $\text{NO}_3\text{-N}$  offensichtlich in hohem Maße von den großräumig herrschenden Witterungsereignissen geprägt werden (Abbildung 7.41). Noch enger ist der statistische Zusammenhang der Flüsse von  $\text{SO}_4\text{-S}$  und Na, die kaum lokalen Quellen entstammen und von physiologischen Interaktionen im Kronenraum nur gering beeinflusst sind.

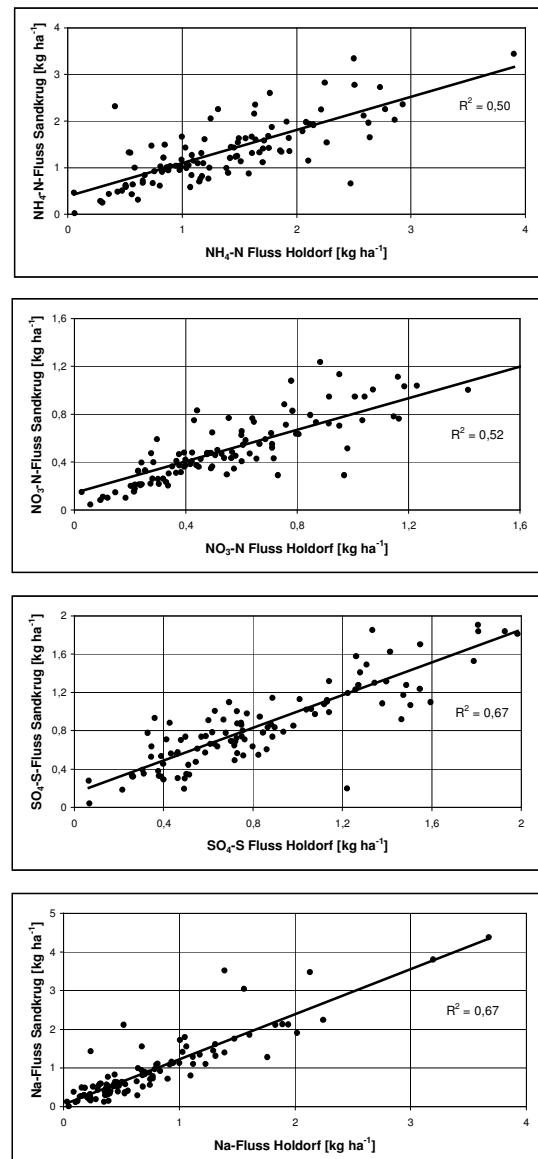


Abbildung 7.41:  
Zusammenhang 4-wöchiger Flussraten von  $\text{NH}_4\text{-N}$ ,  $\text{NO}_3\text{-N}$ ,  $\text{SO}_4\text{-S}$  und Na in der Kronentraufe der Kiefernbestände Holdorf und Sandkrug zwischen 1996 und 2003.

### 7.7.2 Stoffbilanzen

Für die Abschätzung einer Ökosystembilanz müssen alle relevanten Flüsse über die Ökosystemgrenzen ermittelt werden. Dies muss in der Regel über die Schätzung der Flüsse selbst erfolgen. Eine Schätzung der Flüsse über Veränderungen von Vorräten einzelner Kompartimente ist unsicher, da die Vorräte gegenüber den Flüssen groß sind und aufgrund der räumlichen Variabilität nur ungenau erfasst werden können (Tabellen 7.8 und 7.9). Eine Ausnahme stellt die Schätzung der

Netto-Aufnahme in die Baumbiomasse dar, die aus Vorratsinventuren und dem Wachstumsverlauf der Bestände ermittelt wird (Rademacher et al. 1999, Jacobsen et al. 2002). Die Bodenvegetation wird nicht in die Betrachtung der längerfristigen Stoffumsätze berücksichtigt, da angenommen wird, dass sich Assimilation und Mineralisation in einem Fließgegewicht befinden (Bolte et al. 2004).

Tabelle 7.9:

N-Vorräte in verschiedenen Kompartimenten an den Standorten Augustendorf (AUKIW1), Sandkrug und Holdorf.

Kompartiment	Augu- stendorf	Sand- krug	Hol- dorf
	Vorrat $\text{kg ha}^{-1}$		
Baumbiomasse <sup>a</sup>	291	291	291
Bodenvegetation	69 <sup>b</sup>	10	25
(Strauch- und Kraut- schicht)			
Humusauflage	~1400	~1800	~1900
Mineralboden <sup>c</sup>	~7800	~1800	~2900
Ökosystemvorrat	~9600	~3900	~5100

<sup>a</sup> n. Rademacher et al. (1999)

<sup>b</sup> Bolte et al. 2004

<sup>c</sup> Augustendorf: 0-100 cm, Sandkrug und Holdorf: 0-90 cm

Als Austragspfad, der nicht durch Messungen erfasst wird, kommen gasförmige N-Verluste in Betracht. Diese können in Form der N-Spezies  $\text{N}_2\text{O}$ , NO oder  $\text{N}_2$  vonstatten gehen (Brumme et al. 1999). Nach Brumme et al. (1999) ist es wenig wahrscheinlich, dass die  $\text{N}_2\text{O}$ -Emissionen auf nicht grundwasserbeeinflussten Standorten unter Kiefer höher als  $3 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  sind. Jedoch lassen sich kaum Abschätzungen der Flüsse von NO und  $\text{N}_2$  treffen, so dass eine Gesamtaussage über gasförmige N-Emissionen ohne orientierende Messungen nicht möglich ist (Brumme, pers. Mitt.). Nach Butterbach-Bahl et al. (2002) lagen die Gesamt-N-Emissionen in Buchen- und Fichtenbeständen des Höglwald während 4-jähriger Messungen bei ca.  $15 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ . Für die hier untersuchten Bestände scheinen demnach gasförmige N-Verluste im Bereich zwischen 0 und  $10 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  am wahrscheinlichsten.

Nach den konventionell gemessenen N-Flüssen (Meesenburg et al. 1997), d.h. ohne Berücksichtigung der mikrometeorologisch bestimmten N-Aufnahme im Kronenraum, ergibt sich langfristig für Augustendorf eine mittlere Gesamtdeposition von etwa  $34 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ . Dem steht eine Netto-Aufnahme in die Baumbiomasse von ca.  $5 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  und ein Austrag mit dem Sickerwasser von ca.  $27 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  gegenüber (Tabelle 7.8). Damit errechnet sich eine Bilanz, die zwischen einem Überschuss von ca.  $2 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  liegt, der möglicherweise im Ökosystem

gespeichert wird, bishin zu einem Defizit, dass bis zu einer Höhe von  $8,2 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  das Ökosystem verlässt

Trotz etwas geringerer N-Deposition ergeben sich für Sandkrug und Holdorf höhere Bilanzüberschüsse, da die Austräge mit dem Sickerwasser geringer waren. In Sandkrug sind die Akkumulationsraten mit Werten zwischen 6,4 und  $16,4 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  mit Abstand am größten.

Die N-Flüsse zeigen insbesondere auf der Austragsseite eine hohe zeitliche Dynamik, die u.a. von der Dynamik der Wasserflüsse abhängig ist (Abbildungen 7.42 bis 7.44). So wurden an allen Standorten 2002 überdurchschnittlich hohe Sickerwasserraten verzeichnet. Für die Messjahre 2002 und 2003 ergeben sich für Augustendorf stark negative N-Bilanzen, während dies in Holdorf und Sandkrug in keinem Untersuchungsjahr der Fall war. In Sandkrug und Holdorf deutet sich im Gegensatz zu Augustendorf, wo ein Anstieg zu verzeichnen ist, ein Rückgang der N-Austräge an. Die unterschiedlichen zeitlichen Muster der N-Austräge an den Untersuchungsstandorten verdeutlichen die gegenüber den Depositionsraten großen Unterschiede der internen N-Dynamik der Bestände.

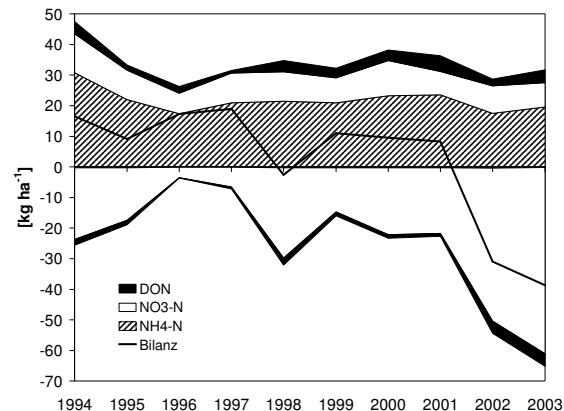


Abbildung 7.42:

N-Flüsse (positiv: Deposition, negativ: Austrag mit Bodenlösung) im Zeitraum 1994 bis 2003 am Standort Augustendorf (AUKIW1).

Eine N-Speicherung von  $2 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  im Ökosystem liegt im Bereich des Messfehlers (Tabelle 7.8). Aber auch bei einem Bilanzüberschuss von  $16 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  ist nicht zu erwarten, dass dieser mittelfristig (ca. 10 a) durch Inventurvergleiche nachgewiesen werden kann. Nach Aber et al. (1998) können N-Mengen bis zu  $150 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  in Waldökosystemen zurückgehalten werden. Meiwes et al. (2002) fanden allein in Humusauflagen von Buchen- und Fichtenökosystemen im Solling N-Speicherraten von 20 bzw.  $40 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ . Dem-

nach erscheint eine N-Retention im Boden der Kiefernökosysteme möglich.

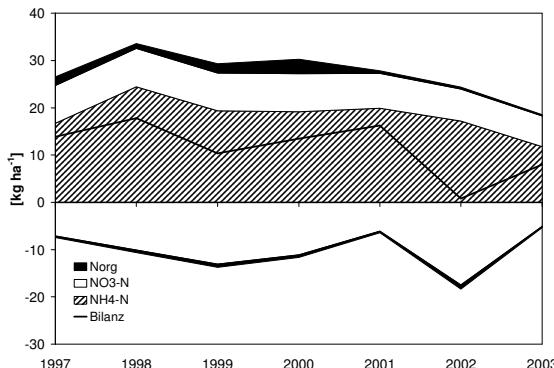


Abbildung 7.43:  
N-Flüsse (positiv: Deposition, negativ: Austrag mit Bodenlösung) im Zeitraum 1997 bis 2003 am Standort Holdorf.

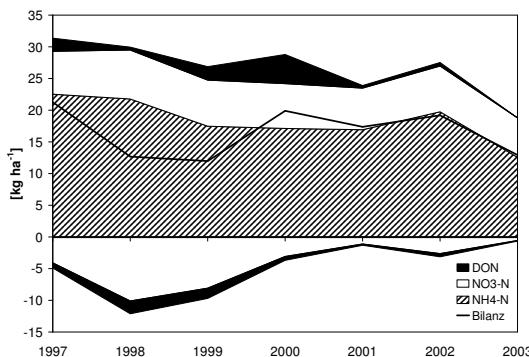


Abbildung 7.44:  
N-Flüsse (positiv: Deposition, negativ: Austrag mit Bodenlösung) im Zeitraum 1997 bis 2003 am Standort Sandkrug.

Wenn unterstellt wird, dass es sich bei den Gesamtdepositionsraten nach Ulrich (1994) um eine konservative Schätzungen handelt oder die N-Einträge entsprechend den Ergebnissen der mikrometeorologischen Messungen um 20 bis 30  $\text{kg ha}^{-1} \text{a}^{-1}$  höher liegen, würde sich ein Bilanzüberschuss von etwa 25 bis 40  $\text{kg ha}^{-1} \text{a}^{-1}$  für die drei Kiefernökosysteme ergeben. Eine Speicherung in der Humusauflage in dieser Größenordnung ließe sich mit den in Augustendorf angewandten Monitoring-Verfahren nach 20 bis 30 Jahren nachweisen.

#### 7.7.2.1 Protonen-Bilanz am Standort Augustendorf

Aufgrund der N-Einträge in das Ökosystem und der nachfolgenden Umwandlungen der N-Komponenten ergeben sich auch Protonentransfers, aus denen eine Säurebelastung für das Öko-

system resultiert. Um diese abzuschätzen, wurde für den Standort Augustendorf beispielhaft eine Säurebilanz nach dem Verfahren von Ulrich (1994) erstellt. Dabei wird aus den Eintrags-/Austragsbilanzen der Elemente die Säurebilanz erstellt. Der Eintrag ist die Summe von Gesamtdeposition und Verwitterung. Die Freisetzung basischer Kationen (Verwitterung) wird dabei mit dem Modell PROFILE geschätzt (Sverdrup und Warfvinge 1993). Der Austrag ist die Summe von Sickerwasseraustrag und Netto-Aufnahme durch den Baumbestand, der nach Rademacher et al. (1999) geschätzt wurde.

Nach Ulrich (1994) ist die Säurebelastung des Ökosystems die Summe von

- Säure-Eintrag: Positive Bilanzen (Eintrag > Austrag) von Ma-Kationen (H, Mn, Al, Fe).
- N-Transformationen:  $\text{NH}_4\text{-Eintrag} - \text{NH}_4\text{-Austrag} - \text{NO}_3\text{-Eintrag} + \text{NO}_3\text{-Austrag}$
- S-Austrag: Negative Bilanzen von  $\text{SO}_4$  und schwachen Säuren. Schwache Säuren wurden aus der Ionenbilanz berechnet. Cl wird nur berücksichtigt, wenn die Bilanz nicht durch Mb-Kationen gedeckt wird.
- Mb-Retention: Positive Bilanzen von Mb-Kationen (Na, K, Mg, Ca), korrigiert um Neutralsalzakkumulation

Die Säurebelastung wird durch Säure-/Base-Reaktionen (Pufferung) ausgeglichen:

- Ma-Austrag: Negative Bilanzen von Ma-Kationen
- S-Retention: Positive Bilanzen von  $\text{SO}_4$  und schwachen Säuren.
- Mb-Austrag: Negative Bilanzen von Mb-Kationen, korrigiert um Neutralsalzauswaschung

Im Gegensatz zu Ulrich (1994) wurden protonengenerierende und -konsumierende N-Transformationen in einer einzigen Gleichung berechnet. Wenn der Wert der N-Transformationen negativ ist, ist er als Säure-/Base-Reaktion zu berücksichtigen.

Die Säurebilanz für den Standort AUKI1 zeigt, dass die Säurebelastung weit überwiegend durch N-Transformationen verursacht wird (Abbildung 7.45). Dies unterstreicht die Bedeutung der N-Depositionen nicht nur für die Eutrophierung, sondern auch für den Säurehaushalt der Ökosysteme. Die Säurebelastung wird überwiegend durch den Austrag von Ma-Kationen als Säure-/Base-Reaktion ausgeglichen. Als Ma-Kation spielt fast ausschließlich Al eine Rolle.

Der Austrag von Al wiederum ist ein Problem

für die Hydrosphäre und für die Nutzung des Grundwassers als Trinkwasser, weil schon geringe Al-Gehalte im Trinkwasser schädlich sind und Probleme bei der Wasseraufbereitung verursachen. Ein geringerer, aber nicht unbedeutender Teil der Säurebelastung wird durch den Austrag von Mb-Kationen gepuffert. Dies kann wiederum für das Waldökosystem ein Problem darstellen, wenn die Austragsraten dieser Nährstoffe so hoch sind, dass die Nachlieferung mit dem Austrag nicht Schritt halten kann (Rademacher et al. 2001).

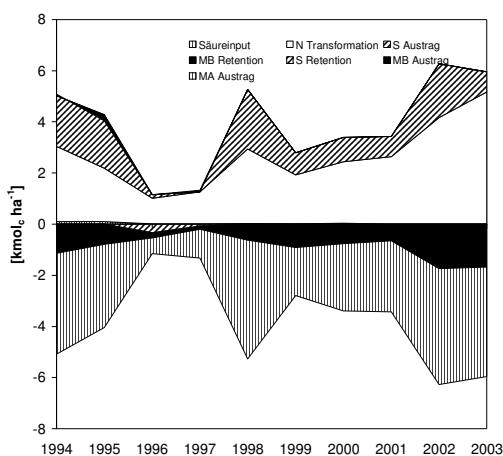


Abbildung 7.45:  
Säurebilanz (nach Ulrich 1994) (positiv: Säurebelastung, negativ: Säurepufferung) im Zeitraum 1994 bis 2003 am Standort Augustendorf (AUKIW1).

Die mittelfristigen Ergebnisse des Monitorings in Augustendorf zeigen, dass die N-Einträge den Stoffhaushalt des Waldökosystems maßgeblich steuern. Ähnliche Verhältnisse sind unter Berücksichtigung der abweichenden N-Flüsse auch in Sandkrug und Holdorf anzutreffen.

Das Waldökosystem Augustendorf scheint derzeit nicht in der Lage, eingetragenes N zu speichern. Daraus resultiert eine Belastung des Grundwassers mit  $\text{NO}_3$ , die langfristig die Nutzung als Trinkwasser in Frage stellen könnte. Die Nitrifizierung von eingetragenem  $\text{NH}_4$  und nachfolgende Auswaschung als  $\text{NO}_3$  bewirken ferner eine erhebliche Säurebelastung des Bodens, die ein Risiko für den erhöhten Austrag von Al in das Grundwasser, aber auch ein Risiko für den Erhalt der Bodenfunktionen darstellt.

## 7.8 Literatur

Aber JD, McDowell W, Nadelhoffer KJ, Magill A, Berntson G, Kamakea M, McNulty S, Currie W, Rustad L, Fernandez I (1998) Nitrogen saturation in temperate forest ecosystems: Hypotheses revisited. BioScience 48, 921-934.

- AK Standortskartierung (1996) Forstliche Standortsaufnahme: Begriffe, Definitionen, Einteilungen, Kennzeichnungen, Erläuterungen. 5. Aufl.. Eching (München), IHW-Verlag.
- Andersen HV, Hovmand MF, Hummelshøj P, Lensen NO (1993) Measurements of Ammonia Fluxes to a spruce stand in Denmark. Atmos Environ 27A, 189-202.
- Andersen HV, Hovmand MF (1995) Ammonia and nitric acid dry deposition and throughfall. Water Air Soil Pollut 85, 2211-2216.
- Andersen HV, Hovmand MF (1999) Review of dry deposition measurements of ammonia and nitric acid to forest. Forest Ecol Managem 114, 5-18.
- Andersen HV, Hovmand MF, Hummelshøj P, Jensen NO (1999) Measurement of ammonia concentrations, fluxes and dry deposition velocities to a spruce forest 1991-1995. Atmos Environ 33, 1367-1383.
- Ashbaugh LL, Eldred RA (2004) Loss of Particle Nitrate from Teflon Sampling Filters: Effects on Measured Gravimetric Mass in California and in the IMPROVE Network. J Air Waste Managem Assoc 54, 93-104.
- BMELF (1997) Deutscher Waldbodenbericht. 1. Bonn, Bundesministerium für Ernährung, Landwirtschaft und Forsten. S. 91-93.
- Bolte A, Lambertz B, Steinmeyer A, Kallweit R, Meesenburg H (2004) Zur Funktion der Bodenvegetation im Nährstoffhaushalt von Wäldern: Studien auf Dauerbeobachtungsflächen des EU-Level II-Programms in Norddeutschland. Forstarchiv 75, 207-220.
- Brumme R, Borken W, Finke S. (1999) Hierarchical control of nitrous oxide emission in forest ecosystems. Global Biogeochem Cycles 13, 1137-1148.
- Butterbach-Bahl K, Gasche R, Willibald G, Papen H (2002) Exchange of N-gases at the Höglwald Forest – A summary. Plant Soil 240, 117-123.
- Dämmgen U, Erisman JW, Cape JN, Grünhage L, Fowler D (2005a) Practical considerations for addressing uncertainties in monitoring bulk deposition. Environ Pollut, im Druck
- Dämmgen U, Mohr K, Meesenburg H (2005a) Die Bestimmung von Flüssen reaktiver Stickstoff-Spezies in hoch mit Stickstoff belasteten Wald-Ökosystemen – methodische Grundlagen, Randbedingungen und Konzept der Messungen und Modellierungen im ANSWER-Projekt. Landbauforsch Völkenrode SH XXX, YY-ZZ.
- Dämmgen U, Schaaf S, Horváth B, Meesenburg H, Mohr K (2005b) Methoden zur Bestimmung von Stoffflüssen und -konzentrationen im ANSWER-Projekt. Landbauforsch Völkenrode SH XXX, YYY-ZZZ.
- Dämmgen U, Schaaf S (2002) Accuracy and representativity of heat flux measurements. Proc from the EUTRAC2 Symposium 2002. Weikersheim, Markgrafen.
- Draaijers GPJ, Erisman JW (1995) A canopy budget model to assess atmospheric deposition from throughfall measurements. Water Air Soil Pollut 85, 2253-2258.

- Duyzer JH, Verhagen HLM, Weststrate JH, Bosveld FC (1992) Measurement of the dry deposition flux of  $\text{NH}_3$  on to coniferous forests. *Atmos Environ* 75, 3-13.
- Fowler D, Cape N (1983) Dry deposition of  $\text{SO}_2$  onto a scots pine forest. In: Pruppacher HR, Semonin RG, Slinn WGN (1983) Precipitation Scavenging, Dry Deposition, and Resuspension. Bd. 2: Dry Deposition and Resuspension. New York, Elsevier. S. 763-773.
- Gauger T, Anshelm F, Schuster H, Erisman JW, Vermeulen AT, Draaijers GPJ, Bleeker A, Nagel H-D (2002) Mapping of ecosystem specific long-term trends in deposition loads and concentration of air pollutants in Germany and their comparison with Critical Loads and Critical Levels, Part 1: Deposition Loads 1990-1999. Stuttgart, Inst. f. Navigation. 207 S.
- Granat L, Richter A (1995) Dry deposition to pine of sulphur dioxide and ozone at low concentration. *Atmos Environ* 29, 1677-1683.
- Gehrmann J, Andreae H, Fischer U, Lux W, Spranger T (2001) Luftqualität und atmosphärische Stoffeinträge an Level II - Dauerbeobachtungsflächen in Deutschland. Bonn, BMVEL. 94 S.
- Hüttl RF (1991) Die Nährlementversorgung geschädigter Wälder in Europa und Nordamerika. Freiburger Bodenkundl Abh 28, 440 S.
- Jacobsen C, Rademacher P, Meesenburg H, Meiwes KJ (2002) Gehalte chemischer Elemente in Baumkompartmenten: Literaturstudie und Datensammlung. Abschlussbericht BMVEL-Projekt, 80 S.
- Kirchner M, Braeutigam S, Ferm M, Haas M, Hangartner M, Hofschreuder P, Kasper-Giebl A, Römmelt H, Striedner J, Terzer W, Thöni L, Werner H, Zimmerling R (1999) Field intercomparison of diffusive samplers for measuring ammonia. *J Environ Monit* 1, 259-265.
- Langusch JJ, Borken W, Armbruster M, Dise NB, Matzner, E (2003) Canopy leaching of cations in Central European forest ecosystems. *J Plant Nutr Soil Sci* 166, 168-174.
- Meesenburg H, Meiwes KJ, Rademacher P (1995) Long-term trends in atmospheric deposition and seepage output in northwest German forest ecosystems. *Water Air Soil Pollut* 85, 611-616.
- Meesenburg H, Meiwes KJ, Schulze A, Rademacher P (1997) Bodendauerbeobachtungsflächen auf forstlich genutzten Flächen (BDF-F). in: Kleefisch B, Kues J (Hrsg.) Das Bodendauerbeobachtungsprogramm von Niedersachsen: Methodik und Ergebnisse, Arb-H Boden 2/1997, 77-95.
- Meesenburg H, Mohr K, Dämmgen U, Schaaf S, Meiwes KJ, Horváth (2005) Stickstoff-Einträge und -Bilanzen in den Wäldern des ANSWER-Projekts - eine Synthese. Landbauforsch Völkenrode SH XXX, YYY-ZZZ.**
- Meiwes KJ, Meesenburg H, Bartens H, Rademacher P, Khanna PK (2002) Akkumulation von Auflagehumus im Solling: Mögliche Ursachen und Bedeutung für den Nährstoffkreislauf. *Forst Holz* 57, 428-433.
- Meixner FX, Franken HH, Duijzer JH, van Aalst RM (1988) Dry deposition of gaseous  $\text{HNO}_3$  to a pine forest. In: van Dop, H. (Hrsg.) Air Pollution Mod-eling and Its Application. New York, Plenum. S. 23-35.
- Möller, D (2003) Depositionen von Spurenstoffen. In: Luft. Berlin, de Gruyter.
- Mohr K (2001) Stickstoffimmissionen in Nordwestdeutschland - Untersuchungen zu den ökologischen Auswirkungen auf Kiefernforsten und Möglichkeiten der Bioindikation. Dissertation Universität Oldenburg. <http://www.bis-uni.oldenburg.de>, 182 S.
- Mohr K, Meesenburg H, Dämmgen U (2005a) Die Stickstoff-Belastung von Waldökosystemen – Wirkungen, Wirkungspfade, offene Fragen, Gesamtkonzept. Landbauforsch Völkenrode SH XXX, YY-ZZ.**
- Mueller SF, Weatherford FP (1988) Chemical deposition to a high elevation red spruce stand. *Water Air Soil Pollut* 38, 345-363.
- Peters K, Bruckner-Schatt G (1995) The dry deposition of gaseous and particulate Nitrogen compounds to a spruce stand. *Water Air Soil Pollut* 85, 2217-2222.
- Rademacher P, Buß B, Müller-Using B (1999) Waldbau und Nährstoffmanagement als integrierte Aufgabe in der Kiefern-Waldwirtschaft auf ärmeren pleistozänen Sanden. *Forst Holz* 54, 330-335.
- Rademacher P, Meesenburg H, Müller-Using B (2001) Nährstoffkreisläufe in einem Eichenwald-Ökosystem des Norddeutschen Pleistozäns. *Forstarchiv* 71, 43-54.
- Rothe A, Huber C, Kreutzer K, Weis W (2002) Deposition and soil leaching in stands of Norway spruce and European beech. Results from the Höglwald research in comparison with other European case studies. *Plant Soil* 240, 1-14.
- Schaaf S, Dämmgen U, Grünhage L (2005a) Fluxes of atmospheric N and S species between the atmosphere near the ground and arable crops. *Environ Pollut*, in Vorbereitung.
- Schaaf S, Dämmgen U, Mohr K, Meesenburg H (2005b) Witterung, Spurengas- und Schwebstaub-Inhaltsstoff-Konzentrationen in der Umgebungsluft und in den Beständen des ANSWER-Projekts. Landbauforsch Völkenrode SH XXX, YYY-ZZZ.**
- Schaaf S, Meesenburg H (2005) Modellierung der Stoffflüsse in Waldbeständen im ANSWER-Projekt. Landbauforsch Völkenrode SH XXX, YYY-ZZZ.**
- Sorteberg A, Hov O (1996) Two parametrizations of the dry deposition exchange for  $\text{SO}_2$  and  $\text{NH}_3$  in a numerical model. *Atmos Environ* 30, 1823-1840.
- Sverdrup H, Warfvinge P (1993) Calculating field weathering rates using a mechanistic geochemical model PROFILE. *Appl Geochem* 8, 273-283.
- Ulrich B (1994) Nutrient and acid/base budget of central European forest ecosystems. In: Hüttmann A, Godbold DL (Hrsg.) Effects of acid rain on forest processes. New York, Wiley. S. 1-50.
- van der Salm C, Reinds GJ, de Vries W (2004) Assessment of the water balance of European forests: a model study. *Water Air Soil Pollut Focus* 4, 175-190.
- Wyers P, Duyzer JH (1997) Micrometeorological measurement of the dry deposition flux of sulphate and nitrate aerosols to coniferous forest. *Atmos Environ* 31, 333-334.

- Wyers GP, Vermeulen AT, Slanina J (1992) Measurement of dry deposition of ammonia on a forest. *Environ Pollut* 75, 25-28.
- Zhang L, Gong S, Padro J, Berrie L (2001) A size-segregated particle dry deposition scheme for an atmospheric aerosol module. *Atmos Environ* 35, 549-560.
- Zimmerling R, Dämmgen U, Haenel H-D (2000) Flüsse versauernd und eutrophierend wirkender Spezies zwischen Atmosphäre und Wald- und Forstökosystemen. *Landbauforsch Völkenrode* SH 213, 95 – 127.

## 8 Stickstoff-Einträge und -Bilanzen in den Wäldern des ANSWER-Projektes – eine Synthese

H. Meesenburg, K. Mohr, U. Dämmgen, S. Schaaf, K.J. Meiws, B. Horváth

### 8.1 Depositionen in Wälder im Weser-Ems Gebiet

Stickstoff (N) spielt eine zentrale Rolle im Stoffhaushalt von Wäldern. In vielen Gebieten Europas haben sie durch anhaltend hohe N-Einträge den Zustand der „Stickstoff-Sättigung“ erreicht. Unter derartigen Bedingungen steht die Höhe des N-Eintrages der Wälder in einer komplexen Wechselwirkung mit den ökologischen Bedingungen, welche die Senken- und Quelleigenschaften der Bestände steuern.

Ziel der Untersuchungen im ANSWER-Experiment war es, die atmogenen N-Einträge in Wälder in einer agrarischen intensiv genutzten Region, wie es das Weser-Ems-Gebiet darstellt, raum- und standortsbezogenen zu beschreiben. Dabei ging es um den Zusammenhang zwischen Immission und Deposition, um die Bestimmung der trockenen N-Deposition mit verschiedenen Verfahren, um die Abhängigkeit der trockenen Deposition von Bestandseigenschaften sowie um die Wirkung der N-Einträge auf bestimmte Funktionen von Waldökosystemen. Das Untersuchungskonzept wurde so ausgerichtet, dass entsprechende Faktoren erfassbar und interpretierbar sind. Hierzu bedurfte es eines erheblichen technischen Aufwandes, der den experimentellen und räumlichen Gegebenheiten anzupassen war. Daten vollständig synchronisierter Messungen von den 4 Bestandessstellen liegen aus einem Zeitraum von etwa 18 Monaten vor.

Die Konzentrationsdaten für Ammoniak ( $\text{NH}_3$ ) und Ammonium ( $\text{NH}_4$ ) an den drei Kiefernstandorten Holdorf, Augustendorf und Sandkrug sowie dem Eichenstandort Herrenholz bestätigen die Kenntnisse über die relativ hohe atmogene Belastung der Region mit reduzierten N-Verbindungen, die vorwiegend landwirtschaftlicher Nutzung zuzurechnen sind. Am Standort Augustendorf, wo eine detaillierte Untersuchung der Immissionssituation durchgeführt wurde, wurden relativ hohe mittlere Konzentrationen von  $\text{NO}_2$ ,  $\text{NH}_3$  und  $\text{NH}_4$  gefunden. Die Konzentrationen von  $\text{HNO}_3$  und  $\text{HNO}_2$  lagen unterhalb von  $1 \mu\text{g m}^{-3}$  N (vgl. Schaaf et al. 2005b).

Die trockene Deposition wurde von reduzierten N-Spezies ( $\text{NH}_3$ ,  $\text{NH}_4$ ) dominiert. Zusammen hatten sie einen Anteil von 69 % an der trockenen N-Deposition. Die oxidierten N-Formen ( $\text{NO}_3$ ,  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{NO}_2$  und  $\text{HNO}_2$ ) hatten einen Anteil von 31 %. Der hohe Anteil von  $\text{NH}_3$  und  $\text{NH}_4$  an der

trockenen Deposition verdeutlicht das Versauerungspotenzial, das am Standort Augustendorf die N-Deposition für den Waldboden mit sich bringt. Die Depositionsgeschwindigkeiten der einzelnen N-Komponenten deckten sich im Wesentlichen mit den in der Literatur angegebenen Werten für Nadelwälder.

Insgesamt betrug die mit dem mikrometeorologischen Verfahren in Augustendorf ermittelte trockene Deposition im Messzeitraum (2002/2003)  $44 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  N. Zusammen mit der nassen N-Deposition ( $13 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  N) ergibt sich eine Gesamtdeposition von  $57 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  N. Dem gegenüber wurden in der Kronentraufe Einträge von  $30 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  N gemessen. Der mit der Kronentraufemethode ermittelte N-Eintrag lag etwa 50 % niedriger als der Eintrag, der sich aus den mikrometeorologischen Messungen und der anschließenden Modellierung des N-Eintrages ergab. Dieser durch konventionelle Messungen nicht erfassbare Anteil der N-Aufnahmeraten im Kronenraum liegt höher als die Ergebnisse anderer Untersuchungen und Schätzungen (5 bis 40 %, Harrison et al. 2000, Gehrman et al. 2001).

Die ermittelte kronenrauminterne N-Aufnahme von  $27 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  N ist angesichts der Raten anderer N-Flüsse im System sehr hoch. Messtechnisch bedingte Abweichungen von  $\pm 10\%$  vom tatsächlichen Wert entsprechen beispielsweise der jährlichen N-Aufnahme der Bäume für die Bildung des Holzzuwachses von ca.  $5 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ .

Zur Beurteilung der Plausibilität bzw. möglicher Fehler der mit mikrometeorologischen Verfahren bzw. mit der Kronenraumbilanzierung ermittelten N-Eintragsraten können die gemessenen Flüsse anderer Elemente herangezogen werden.

### 8.2 Zur Vergleichbarkeit von mikrometeorologischen Stoffflussmessungen und Einträgen mit der Kronentraufe

Stoffflussmessungen mit mikrometeorologischen Mitteln unterscheiden sich von Bestandesniederschlags- bzw. Streufallmessungen hinsichtlich einer Reihe von Einflussgrößen. Die wichtigsten sind in Tabelle 8.1 aufgeführt.

Tabelle 8.1  
Einflussgrößen bei mikrometeorologischen Stoffflussbestimmungen und dem Kronenraufverfahren

	mikrometeorologische Flüsse	Bestandes- und Freilandniederschlag, Streufall
zeitliche Auflösung	regelmäßig halbstündlich	ereignisabhängig (Niederschläge, Laubfall)
„Vehikel“	trockene Atmosphäre	Niederschläge, Laub
Durchtrittsfläche	in der Atmosphäre oberhalb des Bestandes	in der Atmosphäre oberhalb des Bodens
Reaktionen im Kronenraum	nicht erfasst	erfasst

Eine Betrachtung von Stoffflüssen, die mit mikrometeorologischen Methoden und über Freiland- und Bestandesniederschlag erhalten wurden (Abbildungen 8.1 und 8.2) weist zunächst darauf hin, dass die unterschiedlichen Zeitskalen und Transportprozesse den Vergleich erschweren:

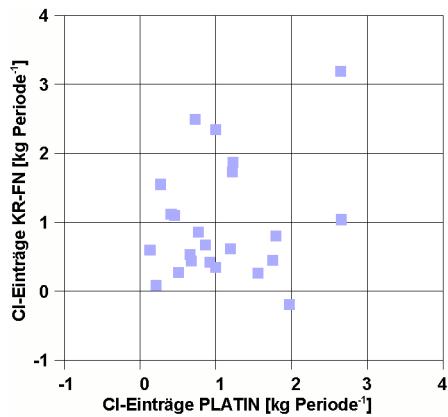


Abbildung 8.1:  
Vergleich der mit Hilfe des mikrometeorologischen Verfahrens bestimmten Cl-Einträge (PLATIN) mit denen aus der Kronenraumbilanz (KR-FN). Dauer der Perioden ungefähr 1 Monat.

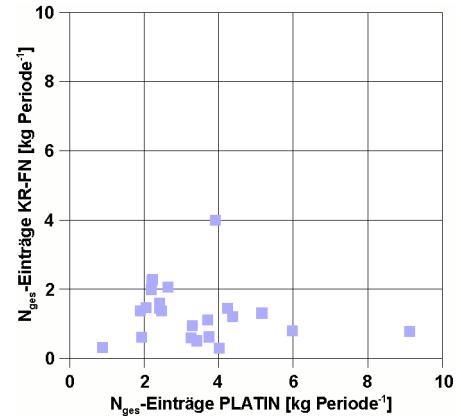


Abbildung 8.2

Vergleich der mit Hilfe des mikrometeorologischen Verfahrens bestimmten Gesamt-N-Einträge (PLATIN) mit denen aus der Kronenraumbilanz (KR-FN). Dauer der Perioden ungefähr 1 Monat. Als Gesamt-N wird bei PLATIN die Summe der Flüsse aller N-Spezies angesehen, bei der Kronenraumbilanz die der als Gesamt-N (Dumas-Verfahren) bestimmten Flüsse.

Während die in Abbildung 8.1 wiedergegebenen Cl-Flüsse im Mittel von gleicher Größenordnung sind und sich mit den unterschiedlichen Retentionszeiten im Bestand deuten lassen (negative Werte belegen diese Verzögerungen), lassen sich die N-Flüsse (Abbildung 8.2) nur deuten, wenn man neben dem Bestandesniederschlag auch das Laub als transportierendes Medium („Vehikel“) heranzieht; die im Laub gebundene N-Menge fehlt hier völlig. Dies setzt allerdings voraus, dass die N-Spezies anders als Cl ins Blatt inkorporiert werden.

Die Zeitreihen der beobachteten Flüsse lassen keinerlei Gemeinsamkeiten erkennen. Während die Flüsse im mikrometeorologischen Verfahren (Abbildung 8.3) wesentlich von Konzentrationen und atmosphärischer Turbulenz abhängen, sind die Bestandesniederschläge sehr von der Niederschlagsmenge abhängig (Abbildung 8.4). Die Einträge werden im Kronenraum zurückgehalten. Ein Teil wird offenbar auch verstoffwechselt und erst mit dem Streufall dem Boden bzw. den Sammlern zugeführt.

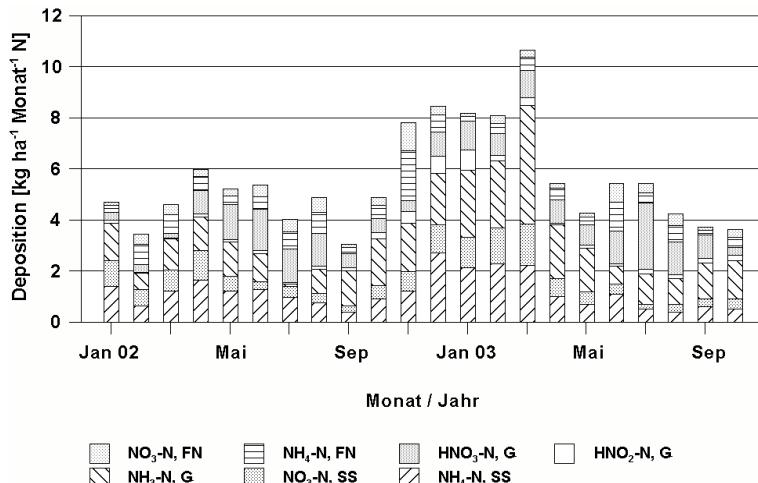


Abbildung 8.3:  
Zeitreihe der mit Hilfe mikrometeorologischer Verfahren bestimmten Einträge von N-Spezies. Abfolge der Spezies in der Legende von oben nach unten. FN: Freilandniederschlag; G: Gasphase; SS: Schwebstaub

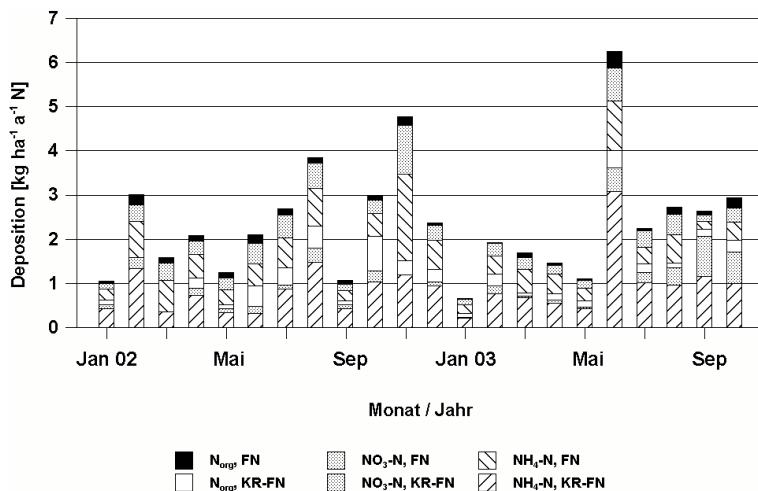


Abbildung 8.4  
Zeitreihe der mit Hilfe der Kronenraumbilanz bestimmten Einträge von N-Spezies ohne Berücksichtigung des Streufalls. Abfolge der Spezies in der Legende von oben nach unten. FN: Freilandniederschlag; KR: Bestandesniederschlag.

### 8.3 Elementeinträge am Standort Augustendorf

#### 8.3.1 Natrium- und Chlorid-Deposition

Zur Plausibilitätskontrolle kommen für Na nur Flüsse in gelöster oder partikulärer Form in Betracht. Na-Flüsse mit gasförmigen Spezies existieren nicht. Der Kronenraum wird gegenüber Na als weitgehend inert angesehen: Kronenraumaufnahme oder Leaching sind ebenfalls zu vernachlässigen. Damit wird unterstellt, dass der Bestandesniederschlag die Gesamtdeposition von Na darstellt (Ulrich 1994).

Im Untersuchungszeitraum 2002/2003 wurde im Mittel eine Na-Bulk-Deposition von 10,1

$\text{kg ha}^{-1} \text{a}^{-1}$  gemessen (Abbildung 8.5). Die mikrometeorologisch ermittelte trockene Deposition lag bei  $8,8 \text{ kg ha}^{-1} \text{a}^{-1}$ . Mit dem Bestandesniederschlag gelangten im Mittel  $16,3 \text{ kg ha}^{-1} \text{a}^{-1}$  auf den Waldboden. Im Vergleich zu der mikrometeorologisch ermittelten Gesamtdeposition von  $18,9 \text{ kg ha}^{-1} \text{a}^{-1}$  ist der Na-Eintrag mit dem Bestandesniederschlag somit um ca. 15 % niedriger. Die Differenz zwischen den beiden Verfahren liegt innerhalb der Fehlerschranken der Messungen (Bulk-Deposition 15 %, Dämmgen et al. 2000; Kronentraufe 20 %, Dämmgen et al. 2005; mikrometeorologische Messungen bei Na sicher 20 %). Somit kann die Übereinstimmung zwischen den beiden Verfahren als hinreichend angesehen werden.

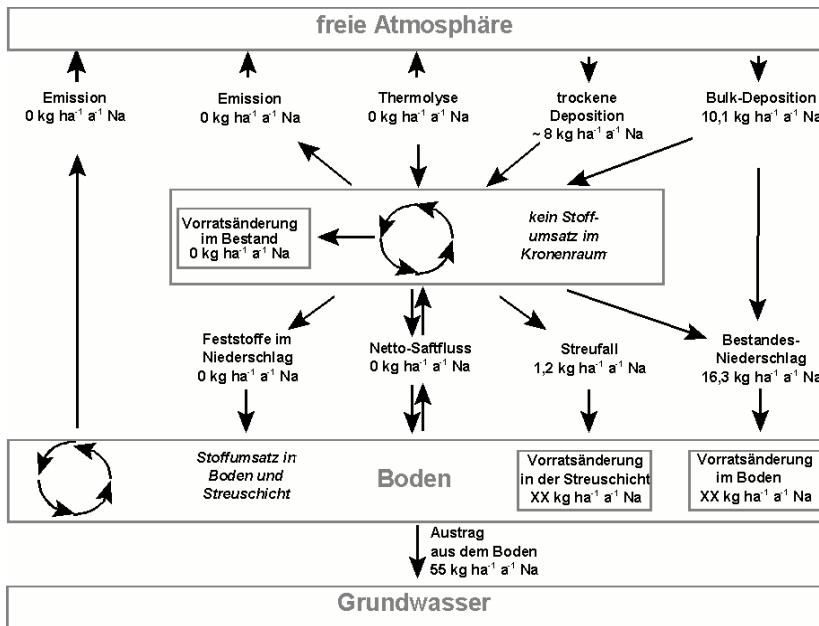


Abbildung 8.5:  
Na-Flüsse im Kiefernbestand AUKIW1 im Messzeitraum 2002/2003.

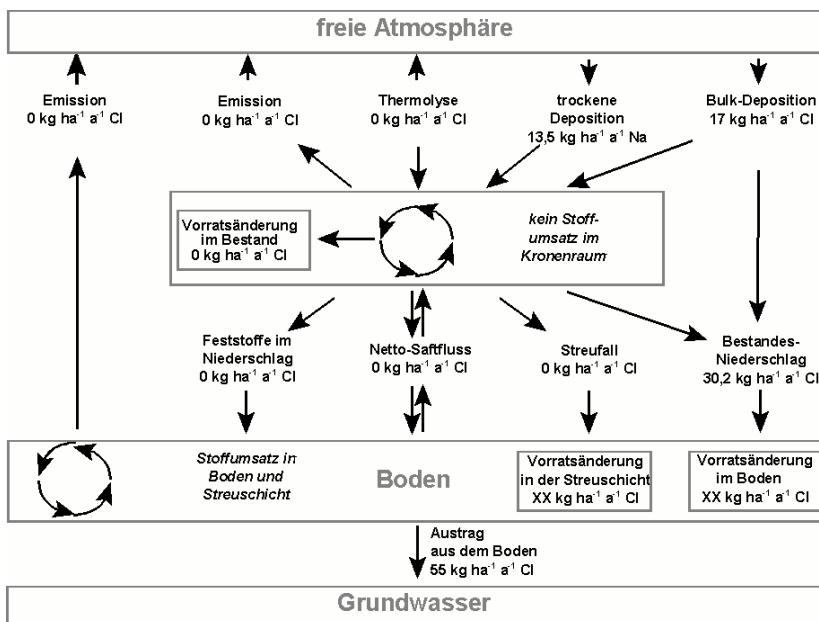


Abbildung 8.6:  
Cl-Flüsse im Kiefernbestand AUKIW1 im Messzeitraum 2002/2003 (Streufall: nicht gemessen).

Bezüglich Cl wird der Kronenraum ebenfalls als weitgehend inert angesehen. Im Unterschied zu Na ist für Cl jedoch auch eine gasförmige Deposition als HCl möglich.

Der Cl-Eintrag mit der Bulk-Deposition betrug im Mittel 17 kg ha⁻¹ a⁻¹, die mikrometeorologisch ermittelte trockene Deposition lag bei 13,5 kg ha⁻¹ a⁻¹, wobei hier die HCl-Deposition vernachlässigt wurde (Abbildung 8.6). Mit dem Bestandesniederschlag wurden im Mittel 30,2 kg ha⁻¹ a⁻¹ transportiert, was sehr gut mit der mi-

krometeorologisch ermittelten Gesamtdeposition von 30,5 kg ha⁻¹ a⁻¹ übereinstimmt.

Aus den Ergebnissen für Na und Cl kann gefolgert werden, dass das mikrometeorologische Verfahren die Partikel-Deposition zutreffend erfasst. Unter der Voraussetzung ähnlicher Partikelgrößen sollte auch die Partikel-Deposition anderer Stoffe hinreichend genau beschrieben werden.

### 8.3.2 Schwefel-Deposition

Die Bulk-Deposition von S betrug im Untersuchungszeitraum im Mittel  $5,4 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ . Im Zeitraum 1994-2003 ist ein abnehmender Trend der S-Einträge zu verzeichnen. Die mikrometeorologisch ermittelte trockene Deposition betrug 2002/2003 im Mittel  $11,3 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ . Damit ergibt sich eine S-Gesamtdeposition von  $16,7 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ , der ein S-Fluss mit dem Bestandesniederschlag von  $9,1 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  gegenübersteht. Die Differenz zwischen mittels mikrometeorologischer Verfahren und Kronenraumbilanzierung geschätzter Gesamtdeposition von 55% liegt außerhalb des Fehlerrahmens der Bestandesniederschlagsmessung von ca.  $2 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  (Dämmgen et al. 2005).

Eine mögliche Erklärung für die Diskrepanz ist die Aufnahme von S im Kronenraum, die bei Ulrich (1994) nicht berücksichtigt wird. Als Aufnahmemechanismus kommt vor allem die stomatäre Aufnahme von  $\text{SO}_2$  in Frage (Thomas 1991, Slovik et al. 1995). Die Detoxifizierung von  $\text{SO}_2$  wird durch die Synthese organischer S-Verbindungen oder die Einlagerung von  $\text{SO}_4$  in

den Zellvakuolen erreicht, wobei letzterer Mechanismus nur unter hoher  $\text{SO}_2$ -Immission von Bedeutung ist (Slovík et al. 1995). Bei mittleren  $\text{SO}_2$ -Konzentrationen von über  $20 \text{ } \mu\text{g m}^{-3}$  bestimmten Slovik et al. (1995) jährliche  $\text{SO}_2$ -Aufnahmeraten von ca.  $3 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ . Da die  $\text{SO}_2$ -Aufnahme direkt von der ambienten  $\text{SO}_2$ -Konzentration abhängig ist, sind bei den in Augustendorf gemessenen  $\text{SO}_2$ -Konzentrationen zwischen 1 und  $4 \text{ } \mu\text{g m}^{-3}$   $\text{SO}_2$ -Aufnahmeraten von mehr als  $1 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  unwahrscheinlich.

Eine weitere potenzielle Senke für trockene S-Deposition ist der Transport von Feststoffen im Feinmaterial, das aufgrund der Filtration der Niederschlagsproben im Bestandesniederschlag nicht erfasst wird. Nach Schätzungen von Lamersdorf und Blanck (1995) für ein überdachtes Fichtenwaldökosystem beträgt diese Fraktion für S jedoch nur 3 bis 4 % des Bodeneintrags (Bestandesniederschlag + Streufall). Für das Kiefernökosystem in Augustendorf würde dieser Fluss damit weniger als  $1 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  betragen.

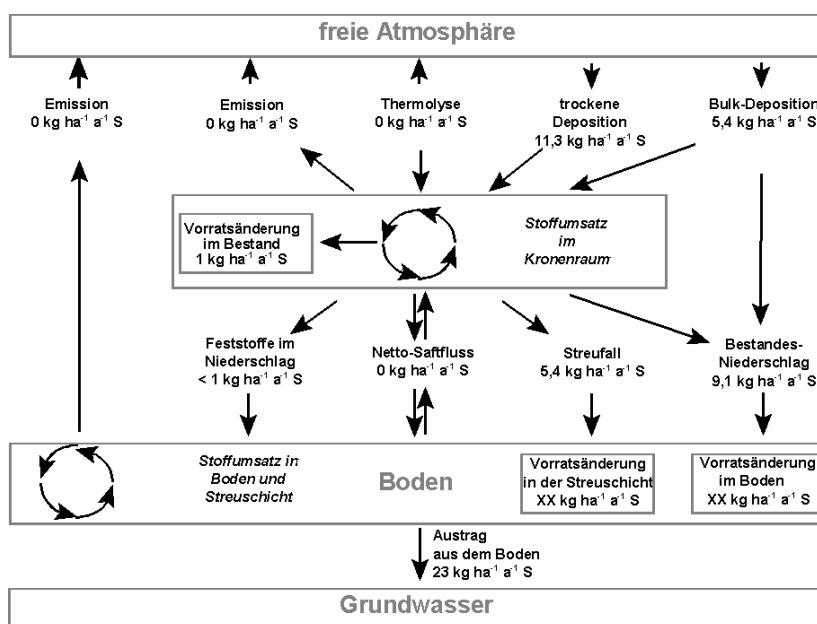


Abbildung 8.7:  
S-Flüsse im Kiefernbestand AUKIW1 im Messzeitraum 2002/2003

Die auf der Grundlage der mikrometeorologisch ermittelten S-Deposition erstellte atmosphärische S-Bilanz des Bestandes ist im Rahmen der Messgenauigkeit ausgeglichen (Abbildung 8.7). Ähnliches beobachteten auch Butler und Likens (1995) und Draaijers et al. (1997). Für S-Spezies stimmen auch die großräumig modellierten und die mit Hilfe der Kronenraumbilanz bestimmten S-Einträge überein (Erisman und Draaijers 2003).

### 8.3.3 Stickstoff-Deposition

Besonders deutliche Differenzen ergeben sich beim Vergleich der N-Deposition aus mikrometeorologischer Messung und Kronenraumbilanzierung. Der mit dem Inferenzialmodell PLATIN ermittelten Gesamtdeposition von  $57 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  N steht ein N-Fluss mit dem Bestandesniederschlag von  $30 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  N gegenüber. Dieser liegt auf gleichem Niveau der mit den Kronenraum-

Bilanzierungsmodellen von Ulrich (1994) bzw. Draaijers und Erisman (1995) berechneten N-Gesamtdepositionsraten von 30 und 32 kg ha<sup>-1</sup> a<sup>-1</sup>. Die nach diesen Modellen ermittelten kronenrauminternen Aufnahmeraten liegen zwischen 0 und 2 kg ha<sup>-1</sup> a<sup>-1</sup> N, nach PLATIN sind es 23 kg ha<sup>-1</sup> a<sup>-1</sup> N.

Das Phänomen, dass die mittels mikrometeorologischer Verfahren bestimmte N-Deposition höher liegt als aus Kronenraum-Bilanzierungen wurde auch an anderen Standorten beobachtet, so z.B. in einem Fichtenbestand im Solling (Ibrom et al. 1995, Marques et al. 2001) und in einem Kiefernbestand bei Eberswalde (Zimmerling et al. 2000). Die Modellierung des N-Eintrags mit dem IDEM-Modell ergab für den Kiefernbestand AUKIWI in Augustendorf mit etwa 49,5 kg ha<sup>-1</sup> a<sup>-1</sup> N ebenfalls einen deutlich höheren N-Eintrag als die Kronenraumbilanzierung (Spranger, pers. Mittlg., Zeitraum 1994 - 1998).

Die Differenzen bei der Bestimmung der trockenen N-Deposition mit den eingesetzten Methoden (Kronentraufemessungen, Kronenraumbilanzierung, mikrometeorologische Messungen) zeigen, dass die vorliegenden Daten zu den N-Einträgen in die Wälder mit Unsicherheiten behaftet sind. Bei der Bewertung der Eintragsraten müssen einerseits die Unsicherheiten der Messmethoden betrachtet, andererseits möglicherweise nicht gemessene N-Flüsse identifiziert werden. Außerdem können Ungenauigkeiten in der Bestimmung der Bestandesparameter auftreten, die zu Fehlern der modellierten Depositionsraten führen. Die Modellierung der Deposition mit um ca. 10 % abweichenden Werten für die verwendeten Bestandesparameter bzw. die Konzentrationen von NH<sub>3</sub> und NH<sub>4</sub><sup>+</sup> ergaben Abweichungen bei den N-Flüssen im Bereich von 10 %. Diese Fehler reichen nicht aus, um die Differenz von 50 % zu den Werten der Kronentraufemessungen zu erklären. Auf der Grundlage der räumlichen Wiederholungen kann für den Bestandesniederschlag ein Fehler von unter 20 % der N<sub>ges</sub>-Flüsse ( $\alpha = 5\%$ ) angegeben werden (Dämmgen et al. 2005).

Da die Deposition von Na, Cl und S mit PLATIN und beiden Kronenraum-Bilanzierungsmodellen annähernd übereinstim-

mend geschätzt bzw. erklärt wurde, können die Differenzen zwischen den methodisch unterschiedlich ermittelten N-Einträgen auf die gegenüber Na, Cl und S stärkeren Interaktionen zwischen N und dem Kronenraum zurückgeführt werden. Auch könnte die größere Bedeutung gasförmiger N-Depositionen zur Erklärung der Differenzen beitragen.

Die Kronenraumbilanzierung nach Ulrich (1994) erlaubt bezüglich der N-Flüsse nur konervative Schätzungen, da grundsätzlich die N-Aufnahme im Kronenraum und gasförmige N-Depositionen nur als Netto-Flüsse berechnet werden (Meesenburg et al. 2003, Schaaf und Meesenburg 2005). Demgegenüber berechnet das Draaijers-Modell (Draaijers und Erisman 1995) die NH<sub>4</sub>-Aufnahme unabhängig von der Deposition anderer N-Spezies. Allerdings werden in diesem Modell nur die NH<sub>4</sub>-Flüsse im Austausch mit Nährstoff-Kationen betrachtet. Die stomatäre Aufnahme gasförmiger N-Spezies oder die Aufnahme von NO<sub>3</sub> wird nicht berücksichtigt, obwohl beides prinzipiell nachgewiesen ist (Stulen et al. 1998, Harrison et al. 2000, Geßler et al. 2002).

Die vergleichsweise geringen Raten der N-Deposition nach der Kronenraumbilanzierung und der Kronentraufemessung geben Anlass zu der Frage, ob bei diesem Messverfahren bestimmte Eintragspfade nicht erfasst werden. Eine N-Fraktion, die nicht berücksichtigt wird, ist der partikulär (< ca. 1 mm und > ca. 10 µm) gebundene Stickstoff (PON). Lamersdorf und Blanck (1995) schätzen für einen Fichtenbestand im Solling den verminderten N-Eintrag durch eine Dachkonstruktion und herausfiltriertes Feinmaterial auf 14 bis 21 % der N-Flüsse mit dem Bodeneintrag (Bestandesniederschlag + Streufall). Bezogen auf das Kiefernökosystem in Augustendorf entspricht dies einem zusätzlichen Eintrag von 13 bis 19 kg ha<sup>-1</sup> a<sup>-1</sup> N. Unterstellt man, dass die PON-Flüsse nicht oder nicht vollständig erfasst werden, bleibt trotzdem die Frage, welcher Anteil den internen Flüssen und welchen den externen Flüssen zugerechnet werden muss.

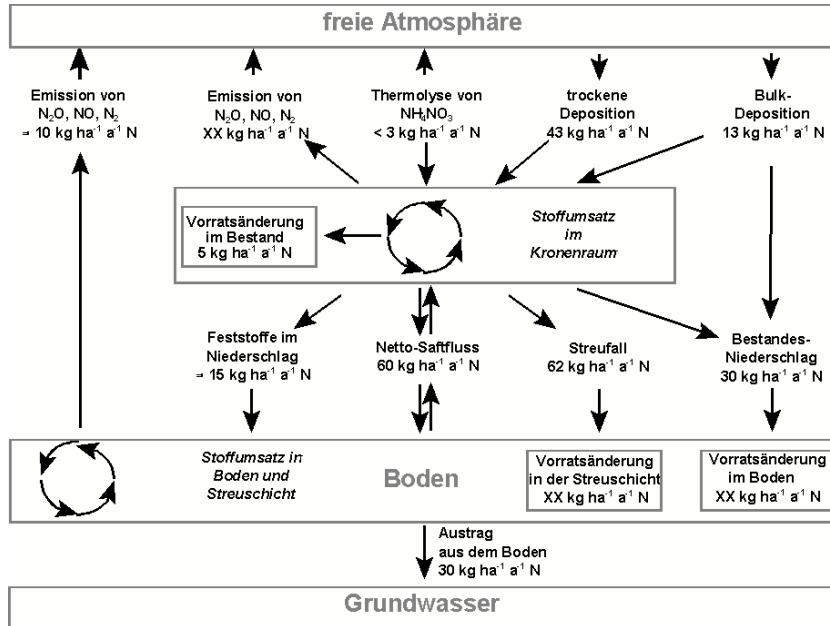


Abbildung 8.8:  
N-Flüsse im Kiefernbestand AUKIW1 im Messzeitraum 2002/2003.

Ein Vergleich der N-Einträge mit den übrigen N-Flüssen im Waldökosystem und mit Daten anderer Untersuchungen erlaubt ebenfalls eine Plausibilitätsprüfung. Diese bietet die Zusammenstellung der Messwerte zu einer Bilanz, wie sie in Abbildung 8.8 vorgenommen wird. Summiert man die mit Hilfe der mikrometeorologischen Messungen gewonnenen Einträge sowie die Bulk-Deposition und veranschlagt man die Verluste durch Thermolyse auf etwa  $2 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ , so ergibt sich eine im Kronenraum verfügbare N-Menge von etwa  $55 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1} \text{ N}$ . Im Holz werden etwa  $5 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1} \text{ N}$  festgelegt. Die Austräge aus dem Kronenraum zum Boden addieren sich zu etwa  $107 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ , wovon der größte Anteil mit dem Streufall zu Boden gelangt (Abbildung 8.8).

Es gibt Grund zur Annahme, dass mit dem Saftfluss nur diejenige N-Menge aus der Wurzel in die Krone transportiert wird, die dort nicht aus den atmosphärischen Einträgen verfügbar ist (Rennenberg et al. 1998, Rennenberg und Gessler 1999). Ein aufwärts gerichteter N-Transport mit dem Saftfluss von etwa  $57 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  würde den Bedarf der Krone decken. Austräge ins Grundwasser am Standort Augustendorf von  $30 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  und gasförmige Verluste aus dem Boden in der Größenordnung von  $10 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  (vgl. Rennenberg et al. 1998) hätten zur Folge, dass nur kleine Mengen in der Streuschicht und im Boden festgelegt oder aus ihnen freigesetzt würden. Da stoffliche Vorratsänderungen im Boden erst im Laufe von mehreren Dekaden quantifizierbar sind, liegen hierzu noch keine verlässlichen Daten vor.

Direkte Untersuchungen zur Stickstoff-Aufnahme durch den Bestand mittels  $^{15}\text{N}$ -Technik weisen Stickstoffaufnahmeraten in der Größen-

ordnung von 1 bis  $10 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1} \text{ N}$  aus (Brumme et al. 1992, Eilers et al. 1992, Garten et al. 1998, Harrison et al. 2000).  $^{15}\text{N}$ -Studien erfassen i.d.R. jedoch nur die N-Aufnahme aus der nassen Deposition. Nach Harrison et al. (2000) ist die gasförmige N-Aufnahme zwar meist geringer als die Aufnahme aus der flüssigen Phase, aber dennoch quantitativ bedeutsam.

Die Aufnahme reduzierter N-Spezies ist sowohl aus der Gasphase wie aus der flüssigen Phase bedeutsamer als die oxidierte N-Spezies. Die gasförmige Aufnahme ist linear abhängig von der Immissionskonzentration der N-Spezies (Geßler et al. 2002), woraus sich für den Standort Augustendorf eine weitaus größere Bedeutung der Aufnahme von  $\text{NH}_3$  gegenüber der von  $\text{NO}_2$  ergibt. Die in diesem Vorhaben durchgeführten Modelluntersuchungen zur  $\text{NH}_4$ -Aufnahme aus der flüssigen Phase lassen vermuten, dass ein Teil der Aufnahme über die Rinde feiner Zweige erfolgt (Mohr et al. 2005).

Auch der Auflagehumus kann  $\text{NH}_3$  absorbieren, ein Fluss, der bei der Kronentraufemessung und der Kronenraumbilanzierung nicht berücksichtigt wird. Im Höglwald, wo die  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen im Mittel von 2,2 bis  $2,9 \mu\text{g m}^{-3}$   $\text{NH}_3$  reichten (Huber und Kreutzer 2002), wurde von Huber et al. (2002) auf der Basis von Labor- und Feldmessungen die  $\text{NH}_3$ -Deposition auf den Boden mit  $10$  bzw.  $9 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1} \text{ N}$  für einen nicht gekalkten bzw. gekalkten Fichtenbestand und mit  $6 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1} \text{ N}$  für einen Buchenbestand beziffert. In Augustendorf betrugen die  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen im Kronenraum im Mittel  $4,5 \pm 1,8 \mu\text{g m}^{-3}$   $\text{NH}_3$  (Mittelw.  $\pm$  Std.-abw.). Hier wurde

mit dem PLATIN-Modell eine  $\text{NH}_3$ -Gesamtdeposition von  $16 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  N ermittelt.

Sowohl die  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen wie auch die  $\text{NH}_3$ -Gesamtdeposition lassen die Vermutung zu, dass in Augustendorf die  $\text{NH}_3$ -Deposition auf dem Auflagehumus in einer Größenordnung liegt, die zur Erklärung der Differenz der Gesamt-N-Deposition zwischen mikrometeorologischem Verfahren und Kronentraufemessung quantitativ beiträgt.

Unterstellt man für die Kronentraufeverfahren einen Minderbefund von jeweils bis zu  $15 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  durch Nichtberücksichtigung von PON und die N-Aufnahme im Kronenraum bzw. Absorption im Auflagehumus, kann die Differenz von  $27 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$  zwischen den beiden Verfahren zur Bestimmung der trockenen N-Deposition erklärt werden. Allerdings geben diese Größen jeweils die Obergrenzen der in der Literatur genannten Werte an. Vor dem Hintergrund der gefundenen Diskrepanz der mittels verschiedener Verfahren ermittelten N-Depositionen werden weitere experimentelle Untersuchungen zur Klärung der offenen Fragen für notwendig gehalten. Diese sollten die Erfassung der PON-Flüsse, die Quantifizierung der N-Aufnahme im Kronenraum auf Bestandesebene, die Emission gasförmiger N-Spezies aus dem Boden und der Phyllosphäre sowie die Deposition von  $\text{NH}_3$  auf dem Boden beinhalten.

## 8.4 Übertragbarkeit der ermittelten Stickstoff-Einträge und -Bilanzen

### 8.4.1 Zeitliche Repräsentativität

In der vorliegenden Studie wurden die N-Einträge in Kiefernökosysteme (Augustendorf, Holdorf und Sandkrug) für einen 2-jährigen Zeitraum ermittelt. Anhand der Ergebnisse, die von diesen Standorten aus Kronentraufemessungen längerer Zeitreihen resultieren, wird die zeitliche Repräsentativität der Untersuchungsergebnisse deutlich. Während das Jahr 2002 höhere Niederschläge als im langjährigen Durchschnitt hatte, lagen sie im Jahr 2003 unter dem Durchschnitt. Im Mittel wurden in der Messphase des Vorhabens jedoch durchschnittliche Witterungsverhältnisse berücksichtigt.

Mit den N-Einträgen im Projektzeitraum werden die in Augustendorf ermittelten N-Einträge auch des länger zurückliegenden Zeitraumes quantitativ gut repräsentiert. In Sandkrug und Holdorf setzte sich dagegen der abnehmende Trend der letzten Jahre fort. Bestätigt wird dieser Trend durch den Rückgang der  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen in der Luft in den Messjahren 1996-1998.

- Die mit relativ hohem Aufwand durchgeführten mikrometeorologischen Messungen in

Augustendorf erfolgten in einer Periode, in der über den Bestandesniederschlag keine ungewöhnlichen N-Mengen in den Boden eingetragen wurden. Auch aufgrund der Tatsache, dass seit Beginn der Depositionsmessungen in Augustendorf (1994) keine grundlegende Änderung der Standortverhältnisse, insbesondere der Bestandesstruktur und der meteorologischen Bedingungen eintreten, kann ebenfalls für das Niveau der mikrometeorologisch ermittelten N-Einträge eine retrospektiv über den Messzeitraum hinausgehende Repräsentativität angenommen werden.

### 8.4.2 Räumliche Repräsentativität auf lokaler Ebene

Für Fragen der Landesplanung, des Boden- und Grundwasserschutzes und der forstlichen Bewirtschaftung spielt neben der zeitlichen Entwicklung die räumliche Verteilung der Stickstoff-Einträge eine ebenso große Rolle. Für die Ermittlungen flächendeckender Verteilungen der atmogenen Stoffeinträge bieten sich prozessorientierte Modelle oder geostatistische Verfahren an. Für die Kartierung der atmogenen Stoffeinträge in der Bunderrepublik Deutschland wurde von Gauger et al. (2002) eine Kombination von beiden Ansätzen verfolgt. Ein weiterer möglicher Weg für eine Regionalisierung von N-Depositionen in Waldbestände in einem Raum mit einheitlicher Imissionssituation ist die Verwendung empirischer Beziehungen zwischen Bestandesstrukturen und den Depositionsraten. Bestandesstrukturparameter liegen flächendeckend z.B. in Forsteinrichtungswerten vor. Zusammenhänge wurden z.B. zwischen der Depositionshöhe und Baumarten gefunden (Rothe et al. 2002).

Die Untersuchung von Eichen-, Kiefern- und Fichten-/Douglasienbeständen unterschiedlichen Alters im Raum Augustendorf zeigte, dass die Bestandeshöhe und der Derbholzvorrat einen größeren Einfluss auf die N-Deposition hatten als die Baumart. In den Altbeständen waren die N-Flüsse in der Kronentraufe um den Faktor 2 höher als in den Jungbeständen (Mohr et al. 2005).

An anderen Standorten wurden dagegen deutliche Unterschiede zwischen den Baumarten gefunden. So wurden im Solling in dem dort untersuchten Fichtenaltbestand um den Faktor 1,5 höhere N-Einträge als in dem benachbarten Buchenbestand, in einem Kiefernaltbestand in der Lüneburger Heide um den Faktor 1,3 höhere N-Einträge als in einem vergleichbaren Eichenaltbestand gemessen (Meesenburg et al. 1995).

Einen Einfluss der Bestandeshöhe auf die trockene Deposition zeigen auch die Untersuchungen von Kues (1984) an unterschiedlich hohen Buchenbeständen im Göttinger Wald (Mittel-

höhe von 3,5 bis 28 m). In den Altbeständen war die S-Deposition um den Faktor 1,8 höher als in dem jüngsten Bestand. Auch an diesen Untersuchungen wird ersichtlich, dass die Struktur der Bestände vermutlich von größerer Bedeutung für die Höhe der Stoffeinträge als die Baumart ist.

Die im ANSWER-Projekt gefundenen Beziehungen zwischen Bestandesstrukturparametern und Stoffeinträgen ermöglichen eine Übertragung der Messergebnisse auf Flächen ohne Messungen, da einzelne Bestandesstrukturparameter aus Forsteinrichtungswerken flächendeckend für Wälder vorliegen (Abbildung 8.9). Für die N-Flüsse erwiesen sich die Bestandesparameter Derbholzvolumen und Bestandeshöhe als die besten Prädiktoren. Dies gilt bei geringerer Güte der Anpassungen auch für  $\text{SO}_4$  und  $\text{Cl}$ .

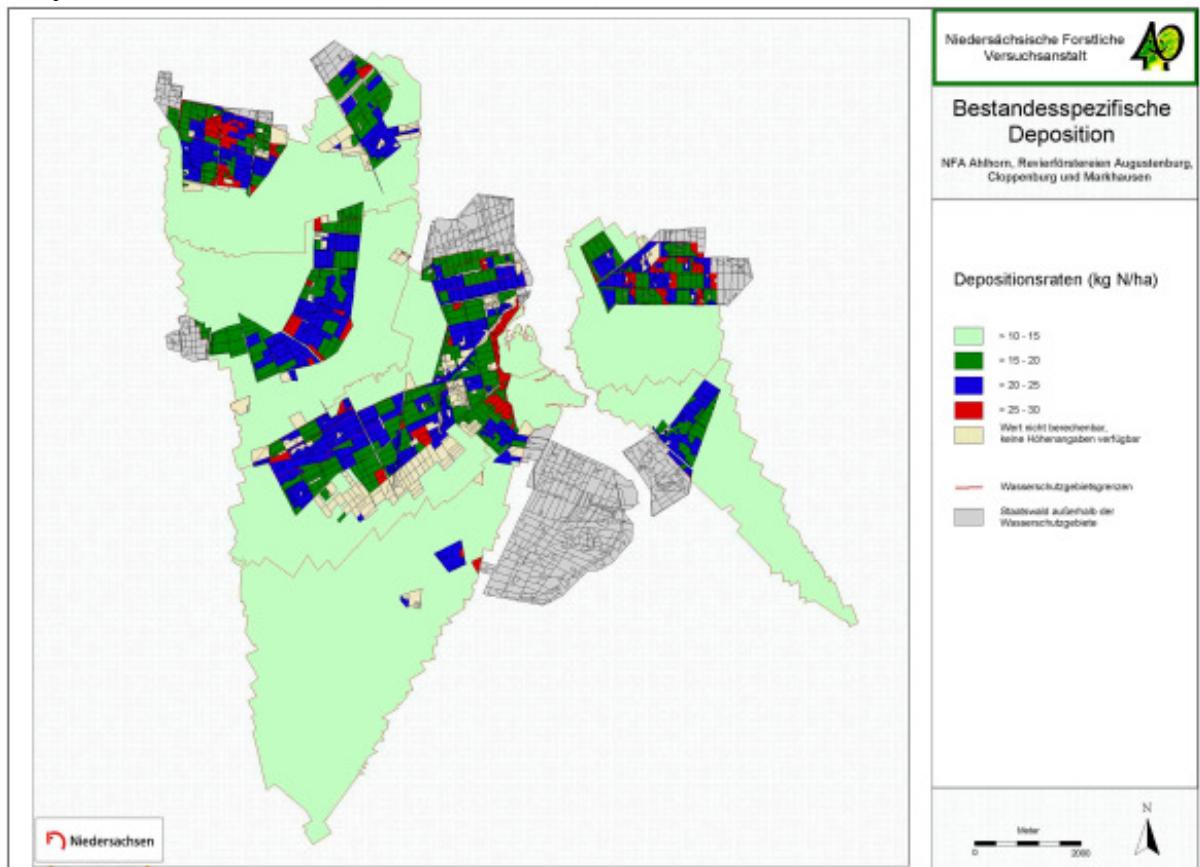
#### 8.4.3 Räumliche Repräsentativität auf regionaler Ebene

Ein weiteres Ziel sollte die Abschätzung des regionalen Gültigkeitsbereichs der im Raum Aug-

stendorf (Landkreis Cloppenburg) ermittelten Untersuchungsergebnisse zum Bestandeseinfluss auf die N-Flüsse sein. Hinweise hierzu geben die Daten der Standorte Sandkrug (Landkreis Oldenburg) und Holdorf (Landkreis Vechta). Trotz einer Entfernung von ca. 40 bis 70 km waren die mittleren N-Einträge der letzten Jahre in den Waldboden der 3 Kiefernstandorte sehr ähnlich. Eine Ausnahme bildete das Untersuchungsjahr 2003, das sich durch sehr niedrige und heterogen verteilte Niederschlagsmengen von den Vorjahren unterscheidet.

Die regionalen Unterschiede der über den Beständen gemessenen  $\text{NH}_3$ -Konzentrationen (Augustendorf:  $8,8 \mu\text{g m}^{-3}$ , Holdorf:  $8,6 \mu\text{g m}^{-3}$ , Sandkrug:  $5,8 \mu\text{g m}^{-3}$ ) kommen im  $\text{NH}_4$ -Kronentraufefluss möglicherweise auch deshalb nur schwach zum Ausdruck.

Abbildung 8.9:  
Karte der N-Deposition für das Wasserschutzgebiet Thülsfelde (Augustendorf), berechnet mittels der Beziehung zwischen N-Deposition und Bestandsoberhöhe (siehe Mohr et al. 2005).



Die ermittelten N-Flüsse in der Kronentraufe der Standorte Holdorf und Sandkrug reihen sich auch recht gut in die im Raum Augustendorf und Herrenholz gefundenen Beziehungen zu bestandesstrukturellen Parametern ein. Damit erscheint eine Übertragbarkeit der Ergebnisse zumindest auf den Raum, der durch das Polygon Sandkrug, Herrenholz, Holdorf und Augustendorf gebildet wird, möglich zu sein. Allerdings wurde die Dimension der kronenrauminternen N-Aufnahmeraten an den Untersuchungsstandorten (Holdorf, Sandkrug und Herrenholz) nicht mikrometeorologisch ermittelt, so dass über deren räumliche Übertragbarkeit keine sicheren Aussagen getroffen werden. Einflüsse lokaler Emissionsquellen und Waldrandeffekte sollten zusätzlich berücksichtigt werden (Draaijers et al. 1988, Mohr 2001, Spangenberg 2002).

Im Gegensatz zu den N-Flüssen im Kronenraum unterscheiden sich die längerfristig betrachteten Stickstoffbilanzen der Kiefernbestände Augustendorf, Holdorf und Sandkrug erheblich. Kennzeichnend hierfür sind die sehr unterschiedlichen N-Austragsraten zwischen etwa 2 kg  $ha^{-1} a^{-1}$  in Sandkrug und 30 kg  $ha^{-1} a^{-1}$  in Augustendorf. Auch in der zeitlichen Entwicklung der  $NO_3$ -Austräge differieren die drei Untersuchungsstandorte: In Augustendorf stiegen die  $NO_3$ -Konzentrationen diskontinuierlich an und betrugen in den Jahren 2002/2003 mit über 90 mg  $l^{-1}$   $NO_3$  nahezu das Doppelte des Trinkwassergrenzwertes. In Holdorf und Sandkrug sind die Nitratkonzentrationen im Verlauf der Jahre (1997 bis 2003) zurückgegangen und betrugen mit 10 mg  $l^{-1}$  bzw. 2 mg  $l^{-1}$  nur ein Bruchteil des Grenzwertes in Höhe von 50 mg  $l^{-1}$   $NO_3$ . Eine mögliche Ursache für die erhöhten N-Austräge in Augustendorf könnte die dort durchgeführte Kompensationskalkung sein.

Die aus den Flussmessungen ermittelte N-Bilanz liegt bei den drei untersuchten Kiefernökosystemen zwischen einer ausgeglichenen Bilanz (Augustendorf) und einer Akkumulation von N (Sandkrug, Holdorf, siehe Mohr et al. 2005, Tab. 7.7). Dies liegt im Rahmen der Ergebnisse anderer Untersuchungen (Block et al. 2000, de Vries et al. 2001) und kann mittels unabhängiger Messgrößen (z.B. periodische Inventuren) nicht überprüft werden.

## 8.5 Effekte erhöhter Stickstoff-Einträge auf Waldökosysteme und benachbarte Ökosysteme

Die große Bedeutung des Baumbestandes für den N-Haushalt ließ sich im ANSWER-Projekt hinsichtlich des N-Eintrages über die Kronentraufe klären. Die N-Akkumulation im Bestand und in der Bodenvegetation kann ebenfalls abgeschätzt

werden (Rademacher et al. 1999, Bolte et al. 2004).

Trotz zahlreicher Untersuchungen gibt es immer noch beträchtliche Wissenslücken bezüglich der ökophysiologischen Auswirkungen von erhöhten N-Einträgen auf Waldökosysteme (Aber 2002). Mögliche Auswirkungen auf Waldbäume sind ein erhöhtes Sprosswachstum bei vermindertem Wurzelwachstum, eine reduzierte Frostresistenz, erhöhter Schädlingsbefall und Nährstoffungleichgewichte (Meiwes et al. 1999).

Nach den mikrometeorologischen Messungen erfolgt ein großer Teil dieser N-Aufnahme außerhalb der Vegetationszeit. In diesen Monaten stellen Kiefernwälder der temperaten Regionen überwiegend eine C-Quelle dar (Dolman et al. 2002). Somit dürfte der größte Anteil des im Kronenraum adsorbierten Stickstoffs in dieser Periode wegen mangelnder Photosyntheseleistung nicht assimilatorisch gebunden, sondern als Aminosäuren oder Amide im Pflanzengewebe zwischengelagert, mit Beginn der Vegetationsperiode transloziert und dem Pflanzenwachstum zur Verfügung gestellt werden (Pearson et al. 2002). Diese räumliche und zeitliche Entkopplung der internen N-Flüsse und -Wirkungen stellt ein nahezu unlösbares Problem der Überprüfung ermittelter Eintragsraten und daraus kurz-/mittelfristig abzuleitender Dosis-Wirkungen dar.

Die N-Aufnahme im Kronenraum kann zu einer reduzierten N-Aufnahme über die Wurzeln führen (Stulen et al. 1998 und dort zit. Lit., Harrison et al. 2000). Eine solche räumliche Entkopplung der Nährstoffaufnahme kann wiederum eine gleichzeitig reduzierte Aufnahme von Nährstoffkationen (K, Mg, Ca) bewirken, was letztlich zu Imbalanzen der Nährstoffversorgung führt. Die Mg-N- und K-N-Verhältnisse in den Nadeln und Blättern der untersuchten Bestände zeigen solche Nährstoffungleichgewichte an (Mohr et al. 2005).

Über die Kronentraufe und den Streufall werden jährlich etwa 107 kg  $ha^{-1} a^{-1}$  Stickstoff auf den Boden deponiert. Die Mineralisationsleistungen dieser Waldböden lassen sich wegen fehlender Untersuchungen nur grob schätzen. Bergmann (1998) stellte in Kiefernwälder vergleichbarer Trophiestufe in Ostdeutschland eine jährliche Nettomineralisation von etwa 60 kg  $ha^{-1} a^{-1}$  fest. Dies liegt im Bereich der von Gosz (1981) genannten Spannbreite für Nadelwälder und erscheint plausibel. Nur ein geringer Teil von ca. 5 kg  $ha^{-1} a^{-1}$  N wird langfristig in der Bestandesbiomasse gebunden. Ein größerer Anteil wird dabei langfristig im Boden- bzw. Auflagehumus immobilisiert. In Sandkrug stellt der Boden vermutlich auch aufgrund des relativ weiten C/N-Verhältnisses von etwa 28 noch eine effektive Senke dar, während die Möglichkeit, durch eine

Verengung des C/N-Verhältnisses des Bodens N zu akkumulieren in Holdorf (C/N  $\approx$  25) und in Augustendorf (C/N  $\approx$  24) eingeschränkt ist. Zusätzlich können aber auch bei gleichbleibendem C/N-Verhältnis hohe N-Mengen akkumuliert werden (Meiwes et al. 2002). Inwiefern dieser Prozess in den untersuchten Ökosystemen zum Tragen kommt, kann anhand der vorliegenden Daten nur näherungsweise beantwortet werden.

Die gleichzeitigen Einträge von Säure und Stickstoff führen zur Überlagerung von Prozessen, die einen hemmenden und stimulierenden Einfluss auf die Mineralisation des Bodenhumus haben. Geringfügige ökologische Veränderungen (Kalkung, Durchforstung) können hierbei bereits den Ausschlag geben. In Augustendorf ist der im Boden gebundene N-Vorrat mit fast 10000 kg ha<sup>-1</sup> deutlich höher als die N-Vorräte in Holdorf und Sandkrug (Mohr et al. 2005, Tab. 7.6). Dies stellt – auch im Zusammenhang mit der in Augustendorf durchgeführten Kompensationskalkung – ein erhöhtes NO<sub>3</sub>-Austragsrisiko gegenüber Holdorf und Sandkrug dar (Block 1995, Huber 1996).

Nach den Ergebnissen der jährlichen Vitalitätsbeurteilung aufgrund des Kronenzustands liegt die Kronenverlichtung in Augustendorf über dem Mittel vergleichbarer Kiefernbestände in der Region und in Niedersachsen (Evers und Meesenburg 2004). Während die Kiefern im Raum Weser-Ems im Mittel eine Kronenverlichtung von 8–13 % aufweisen (Schadstufe 0 – 1), liegt die mittlere Kronenverlichtung in Augustendorf bei 15 – 19 % (Schadstufe 1). In Sandkrug und Holdorf entsprach unter Berücksichtigung jährlicher Schwankungen (Mohr 2001), der Benadelungsgrad dem Landesdurchschnitt.

Als weitere mögliche Indikatoren für Auswirkungen der hohen N-Einträge auf das Waldökosystem wurden der Ernährungszustand der Bäume sowie der N-Austrag mit dem Sickerwasser untersucht. Alle untersuchten Bestände wiesen hohe N-Gehalte in den Blättern bzw. Nadeln auf; die N-Ernährung der Kiefern wird mit 20 bis 21 mg g<sup>-1</sup> TS nach AK Standortskartierung (1996) als sehr gut bewertet. Neben der insgesamt guten N-Fürfügbarkeit am Standort Augustendorf trägt vermutlich auch die N-Aufnahme im Kronenraum zu der hohen N-Versorgung bei. Bei einer geschätzten Kronenraumaufnahme von 15 kg ha<sup>-1</sup> a<sup>-1</sup> würde der N-Bedarf der Bäume in Augustendorf von 67 kg ha<sup>-1</sup> a<sup>-1</sup> (berechnet als Summe von Biomassezuwachs und Streufall) zu 22 % über die Kronenraumaufnahme gedeckt. Andererseits kann die gute N-Versorgung in Verbindung mit einer geringen Versorgung mineralischer Nährstoffe zu einer unausgeglichenen Ernährung der Bäume führen.

Die Wirkung hoher N-Einträge auf die Bodenvegetation besteht eher in einer Verschiebung der Artenzusammensetzung als in sichtbaren Schädigungen (Hofmann 1996, Kraft et al. 2003). Auffälliges Zeichen solcher Vegetationsveränderungen ist das vermehrte Auftreten von stickstoffliebenden Arten wie *Calamagrostis epigejos* (Bolte et al. 2004). Die Bodenvegetation in Augustendorf und Holdorf ist durch im Vergleich zu anderen Kiefernwäldern in Niedersachsen vermehrtes Auftreten von stickstoffliebenden Arten wie *Rubus idaeus* und *Rhamnus frangula* gekennzeichnet (Meesenburg et al. 1997, Niedersächsisches Landesamt für Bodenforschung 2005). Unter den von Bolte et al. (2004) untersuchten Kiefernökosystemen wies Augustendorf die höchsten N-Vorräte in der Bodenvegetation auf. Dies ist ein Hinweis darauf, dass die Bodenvegetation zumindest kurzfristig ein wichtiger Regulator für die Umsetzung überschüssiger N-Einträge ist.

Auch an dem Zustand anderer Kompartimente (N-Konzentrationen in Bodenmoosen, epiphytische Flechten, Auflagehumus) spiegelt sich die Belastungssituation deutlich wider (Mohr 2001). Unabhängig von ihrer ökologischen Bedeutung weisen sie auf eine zumindest langfristige Gefährdung der Stabilität der Wälder und ihrer Funktionen für den Naturhaushalt hin. Weitere Anstrengungen zur Reduzierung der NH<sub>3</sub>-Emissionen, die in der Region Weser-Ems zum überwiegenden Teil landwirtschaftlichen Ursprungs sind, werden daher als notwendig angesehen.

Obgleich der Gültigkeitsbereich der Ergebnisse dieser Studie sich streng genommen auf das Untersuchungsgebiet innerhalb der Weser-Ems Region beschränkt, ist zu vermuten, dass sich einige wesentliche Erkenntnisse auch auf andere geografisch vergleichbare Räume übertragen lassen, insbesondere

- die Erkenntnis, dass die Belastung von Waldökosystemen mit eutrophierenden und versauernden N-Verbindungen vermutlich höher ist als durch Monitoringprogramme (z.B. Level II-Program, Bestandesniederschlag) bisher nachgewiesen wurde.
- damit die Ableitungen von Critical Load-Überschreitungen für die Fortschreibung von Luftreinhaltemaßnahmen (z.B. im Rahmen der CLRTAP) möglicherweise zu niedrig ausfallen.
- der Umstand, dass die Höhe der N-Aufnahmeraten die Raten der mit konventionellen Kronentraufe-Messungen und Inferentialmodellen (Ulrich, Draaiers und Erisman) ermittelten trockenen Deposition deutlich übersteigt.

- die auf bestandesstrukturellen Unterschieden basierende Differenzierung der N-Flüsse im Kronenraum, welche mit Hilfe von Forsteinrichtungsdaten eine präzisere Übertragung vorliegender Monitoringdaten (z.B. Level 2-Programm) auf Standorte ohne entsprechende Messungen ermöglicht.
- die regionalen Unterschiede der NH<sub>4</sub>-Kronentraufeflüsse, die in NH<sub>3</sub>-belasteten Räumen (bei NH<sub>3</sub>-Konzentrationen von etwa > 4 µg m<sup>-3</sup>) gegenüber bestandesbedingten Unterschieden stark zurück treten.
- die regional und lokal stark variierenden ökophysiologischen Wirkungen erhöhter (NH<sub>4</sub>) N-Depositionen, welche gegenwärtig weniger in visuellen Vitalitätsmerkmalen als in Änderungen von Stickstoffflüssen und -vorräten zu Ausdruck kommen.

Ihre Anwendung, wie sie bereits im Zusammenhang mit begleitenden Vorhaben des Landes Niedersachsen, des Bundes und der EU erfolgt (NHG, water4all, NOLIMP, Projekt „Untersuchung zum Nitrataustrag in Abhängigkeit von Baumbestand und Bodeneigenschaften unter hoher atmosphärischer Stickstoffbelastung“) oder geplant sind (Life-Umwelt: EU-TROPH-INDICATOR, AMTRANSEC) kann somit eine Hilfestellung sein, in einer wahrscheinlich noch lange aktuellen Problematik, welche durch Emissionen reduzierender und oxidierender N-Verbindungen besteht.

## 8.6 Literatur

- Aber JD (2002) Nitrogen saturation in temperate forest ecosystems: current theory, remaining questions and recent advances. *Plant Soil* 247, 179-188.
- Aber JD, McDowell W, Nadelhoffer K.J, Magill A, Berntson G, Kamakea M, McNulty S, Currie W, Rustad L, Fernandez I (1998) Nitrogen saturation in temperate forest ecosystems: Hypotheses revisited. *BioScience* 48, 921-934.
- AK Standortskartierung (1996) Forstliche Standortsaufnahme. 5. Aufl., Eching (München), IHW.
- Bergmann C (1998) Stickstoff-Umsätze in der Humusauflage unterschiedlich immissionsbelasteter Kiefernbestände (*Pinus sylvestris* L.) im nordostdeutschen Tiefland. *Cottbuser Schriften zu Bodenschutz und Rekultivierung* 1. Cottbus. 128 S.
- Block J (1995) Stickstoffausträge mit dem Sickerwasser aus Waldökosystemen. UBA: Wirkungskomplex Stickstoff und Wald. UBA-Texte 28, S. 90-96.
- Block J, Eichhorn J, Gehrman J, Kölling C, Matzner E, Meiwes KJ, von Wilpert K, Wolff B (2000) Kennwerte zur Charakterisierung des ökochemischen Bodenzustandes und des Gefährdungspotentials durch Bodenversauerung und Stickstoffsättigung an Level II-Waldökosystem-Dauerbeobachtungsflächen. Bonn, Bundesministerium für Ernährung, Landwirtschaft und Forsten (BML) (Hrsg.), 167 S.
- Bolte A, Anders S, Roloff A (2002): Schätzmodelle zum oberirdischen Vorrat der Waldbodenflora an Trockensubstanz-, Kohlenstoff und Makronährlementen. *Allg Forst Jagd Z* 173(4), 57-66.
- Bolte A, Lambertz B, Steinmeyer A, Kallweit R, Meesenburg H (2004) Zur Funktion der Bodenvegetation im Nährstoffhaushalt von Wäldern: Studien auf Dauerbeobachtungsflächen des EU-Level II-Programms in Norddeutschland. *Forstarchiv* 75, 207-220.
- Bolte A, Wolff B (2001): Validierung von Critical Load-Überschreitungen mit Indikatoren des aktuellen Wirkungsgeschehens. Bundesanstalt für Forst- und Holzwirtschaft. Abschlussprojekt zum UBA-Forschungsprojekt: FKZ: 298 43. Arbeitsbericht Institut für Forstökologie und Walderfassung 2001/4. 1-148.
- Bruckner G, Gebauer G, Schulze E-D (1993) Uptake of <sup>15</sup>NH<sub>3</sub> by *Picea abies* in closed chamber experiments. *Isotopenpraxis Environ. Health Stud* 71-76.
- Brumme R, Leimcke U, Matzner E (1992) Interception and uptake of NH<sub>4</sub><sup>+</sup> and NO<sub>3</sub><sup>-</sup> from wet deposition by above-ground parts of young beech (*Fagus sylvatica* L.) trees. *Plant Soil* 142, 273-279.
- Butler TJ, Likens GE (1995) A direct comparison of throughfall plus stemflow to estimates of dry and total deposition for sulfur and nitrogen. *Atmos Environ* 29, 1253-1265.
- Dämmgen U, Schaaf S, Horváth B, Meesenburg H, Mohr K (2005) Methoden zur Bestimmung von Stoffflüssen und -konzentrationen im ANSWER-Projekt. *Landbauforsch Völkenrode SH XXX, YYY-ZZZ*.
- de Vries V, Reinds JG, Klap JJ, Leeuwen van EP, Erisman, JW (2000) Effects of environmental stress on forest crown condition in Europe. Part III. Estimation of critical deposition and concentration levels and their exceedance. *Water Air Soil Pollut* 119, 363-386.
- Dolman AJ, Moors EJ, Elbers JA (2002) The carbon uptake of a mid latitude pine forest growing on sandy soil. *Agric Forest Meteorol* 111, 157-170.
- Draaijers GPJ, Erisman JW (1995) A canopy budget model to assess atmospheric deposition from throughfall measurements. *Water Air Soil Pollut* 85, 2253-2258.
- Draaijers GPJ, Erisman JW, van Leeuwen NFM, Römer FG, te Winkel BH, Veltkamp AC, Vermeulen AT, Wyers GP (1997) The impact of canopy exchange on differences observed between atmospheric deposition and throughfall fluxes. *Atmos Environ* 31, 387-397.
- Draaijers GPJ, Ivens WPMF, Bleuten W (1988) Atmospheric deposition in forest edges measured by monitoring canopy throughfall. *Water, Air, and Soil Pollution* 42, 129-136.
- Eilers G, Brumme R, Matzner E (1992) Above-ground N-uptake from wet deposition by Norway spruce (*Picea abies* Karst.) *Forest Ecol Managem* 51, 239-249.
- Erisman JW, Draaijers G (2003) Deposition to forests in Europe: most important factors influencing dry

- deposition and models used for generalisation. *Environ Pollut* 124, 379-388.
- Evers J, Meesenburg H (2004) Forest Condition Survey in the catchment area Thülsfelde. Sustainable Groundwater Management, Interreg-IIIB-Project Water4all, Bezirksregierung Weser-Ems. [www.water4all.com](http://www.water4all.com).
- Garten CT, Schwab AB, Shirshac TL (1998) Foliar retention of  $^{15}\text{N}$  tracers: implications for net canopy exchange in low- and high-elevation forest ecosystems. *Forest Ecol Managem* 103, 211-216.
- Gauger T, Anshelm F, Schuster H, Erisman JW, Vermeulen AT, Draaijers GPJ, Bleeker A, Nagel H-D (2002) Mapping of ecosystem specific long-term trends in deposition loads and concentration of air pollutants in Germany and their comparison with Critical Loads and Critical Levels, Part 1: Deposition Loads 1990-1999. Stuttgart, Inst. f. Navigation Stuttgart. 207 S.
- Gebauer G, Zeller B, Schmidt G, May C, Buchmann N, Colin-Belgrand M, Dambrine E, Martin F, Schulze, ED, Bottner P (2002) The fate of 15 N-labelled nitrogen inputs of coniferous and broadleaf forests. In: Schulze ED (eds), Carbon and Nitrogen Cycling in European Forests. Berlin, Springer. S. 144-170.
- Geßler A, Rienks M, Rennenberg H (2002) Stomatal uptake and cuticular adsorption contribute to dry deposition of NH<sub>3</sub> and NO<sub>2</sub> to needles of adult spruce (*Picea abies*) trees. *New Phytol* 156, 179-194.
- Gosz JR (1981) Nitrogen cycling in coniferous ecosystems. Clark FE, Roswall T (eds) Terrestrial nitrogen cycles. *Ecological Bulletin NFR* 33, 405-426
- Harrison AF, Schulze E-D, Gebauer G, Bruckner G (2000) Canopy uptake and utilization of atmospheric pollutant nitrogen. E-D Schulze (ed) Carbon and nitrogen cycling in European forest ecosystems, *Ecol Studies* 142, 171-188.
- Hofmann G (1996) Vegetationswandel in den Wäldern des nordostdeutschen Tieflandes. Mitt. Bundesforschungsanst. Forst- u. Holzwirtsch. Hamburg 185, 45-72.
- Hofmann G (1997) Mitteleuropäische Wald- und Forstökosystemtypen. AFZ/Der Wald. Sonderheft. 91 S.
- Huber C (1996) Einfluß der Kalkung auf den Stoffhaushalt eines stickstoffgesättigten Fichtenökosystems. *Mitt Dt Bodenk Ges* 79, 141-144.
- Huber C, Kreutzer K (2002) Three years of continuous measurements of atmospheric ammonia concentrations over a forest stand at the Höglwald site in southern Bavaria. *Plant Soil* 240, 13-22.
- Huber C, Oberhauser A, Kreutzer K (2002) Deposition of ammonia to the forest floor under spruce and beech at the Höglwald site. *Plant Soil* 240, 3-11.
- Ibrom A, Oltchev A, Constantin J, Marques M, Gravenhorst G (1995) Die Stickstoffimmission und -deposition in Wäldern. IMA-Querschnittseminar Wirkungskomplex Stickstoff und Wald, Umweltbundesamt Texte 28/95, 20-29.
- Kraft M, Reif A, Schreiner M, Aldinger E (2003) Veränderungen der Bodenvegetation und Humusauflage im Nordschwarzwald in den letzten 40 Jahren. *Forstarchiv* 74, 3-15.
- Kues J (1984) Untersuchungen zum Stoffeintrag in den Göttinger Wald. *Ber Forschungszentrum Waldökosysteme/Waldsterben* 6, 1-206.
- Lamersdorf NP, Blanck K (1995) Evaluation of fine material input with throughfall for a spruce forest in Solling, FRG, by means of a roof construction. In: Jenkins A, Ferrier RC, Kirby C (eds.), Ecosystem manipulation experiments: scientific approaches, experimental design and relevant results, Commission of the European Communities, Ecosystem Research Report 20, 168-170.
- Marques MC, Gravenhorst G, Ibrom A (2001) Input of atmospheric particles into forest stands by dry deposition. *Water Air Soil Pollut* 130, 571-576.
- Meesenburg H, Dammann I, Evers J, Schulze A, Rademacher P, Mindrup M, König N, Fortmann H, Eberl C, Meiws KJ (2002) Forstliches Umweltmonitoring als Entscheidungshilfe für die Forstwirtschaft und Umweltpolitik, *Forst Holz* 57, 707-712.
- Meesenburg H, Horváth B, Meiws KJ (2003) Stoffhaushalt von Waldökosystemen NW-Deutschlands unter hoher Stickstoffbelastung. *Ber Freiburger Forstl Forschung* 49, 57-69.
- Meesenburg H, Meiws KJ, Rademacher P (1995) Long term trends in atmospheric deposition and seepage output in northwest German forest ecosystems. *Water Air Soil Pollut* 85, 611-616.
- Meesenburg H, Meiws KJ, Schulze A, Rademacher P (1997) Bodendauerbeobachtungsflächen auf forstlich genutzten Flächen (BDF-F). in: Kleefisch B, Kues J (Hrsg.) Das Bodendauerbeobachtungsprogramm von Niedersachsen: Methodik und Ergebnisse, *Arb-H Boden* 2/1997, 77-95.
- Meiws KJ, Meesenburg H, Bartens H, Rademacher P, Khanna PK (2002) Akkumulation von Auflagehumus im Solling: Mögliche Ursachen und Bedeutung für den Nährstoffkreislauf. *Forst Holz* 57, 428-433.
- Meiws KJ, Meesenburg H, Rademacher P. (1999) Wirkung von Stickstoff auf Waldökosysteme. *Mitt NNA* 10/1, 118-121.
- Mohr K (2001) Stickstoffimmissionen in Nordwestdeutschland - Untersuchungen zu den ökologischen Auswirkungen auf Kiefernforsten und Möglichkeiten der Bioindikation. Dissertation Universität Oldenburg. <http://www.bis.uni.oldenburg.de>, 1-182.
- Mohr K, Schaaf S, Horváth B, Meesenburg H, Dämmgen U (2005) Stoff- und Energieflüsse der im ANSWER-Projekt untersuchten Waldbestände. *Landbauforsch Völkenrode SH XX, YY-ZZ*.
- Nagel H D, Gregor, H D (1999) Ökologische Belastungsgrenzen Critical Loads & Levels: Ein internationales Konzept für die Luftreinhaltepolitik. Berlin, Springer. 259 S.
- Niedersächsisches Landesamt für Bodenforschung (NLfB) (Hrsg.) (2005) Boden-Dauerbeobachtung in Niedersachsen – Standorte und Baseline. ACCESS-Anwendung auf CD-ROM [NLfB] Hannover.
- Pearson J, Woodall J, Clough ECM, Nielsen KA, Schjørring JK (2002) Production and consumption of NH<sub>4</sub><sup>+</sup> and NH<sub>3</sub>. In: Gasche R, Papen H, Rennenberg H: Trace Gas Exchange in Forest Ecosystems. *Tree Physiol* 3, 53-77.
- Pérez-Soba M, v.d. Eerden LJM (1993) Nitrogen uptake in needles of scots pine (*Pinus sylvestris* L.) when

- exposed to gaseous ammonia and ammonium fertilizer in the soil. *Plant Soil* 153, 231-242.
- Rademacher P, Buß B, Müller-Using B (1999) Waldbau und Nährstoffmanagement als integrierte Aufgabe in der Kiefern-Waldwirtschaft auf ärmeren pleistozänen Sanden. *Forst Holz* 54, 330-335.
- Rennenberg H, Gessler A (1999) Consequences of N deposition to forest ecosystems – recent results and future research needs. *Water Air Soil Pollut* 116, 47-64.
- Rennenberg H, Kreutzer K, Papen H, Weber P (1998) Consequences of high loads of nitrogen for spruce (*Picea abies*) and beech (*Fagus sylvatica*) forests. *New Phytol* 139, 71-86.
- Rothe A, Huber C, Kreutzer K, Weis W (2002) Deposition and soil leaching in stands of Norway spruce and European beech. Results from the Höglwald research in comparison with other European case studies. *Plant Soil* 240, 33-45.
- Schaaf S, Dämmgen U, Mohr K, Meesenburg H (2005b) Witterung, Spurengas- und Schwebstaub-Inhaltsstoff-Konzentrationen in der Umgebungsluft und in den Beständen des ANSWER-Projekts. Landbauforsch Völkenrode SH XXX, YYY-ZZZ.**
- Schaaf S, Meesenburg H (2005) Modellierung der Stoffflüsse in Waldbeständen im ANSWER-Projekt. *Landbauforsch Völkenrode SH XXX, YYY-ZZZ.*
- Slovík S, Siegmund A, Kindermann G, Riebeling R, Balázs Á (1995) Stomatal SO<sub>2</sub> uptake and sulphate accumulation in needles of Norway spruce stands (*Picea abies*) in Central Europe. *Plant Soil* 168-169, 405-419.
- Spangenberg A (2002) Stickstoffbelastung an Waldrändern – Untersuchungen in südbayerischen Regionen mit hoher Ammoniakemission. *Forstl Forschungsber* 190, 1-176.
- Stulen I, Perez-Soba M, de Kok LJ, van der Eerden L (1998) Impact of gaseous nitrogen deposition on plant functioning. *New Phytol* 139, 61-70.
- Thomas FM (1991) Mechanismen der Säureneutralisation in Blättern der Stieleiche (*Quercus robur* L.) bei SO<sub>2</sub>-Begasung. *Ber Forschungszentrum Waldökosysteme A74*, 1-171.
- Ulrich B (1994) Nutrient and acid/base budget of central European forest ecosystems. In: Hütermann A, Godbold DL (Hrsg.) *Effects of acid rain on forest processes*. New York, Wiley. S. 1-50.

## 9 Unmittelbare Folgewirkungen des ANSWER-Projekts im Bereich der Ammoniak-Messungen

Das Niedersächsische Landesamt für Ökologie hat an seiner Station Bösel neben dem Routinemessprogramm Verfahren zur Messung von Ammoniak-Konzentrationen erprobt (Abbildung 9.1). Im Vordergrund standen Messungen mit kontinuierlich registrierenden Geräten; entwickelt und erprobt wurden Monitore, die NH<sub>3</sub> nach katalytischer Oxidation als NO erfassen. Der Versuch, die in Augustendorf und Bösel gemessenen Konzentrationen zu vergleichen, schlug fehl. Neben der Entfernung der Messstellen wurden Unterschiede aber auch auf die unterschiedlichen Verfahren zurückgeführt.



Abbildung 9.1:  
Messaufbau an der Messstelle Bösel des NLOE mit unterschiedlichen Passiv-Sammern

Da keine dem Stand des Wissens entsprechenden Normen zur Messung von NH<sub>3</sub> in der Umgebungsluft existieren, wurde vereinbart,

- die an NH<sub>3</sub>-Messungen interessierten Arbeitsgruppen in Deutschland zum Informationsaustausch einzuladen. Hieraus entstanden die „Braunschweiger Ammoniak-Treffen“, die seit 2002 regelmäßig im November in der FAL stattfinden.
- möglichst viele Messverfahren in Bösel parallel zu betreiben. Dabei kamen neben den kon-

tinuierlich messenden Geräten vor allem Passiv-Sammler zum Einsatz. Die Ergebnisse waren zum Teil ermutigend (Abbildung 9.2), ließen aber auch erkennen, dass eine Norm zum Messen von NH<sub>3</sub>-Konzentrationen in der Umgebungsluft fehlte.

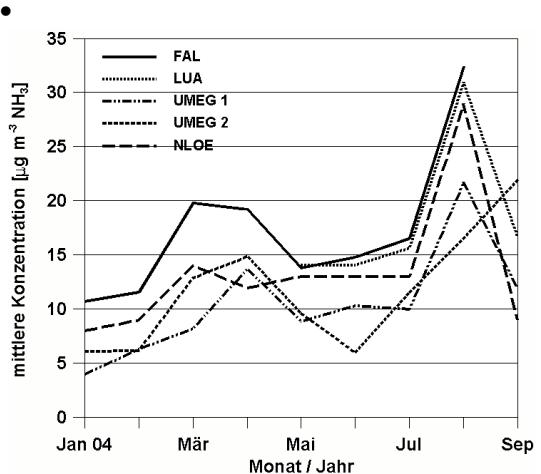


Abbildung 9.2:  
Ergebnisse der Parallelmessungen mit unterschiedlichen Passiv-Sammern (FAL etc.) bzw. dem Konvertergerät (NLOE) (unveröffentlichte Daten NLOE)

Es wurde beschlossen,

- in der Kommission Reinhaltung der Luft im VDI und DIN eine entsprechende Arbeitsgruppe einzurichten. Sie legte das Denuder-Verfahren als Referenz-Verfahren fest. Die Richtlinie „Messen von Ammoniak in der Umgebungsluft. Probenahme in mit Citronensäure beschichteten Diffusionsabscheidern (Denudern). Photometrische bzw. ionenchromatographische Analyse, VDI 3869, Bl. 3, wird 2005 als Gründruck vorliegen. Die Beschreibung von Passiv-Sammelverfahren hat im Januar 2005 begonnen.

Gemeinsam mit dem Umweltbundesamt, Messstelle Schauinsland, wurden

- Vergleichsmessungen in gering belasteten Atmosphären begonnen.

Um dem im Vergleich zu anderen Luftverunreinigungen geringen Kenntnisstand über typische Konzentrationen und deren räumliche Variabilität

zu erhalten, wurde bei den Braunschweiger Ammoniak-Treffen vereinbart,

- ein Messprogramm zu formulieren. Dies ist nun unter dem Titel "Ammonia Transect in Central Europe – AMTRANSEC" als EU-LIFE-Projekt beantragt. Teilnehmer sind neben dem Niedersächsischen Landesamt für Ökologie NLOE (jetzt Niedersächsisches Gewerbeaufsichtsamt, Hildesheim), dem Institut für Agraökologie der Bundesforschungsanstalt für Landwirtschaft, die Fachhochschule Oldenburg / Ostfriesland / Wilhelmshaven, Fachbereich Technik (EUTEC; Emden), das Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (RIVM, Bilthoven), das Institut für Troposphärenforschung (IfT, Leipzig), das Umweltbundesamt (Langen), das Landesumweltamt Brandenburg (Referat Umweltbeobachtung Ökotoxikologie), das Landesamt für Umwelt, Naturschutz und Geologie Mecklenburg Vorpommern (LUNG, Güstrow), das Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen (LUA; Essen) und das Instytut Budownictwa, Mechanizacji i Elektryfikacji Rolnictwa w Warszawie (Institute for Building, Mechanization and Electrification of Agriculture in Warsaw) (IBMER, Posen)

Das Messprogramm wurde als LIFE-Projekt eingereicht.

## Glossar

### Erläuterungen zu Einheiten und Symbolen

Es werden ausschließlich SI-Einheiten und Symbole nach IUPAC (1993) bzw. IUPAP (1987) benutzt, deren Gebrauch für Deutschland vorgeschrieben ist (Bundesminister für Wirtschaft 1969, 1970)

Spezielle Einheiten, die in den Forst- und Landwirtschaftswissenschaften und der Mikrometeorologie verwendet werden, benutzen wir wie bei Monteith (1984) und Reifsnyder et al. (1991).

Größen werden dabei stets kursiv geschrieben, Skalare (Zahlen), Einheiten, (erläuternde) Indizes und Operatoren ( $\sin$ ,  $\lg$ ,  $+$ ,  $d$ ) steil.

Die Erläuterungen zu Einheiten werden nach den Einheiten angegeben, also

7 kg  $\text{ha}^{-1} \text{a}^{-1}$   $\text{NH}_3\text{-N}$ , **nicht** 7 kg  $\text{NH}_3\text{-N} \text{ ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$

### Elementsymbole und chemische Spezies

Ca	Calcium
Cl	Chlor
$\text{Cl}^-$	Chlorid
H	Wasserstoff
$\text{H}^+$	Wasserstoff-Ion, Proton
HCl	Chlorwasserstoff
$\text{HNO}_2$	salpetrige Säure
$\text{HNO}_3$	Salpetersäure
$\text{H}_2\text{SO}_4$	Schwefelsäure
K	Kalium
Mg	Magnesium
N	Stickstoff
$\text{NH}_3$	Ammoniak
$\text{NH}_4^+$	Ammonium
$\text{NO}_3^-$	Nitrat
$\text{NO}_x$	Stickstoffoxide, summe von NO und $\text{NO}_2$
$\text{NO}_y$	oxidierte Stickstoff-Spezies, Summe
Na	Natrium
S	Schwefel
$\text{SO}_2$	Schwefeldioxid
$\text{SO}_4^{2-}$	Sulfat

### Größen- und Einheitsymbole, Kürzel

a	Jahr
A	Fläche, Querschnittsfläche
AU	Kürzel für Standort Augustendorf
B1, B2	Kürzel für basisch beschichtete Denuder
BHD	Brusthöhendurchmesser
$\beta$	Bestandesentwicklungsfunktion
c	Konzentration (in einer flüssigen Lösung)
$c_{\text{LAI}}$	Extinktionskoeffizient des Bestandes
$c_p$	spez. Wärmekapazität (z.B. in $\text{J kg}^{-1} \text{K}^{-1}$ )
CE	Kronenraumtausch (canopy exchange)
d	Nullebenenverschiebung (z.B. in m)
D	molekularer Diffusionskoeffizient (z.B. in $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$ )
DF	Draaiers-Faktor

$\Delta BW$	Bodenwasseränderung (z.B. in $\text{mm Tag}^{-1}$ )
EI	Kürzel für Bestandesart Eiche
ET	Evapotranspirationsrate (z.B. in $\text{mm bzw. 1 m}^2$ pro Zeit)
$f$	Funktion von
$f_{\text{0,A}}$	Aktivitätsfaktor für Stoff A
$f_1, f_2, f_3, f_4$	Jarvis-Stewart-Kontrollfunktionen
$F_A$	vertikaler Stofffluss von A (z.B. in $\text{μg m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ oder in $\text{kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ )
$F_m$	Impulsfluss (z.B. in $\text{m}^2 \text{ s}^{-2}$ )
FD	Kürzel für Bestandesart Fichte/Douglasie
FF	Kürzel für Freifläche
g	Gramm
$g$	Erdbeschleunigung (z.B. $\text{m s}^{-2}$ )
$G$	Bodenwärmestrom ( $\text{W m}^{-2}$ )
$Gg$	Gigagramm, 1 Gg = $10^9 \text{ g}$ (= 1 kt)
GR	Sickerung / Grundwasserneubildung
$\gamma$	Psychrometer-Konstante
$\Gamma$	Ammonium-Protonen-Verhältnis im Apoplasten
$h$	Höhe (über Grund)
$I$	elektrische Stromstärke
ha	Hektar
HO	Kürzel für Standort Holdorf
$H$	sensibler Wärmestrom
HE	Kürzel für Standort Herrenholz
$\kappa$	von-Kármán-Konstante
kg	Kilogramm
$k_h$	Henry-Konstante
KI	Kürzel für Bestandesart Kiefer
$K_p$	Sättigungsprodukt
$\lambda$	Verdampfungswärme
$\lambda E$	Latente Wärme
$l$	Länge
l	Liter
L	Monin-Obukhov-Länge
LAI	Blattflächenindex
mol	Mol (Einheit der Stoffmenge)
mmol	Millimol
Ma	$\Sigma \text{H, Mn, Al, Fe}$ ("saure" Kationen)
Mb	$\Sigma \text{Na, K, Mg, Ca}$ (Neutralkationen)
$N_F$	Freilandniederschlag
$\mu\text{g}$	Mikrogramm
$Q$	Stoffmenge
pH	pH-Wert (negativer dekadischer Logarithmus der Protonen-Konzentration in Wasser, gemessen in $\text{mol l}^{-1}$ )
Pr	Prandtl-Zahl
$\psi_m$	atmosphärische Stabilitätsfunktion für den Impulstransport
$\psi_h$	atmosphärische Stabilitätsfunktion für den Wärmetransport
PTFE	Polytetrafluorethylen
R	ohmscher Widerstand
$R^2$	Bestimmtheitsmaß einer Korrelation
$R_{ah}$	aerodynamischer Transportwiderstand
$R_{b,A}$	quasi-laminarer Transportwiderstand für einen Luftinhaltsstoff A
$R_{b,h}$	quasi-laminarer Transportwiderstand für Wärme

$R_{\text{Boden},A}$	Bodenwiderstand für einen Luftinhaltsstoff A
$R_{\text{c},A}$	Bestandeswiderstand für einen Luftinhaltsstoff A
$R_{\text{cut},A}$	Cuticula-Widerstand für einen Luftinhaltsstoff A
$R_{\text{ext},A}$	externer Oberflächenwiderstand für einen Luftinhaltsstoff A
$R_g$	Globalstrahlung
$R_{\text{H}_2\text{Omin}}$	minimaler Stomatawiderstand für Wasserdampf
$R_{\text{mes},A}$	Mesophyllwiderstand für einen Luftinhaltsstoff A
$R_{\text{net}}$	Nettostrahlung
$R_{\text{stom},A}$	Stomatawiderstand für einen Luftinhaltsstoff A
$RH$	relative Luftfeuchte
$\rho$	Dichte, Partialdichte (als Konzentrationsgröße)
$s$	Sekunde
$s$	Steigung der Dampfdruckkurve
$S$	Kürzel für sauer beschichtete Denuder
$SA$	Kürzel für Standort Sandkrug
$Sc$	Schmidt-Zahl
$t$	Zeit
$t_a$	Lufttemperatur in $^{\circ}\text{C}$
$T_a$	absolute Lufttemperatur
$t_{\text{b},A}$	Siedetemperatur für Gas A
$T_s$	Bestandestemperatur
$TS$	Trockensubstanz
$U_1, U_2$	elektrische Potenziale
$u$	horizontale Windgeschwindigkeit
$u_*$	Schubspannungsgeschwindigkeit
$V$	Volumen
$v_D$	Depositionsgeschwindigkeit
$v_{\text{DS}}$	Standard-Depositionsgeschwindigkeit
$VPD$	Wasserdampfsättigungsdefizit
$w$	vertikale Windgeschwindigkeit
$wa$	schwache Säuren
$z_m$	Messhöhe oberhalb des Bestandes
$z_{0A}$	Rauhigkeitslänge für den Gasfluss für einen Luftinhaltsstoff A
$z_{0h}$	Rauhigkeitslänge für den Wärmestrom
$z_{0m}$	Rauhigkeitslänge für den Impulsfluss

### Begriffe

**Aerosole:** Eigentlich Bezeichnung für die aus einem gas und einer kondensierten Phase gebildeten Mischphase, in der die kondensierte (feste oder flüssige) Phase fein verteilt als Partikel vorliegt.

**Bestandesniederschlag:** Der Niederschlag, der den Boden unterhalb eines Waldbestandes erreicht; entspricht der Summe von Kronentraufe und Stammablauf.

**Bestandesdeposition:** Stofffluss, der über die Kronentraufe in den Boden erfolgt. Gleichzusetzen mit Kronentraufefluss

**Brusthöhendurchmesser:** Durchmesser eines Baumes in Brusthöhe (1,3 m).

**Bulk-Deposition:** Die Summe der mit sog. Surrogatflächen aufgefangenen (nassen und trockenen) sedimentierenden Partikel (vgl. Dämmgen et al., 2004)

**Deposition:** Der Begriff „Deposition“ beschreibt nach VDI 2450 den Vorgang des Übertritts eines Stoffes aus der Atmosphäre in ein System. Normalerweise ist dies der Durchtritt durch eine (gedachte) Hüllfläche.

**Freilandniederschlag:** Niederschlag, der auf einer Freifläche ohne Beeinflussung durch Vegetation in 1 m über der Erdoberfläche gemessen wird.

**Konzentrationen und Konzentrationsmaße:** Konzentrationen beschreiben Anteile in Mischphasen. Sie können als Verhältnis von Massen (z.B.  $\text{kg kg}^{-1}$ ), von Volumina (z.B.  $1 \text{ l}^{-1}$ ), Teilchenzahlen (Molenbruch,  $\text{mol mol}^{-1}$  oder ppb) oder auch Massen und Volumen (Partialdichte, z.B.  $\mu\text{g m}^{-3}$ ) angegeben werden. Symbol für den Molenbruch ist  $\chi$ , für die Partialdichte  $\rho$ .

**Mol:** Einheit der Teilchenzahl einer Spezies ( $6,022 \cdot 10^{23}$  Stück)

**Partialdichte:** Massenanteil in einer Mischphase bezogen auf das Volumen. In Deutschland übliche Konzentrationsangabe für Spurengas-Konzentrationen (Einheit z.B.  $\mu\text{g m}^{-3}$ ).

**Spezies:** Sammelbegriff für Moleküle, Ionen, Aggregate, die ein bestimmtes Element enthalten. So sind  $\text{NH}_3$ ,  $\text{NH}_4^+$  oder  $\text{NH}_2\text{-CO-NH}_2$  Stickstoff-Spezies.

### Literatur zum Glossar

Bundesminister für Wirtschaft (1969) Gesetz über Einheiten im Meßwesen. BGBI 1969, Teil I, 709-712

Bundesminister für Wirtschaft (1970) Ausführungsverordnung zum Gesetz über Einheiten im Meßwesen. BGBI 1970, Teil I, 981-991

Dämmgen U, Erisman JW, Cape JN, Grünhage L, Fowler D (2005) Practical considerations for addressing uncertainties in monitoring bulk deposition. Environ Pollut, im Druck

IUPAC – International Union of Pure and Applied Chemistry (1993) Quantities, Units and Symbols in Physical Chemistry. 2nd ed. London, Blackwell. 160 S.

IUPAP – International Union of Pure and Applied Physics (1987) Symbols, Units, Nomenclature and Fundamental Constants in Physics. Physica 146A, 1-68

Monteith JL (1984) Consistency and convenience in the choice of units for agricultural science. Expl Agric 20, 105-117

Norm VDI 2450 Bl. 1 (1977) Messen von Emission, Transmission und Immission luftverunreinigender Stoffe. Begriffe, Definitionen, Erläuterungen. Düsseldorf, Verein Deutscher Ingenieure.

Reifsnyder WE, McNaughton KG, Milford JR (1991) Symbols, units, notation. A statement of journal policy. Agric Forest Meteorol 54, 389-397